



HAL
open science

Étude des boîtes quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL bi-fréquence cohérent

Gaëlle Brévalle

► **To cite this version:**

Gaëlle Brévalle. Étude des boîtes quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL bi-fréquence cohérent. Optique [physics.optics]. Institut National des Sciences Appliquées - Rennes, 2019. Français. NNT: . tel-02903102v1

HAL Id: tel-02903102

<https://hal.science/tel-02903102v1>

Submitted on 8 Jul 2020 (v1), last revised 20 Jul 2020 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE DOCTORAT DE

L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES
APPLIQUEES RENNES
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière Molécules et Matériaux
Spécialité : *Photonique*

Par

Gaëlle BREVALLE

**Etude des boîtes quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL
bi-fréquence cohérent**

Thèse présentée et soutenue à Rennes, le 09/12/2019

Unité de recherche : INSTITUT FOTON (UMR 6082 / CNRS)

Thèse N° : 19ISAR 30 / D19 - 30

Rapporteurs avant soutenance

Sophie BOUCHOULE
Directrice de recherche, C2N, Université Paris-Saclay

Guillaume CASSABOIS
Professeur, Laboratoire Charles Coulomb, Université
de Montpellier

Composition du Jury :

Présidente du Jury Sophie BOUCHOULE
Directrice de recherche, C2N, Université Paris-Saclay / Rapporteur
Guillaume CASSABOIS
Professeur, Laboratoire Charles Coulomb, Université de Montpellier /
Rapporteur
Ghaya BAILI
Dr.-Ing. de recherche, Thales Research & Technology / Examinatrice
Krassimir PANAJOTOV
Professeur, B-Phot, Vrije Universiteit Brussel / Examineur
Mehdi ALOUINI
Professeur, Institut FOTON, Université de Rennes 1 / co-directeur de
thèse
Hervé FOLLIOU
Professeur, Institut FOTON, INSA de Rennes / co-directeur de thèse
Cyril PARANTHOEN
MCF, Institut FOTON, INSA de Rennes / co-encadrant de thèse
Mathieu PERRIN
MCF, Institut FOTON, INSA de Rennes / co-encadrant de thèse

Intitulé de la thèse :

Etude des boîtes quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL bi-fréquence cohérent

Gaëlle Brévalle

En partenariat avec :



EPFL



Document protégé par les droits d'auteur

Remerciements

Après de nombreuses péripéties, me voilà enfin libérée ! Et c'est grâce à toutes les personnes qui m'ont accompagnée, soutenue et aidée, et je tiens à les remercier.

Je tiens dans un premier temps à remercier mes directeurs de thèses, Mehdi et Hervé, ainsi que mes co-encadrants Cyril et Mathieu pour leur grande aide et leurs précieux conseils. Merci également de m'avoir emmenée au Japon !

Je remercie également tous mes collègues, doctorants actuels et anciens (la bande, Ronan-Daniel-Ida-Tore-Mickaël), et plus spécifiquement mon camarade du bureau 007 Alejandro, et mon compère Alex, avec qui les repas du midi ont été une vraie pause et un moment que j'attendais particulièrement dans la journée pour décompresser. Merci à tous les permanents pour le partage du savoir et les moments de rigolade, et en particulier le secrétariat avec Alexandrine et Isabelle pour les fous rires et ma séance râlage quotidienne (et merci pour les gâteaux périmés !).

Je n'aurais jamais réussi à tenir le coup sans les séances de sport/torture du midi et mes amis sportifs que je tiens à remercier. Les compétitions improvisées avec Olivier vont me manquer, et, j'espère que les défis continueront (Alex, Yoan, Alejandro, Charles et Nicolas, je compte sur vous !). En complément du sport, le service recherche, en plus de la gestion impeccable de tous mes soucis administratifs, m'a bien réconfortée avec les pauses goûters !

Je remercie bien sûr également ma famille : merci maman pour faire semblant de comprendre et merci Steph pour me dire que tu ne comprends rien. Enfin une pensée va à mon papa, qui est sûrement fier de moi.

Last but not least (by far !), je remercie Jean, ma moitié, qui malgré la distance, m'a soutenue, encouragée, et a été une oreille attentive (tu fais bien semblant de comprendre ☺). Merci aussi de m'avoir poussée à faire ce doctorat ! Enfin, merci aux copains d'avoir parcouru tous ces kilomètres pour venir assister à ma soutenance.

Ces trois années furent riches en émotion, un grand merci à tous et à bientôt !

Table des matières

Introduction	1
Chapitre 1 Contexte et état de l'art.....	5
1.1 Etat de l'art des lasers bi-fréquences	6
1.1.1 Génération de THz : avantages des lasers bi-fréquences	7
1.1.2 Les lasers bi-fréquences à état solide.....	8
1.1.3 Les lasers bi-fréquences à semiconducteurs	10
1.2 Rappel des propriétés des BQs.....	15
1.2.1 Le confinement quantique	15
1.2.2 Propriétés électroniques	16
1.2.3 Propriétés optiques.....	17
1.2.4 Les BQs et les lasers	20
1.3 Le couplage dans les lasers à boîtes quantiques	23
1.3.1 Couplage électronique	23
1.3.2 Couplage dans les lasers.....	25
1.4 Objectifs de la thèse	27
Chapitre 2 Ingénierie de la zone active pour la conception d'un laser bi-fréquence	29
2.1 Croissance des BQs InAs/InP(311)B par épitaxie	30
2.1.1 Le matériau III-V.....	30
2.1.2 Croissance des boîtes quantiques par MBE.....	32
2.1.3 Cas particulier de l'InP : l'orientation cristalline.....	34
2.2 Protocole expérimental pour l'optimisation des BQs	36
2.3 Propriétés structurales des BQs	37
2.3.1 Réalisation et traitement des mesures d'AFM.....	38
2.3.2 Densité et auto-organisation des boîtes quantiques	40
2.3.3 Dimension des boîtes en fonction des paramètres de croissance.....	43
2.4 Propriétés spectrales des BQs.....	47
2.4.1 Principe de la Photoluminescence et conditions expérimentales	48
2.4.2 Evolution de la longueur d'onde d'émission des BQs	49
2.4.3 Elargissement inhomogène de nos échantillons	50
2.4.4 Rendement de la photoluminescence.....	51
2.5 Design de la zone active pour le VECSEL.....	53
2.5.1 Contrôle de la longueur d'onde d'émission.....	53
2.5.2 Empilement des plans de BQs	55
2.6 Conclusion du Chapitre 2	56
Chapitre 3 Spectroscopie de saturation d'absorption.....	58
3.1 Principe de la saturation d'absorption	60

3.1.1 Absorption d'un système à deux niveaux	60
3.1.2 Absorption d'un ensemble homogène.....	62
3.1.3 Absorption d'un ensemble inhomogène.....	64
3.1.4 Le Spectral Hole Burning.....	65
3.2 Spectroscopie des boites et bâtonnets quantiques	68
3.2.1 Les différentes techniques pour obtenir la largeur homogène	68
3.2.2 Elargissement homogène en température.....	70
3.2.3 Etat de l'art des études spectroscopiques de la largeur homogène des BQs et BatQs	72
3.3 Montage expérimental	73
3.3.1 Lasers de pompe et de sonde	74
3.3.2 Contrôle et mise en forme de la sonde	76
3.3.3 Contrôle des profils de mode de la pompe et de la sonde sur l'échantillon	85
3.3.4 Détection et traitement des données	88
3.4 Echantillons étudiés	93
3.4.1 Echantillon de référence pour l'étalonnage : les PQs	93
3.4.2 Echantillon à bâtonnets et boites quantiques	94
3.5 Spectroscopie de saturation d'absorption de la structure à puits quantiques	97
3.5.1 Interférences	97
3.5.2 Résolution du problème de « marches »	98
3.5.3 Validation du montage expérimental	100
3.6 Spectroscopie et comparaison des structures à BQs et à BatQs	108
3.6.1 A basse température.....	108
3.6.2 Elargissement homogène et inhomogène en température	118
3.6.3 Mesures à température ambiante	125
3.7 Conclusion sur le couplage électronique et photonique	128
Chapitre 4 Etude et caractérisation des VECSELS à PQs et à BQs	130
4.1 Description de l'architecture VECSEL.....	131
4.1.1 Cavité du VECSEL.....	131
4.1.2 Pompage du VECSEL.....	135
4.1.3 Contrôle des modes.....	137
4.1.4 Etat de l'art des VECSELS	143
4.2 Description des échantillons VECSELS.....	147
4.2.1 VECSEL à puits quantiques	147
4.2.2 VECSEL à boites quantiques	148
4.3 Description du montage expérimental.....	153
4.4 Caractérisations des échantillons VECSELS.....	155
4.4.1 Le VECSEL à puits quantiques	155
4.4.2 Le VECSEL à boites quantiques	157
4.5 Conclusion du chapitre	160
Chapitre 5 Mesure directe du couplage dans les VECSELS.....	162
5.1 Le couplage dans les lasers bi-fréquences	163
5.1.1 La constante de couplage de Lamb	163

5.1.2 Dans les lasers à état solide	164
5.1.3 Dans les lasers à semiconducteur et les VECSELS	164
5.2 Principe de la mesure.....	166
5.3 Description et validation du dispositif expérimental	167
5.3.1 Conception de la cavité bi-fréquence pour la mesure du couplage.....	168
5.3.2 Chaîne de détection et analyse de l'émission bi-fréquence.....	171
5.4 Couplage dans les VECSELS à base de puits quantiques	175
5.4.1 Fonctionnement bi-fréquence.....	175
5.4.2 Mesure de la constante de couplage et de sa dépendance spectrale.....	177
5.4.3 Etude statistique.....	180
5.4.4 Discussion des résultats	183
Conclusion et perspectives.....	184
Annexe 1.....	189
Annexe 2.....	191
Annexe 3.....	192
Annexe 4.....	194
Annexe 5.....	195
Table des abréviations	196
Publications et communications	197
Bibliographie.....	199

Introduction

Cela fait déjà presque 60 ans que le laser a révolutionné notre existence. Le LASER, acronyme venant de l'anglais « Light amplification by stimulated emission of radiation », est en effet présent dans énormément d'applications, de l'usage militaire (lidar-radar, brouillage optique) à grand public (lecteur de disque, imprimante) et civil (médical, télécommunications optiques), en passant par la recherche (spectroscopie, refroidissement) et l'industrie (soudure, découpage). C'est en 1960 que le premier laser est réalisé grâce à l'émission d'un cristal de rubis amplifiée par la cavité résonante [1]. A peine deux ans plus tard, le premier laser à semiconducteurs est réalisé. Dès lors, une recherche intensive sur ces dispositifs a été, et est toujours menée. En perpétuelle recherche de nouvelles applications et d'amélioration de celles déjà existantes, la communauté scientifique convoite un autre domaine de fréquence peu couvert par les technologies actuelles : le domaine TéraHertz, représenté à la Figure **I.1(a)**. En effet, la génération de fréquence dans ce domaine offre de nombreuses applications dans des secteurs très divers, comprenant la radioastronomie [2], la spectroscopie [3], la surveillance environnementale [4], la communication (télécom, sans-fil) [5], l'imagerie et la détection en médecine [6] et pour la sécurité [7], et bien d'autres. En dépit de cette multitude de possibilités, le domaine THz reste sous exploité : le développement de sources continues compactes, accordables sur une large plage spectrale et opérant à température ambiante reste un challenge technologique [2], [3] (Figure **I.1(b)**).

Une des possibilités pour atteindre ce domaine de fréquence en répondant à ces critères est le mélange hétérodyne de deux longueurs d'onde optiques proches dans un semiconducteur [8]. Lorsque deux faisceaux lasers de fréquence optique proche sont superposés sur un photodétecteur (antenne photoconductrice, photodiode rapide), leur battement excite les porteurs à la différence de fréquence optique. Pour obtenir un battement de grande pureté spectrale, les lasers bi-fréquences à état solide ont été développés. L'écart en fréquence des deux modes est intéressant puisqu'il permet de générer un battement haute fréquence, du GHz [9]–[11] au THz [12], [13], et potentiellement accordable.

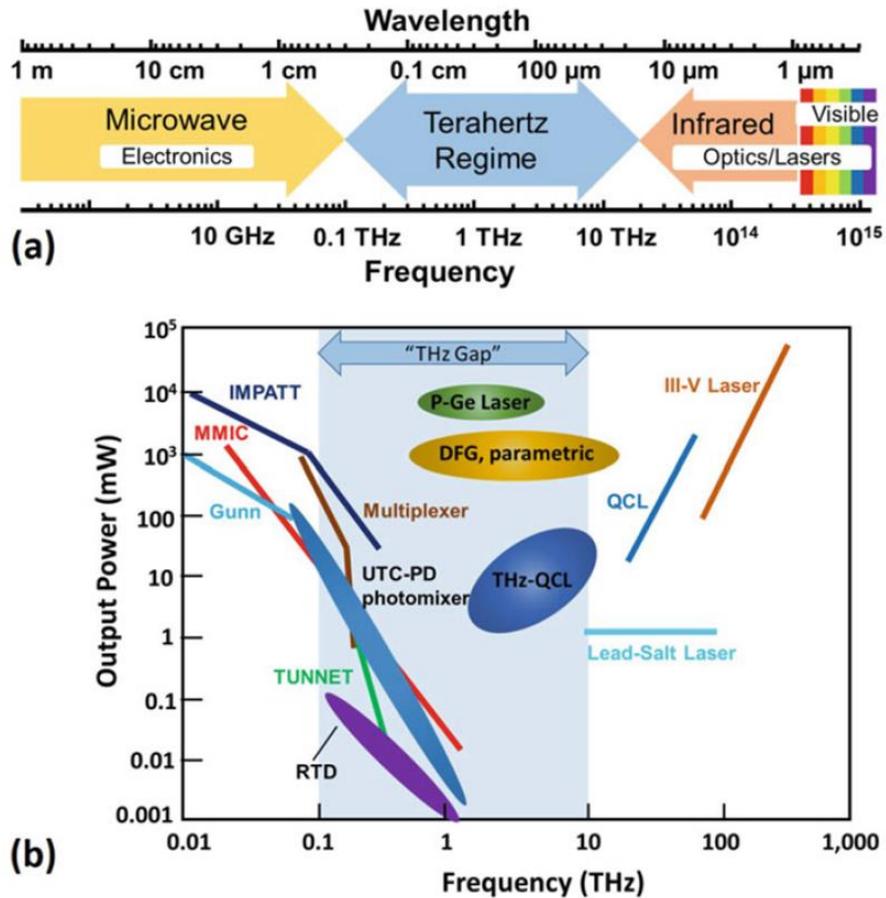


Figure 1.1 : (a) Spectre électromagnétique situant le domaine THz. (b) Illustration positionnant les différentes sources pour la génération de THz en matière de puissance et de fréquence d'émission. Nous y retrouvons notamment les sources électroniques (à gauche) non-accordables ; et les QCL, lasers à cascade quantique, fonctionnant majoritairement à basse température, complexes à produire et descendant difficilement en dessous de 2 THz. La figure est extraite de la référence [14], et réalisée à partir de la référence [15].

Cependant, ces lasers bi-fréquences à état solide souffrent de fluctuations d'intensité résonantes à la fréquence des oscillations de relaxation, dégradant la qualité spectrale du battement. L'intégration de matériaux semiconducteurs au sein d'une architecture de type VECSEL (Vertical-External-Cavity Surface-Emitting Laser), se caractérisant par une cavité externe centimétrique (et une émission verticale du milieu actif), donnant lieu à une dynamique de classe A [16], [17], i.e. sans les oscillations de relaxation, est alors privilégiée. De plus, cette architecture particulière permet de combiner les avantages des lasers à état solide de par sa cavité : possibilité d'insérer des éléments dans la cavité, forte puissance optique du faisceau ; et à semiconducteurs grâce à son milieu actif à puits quantiques (PQs) : injection électrique possible, compacité, réduction de la consommation énergétique.

Malgré ces avantages, les VECSEL bi-fréquences présentent un inconvénient majeur : le couplage trop important entre les deux modes, qui peut nuire à la stabilité ainsi qu'à la robustesse du régime.

En effet, si le couplage est trop fort, l'oscillation simultanée ne peut avoir lieu, et un des deux modes l'emporte sur l'autre. Afin de réduire ce couplage très fort dans les PQs, qui constituent un milieu très homogène, il est dans ce cas nécessaire de séparer spatialement les deux états propres de polarisation en deux modes de polarisations orthogonales sur le milieu actif [18], [19]. Mais cette approche implique des désavantages, notamment un montage plus complexe par l'insertion d'éléments dans la cavité et une réduction de la pureté spectrale du battement. De récents travaux ont montré qu'il était possible d'exploiter les caractéristiques uniques des boîtes quantiques (BQs), pouvant s'apparenter à un milieu inhomogène, pour réaliser des lasers bi-fréquences [20], [21]. Toutefois ces lasers bi-fréquences à BQs sont à émission par la tranche, et présentent une largeur de raie grande et des oscillations de relaxation. A ce jour, aucune démonstration d'un VECSEL bi-fréquence à BQs n'a été réalisée.

L'objectif est donc de réaliser un VECSEL à BQs bi-fréquence émettant autour de $1,5 \mu\text{m}$, robuste, pouvant présenter un écart en fréquence accordable jusqu'à quelques THz. Une attention toute particulière sera apportée afin de corrélérer propriétés structurales, propriétés optiques et robustesse de l'émission laser bi-fréquence.

Plan du manuscrit

Ce manuscrit est découpé en cinq chapitres, dont quatre retranscrivant les étapes nécessaires à la réalisation du dispositif :

Le Chapitre **1** présente le contexte général de ce travail de thèse et un état de l'art des lasers bi-fréquences ainsi qu'un bref rappel des propriétés des BQs.

Le Chapitre **2** est le point de départ de la conception du milieu actif du laser à nanostructures semiconductrices, et présente en particulier une optimisation de la croissance des BQs InAs/InP(311)B. Des caractérisations structurales par microscopie à force atomique et optiques par photoluminescence sont ainsi réalisées pour définir les conditions optimales pour la réalisation d'une oscillation laser bi-fréquence robuste.

Le Chapitre **3** est dédié à la caractérisation de l'élargissement homogène des BQs précédemment décrites. Pour ce faire, un montage expérimental de spectroscopie de saturation d'absorption, exploitant le phénomène de Spectral Hole Burning, a été réalisé, et sera intégralement décrit au début de ce chapitre. Un point tout particulier a été apporté au système expérimental afin de pouvoir décrire toute l'étendue spectrale liée à l'élargissement inhomogène des BQs en fonction de la

température, de 1100 nm à 1610 nm. Des structures intégrant (séparément) des puits quantiques, des bâtonnets quantiques et des boîtes quantiques ont ainsi été caractérisées, en fonction de la température, mais également en fonction de la densité de porteurs par l'intégration d'une pompe non-résonante. Ces mesures ont permis de mettre en évidence un transfert des porteurs moins important dans les BQs comparées aux autres structures testées, et de quantifier les variations de leur élargissement homogène.

Le Chapitre 4 est dédié à la description et à la caractérisation des VECSELS étudiés dans le cadre de cette thèse. Après avoir rappelé les éléments constitutifs d'une cavité VECSEL, un bref état de l'art des VECSELS sera présenté. Deux structures VECSELS sur InP intégrant un miroir de Bragg AlAs/GaAs par la technique de fusion de plaque (« wafer fusion ») [22], [23] ont été réalisées et caractérisées. La première consiste en une structure classique intégrant des PQs contraints. La seconde intègre les BQs préalablement décrites dans les chapitres 2 et 3, et constitue la première réalisation d'un VECSEL à BQs sur InP. Ces lasers seront caractérisés en configuration multimode, étape préalable et indispensable aux mesures permettant de tester et qualifier leur robustesse en régime bi-fréquence.

Enfin, Chapitre 5 marque l'arrivée vers le dispositif final, objectif ultime de ce travail de thèse, avec le test du comportement bi-fréquence des structures précédentes, ainsi que de la qualification de la robustesse de ce laser, dans la configuration où les deux modes sont superposés dans le milieu actif. D'abord, nous expliquerons comment quantifier le couplage entre les deux modes à travers la constante de couplage de Lamb [24], [25]. Ensuite nous présenterons le montage expérimental qui a été développé, en vue de mesurer cette constante de couplage. Les mesures sur le VECSEL à PQs seront ensuite présentées. Une émission bi-fréquence est démontrée, et la constante de Lamb est directement mesurée pour la première fois sur cette structure pour différents écarts spectraux entre les deux longueurs d'onde de polarisation croisée. Au moment de la rédaction de ce manuscrit, les mesures sur le VECSEL à BQs sont toujours en cours. Les résultats préliminaires seront donc commentés.

Chapitre 1

Contexte et état de l'art

1.1 Etat de l'art des lasers bi-fréquences	6
1.1.1 Génération de THz : avantages des lasers bi-fréquences	7
1.1.2 Les lasers bi-fréquences à état solide	8
1.1.3 Les lasers bi-fréquences à semiconducteurs	10
1.2 Rappel des propriétés des BQs	15
1.2.1 Le confinement quantique	15
1.2.2 Propriétés électroniques	16
1.2.3 Propriétés optiques	17
1.2.4 Les BQs et les lasers	20
1.3 Le couplage dans les lasers à boîtes quantiques	23
1.3.1 Couplage électronique	23
1.3.2 Couplage dans les lasers	25
1.4 Objectifs de la thèse	27

Un laser à semiconducteurs est constitué de deux éléments fondamentaux : la zone active, qui va initier le signal optique par l'émission spontanée de lumière et l'amplifier à l'aide du processus d'émission stimulée, et une cavité résonante optique, qui confine ce signal optique et force ses passages successifs dans la zone active favorisant ainsi l'émission stimulée et l'oscillation laser. Cette émission stimulée peut s'opérer sur différents modes optiques. La maîtrise de la croissance des semiconducteurs par des techniques d'épithaxie notamment a permis la réalisation d'hétérostructures [26] (association de différents matériaux semiconducteurs d'épaisseur nanométrique) qui permettent à la fois de confiner la lumière et le peuplement des niveaux électroniques participant à l'émission stimulée.

Les lasers commerciaux à base de puits quantiques contraints les plus communs émettent par la tranche (Edge Emitting Lasers - EEL), et présentent une émission laser multimodale avec des sauts de mode sur une gamme spectrale pouvant couvrir typiquement 3 nm pour une longueur d'onde

laser autour de $1,5 \mu\text{m}$. Leur émission reste en général toutefois stable en polarisation du fait des propriétés de la zone active qui présente une forte anisotropie de gain associée à la symétrie des états électroniques des transitions stimulées du laser. Le contrôle des modes d'émission des lasers bi-fréquences est essentiel pour assurer leur viabilité pour des usages qui requièrent une grande robustesse. La conception géométrique du laser et la nature des hétérostructures émettrices exigent une attention particulière. Le type particulier de laser à semiconducteurs que nous avons choisi pour la réalisation d'un laser bi-fréquence, objet de ce travail de thèse, repose sur un modèle très différent des lasers EEL classiquement utilisés et intégrant des puits quantiques : d'une part le milieu actif est constitué de boîtes quantiques InAs sur substrat InP orienté (311)B, et d'autre part l'émission laser est assurée dans une cavité verticale de type VECSEL (Vertical External Cavity Surface Emitting Laser). Nous expliquerons à travers ce premier chapitre les raisons de ces deux choix.

Nous présenterons dans ce chapitre un état de l'art général permettant de définir le contexte de cette étude : nous commencerons par les lasers bi-fréquences à état solide pour la génération de THz, puis le développement des lasers bi-fréquences à semiconducteurs. Nous aborderons ensuite les boîtes quantiques, notamment les BQs InAs/InP permettant d'avoir une émission à $1,55 \mu\text{m}$, en expliquant leurs propriétés électroniques et optiques qui présentent de nombreux avantages pour l'émission laser, et notamment l'émission bi-fréquence. En effet, sans entrer ici dans le détail, des études théoriques et expérimentales tendent à montrer que l'utilisation de ces nanostructures permettent de réduire le couplage existant entre les deux modes d'émission et donc d'accroître leur robustesse. Enfin, nous terminerons ce premier chapitre en décrivant les objectifs à atteindre pour la réalisation du VECSEL bi-fréquence à BQs InAs/InP(311)B, qui ont guidé les différents choix réalisés tout au long de ce travail de thèse.

1.1 Etat de l'art des lasers bi-fréquences

Parmi les motivations pour le développement de lasers bi-fréquence, la génération d'onde THz de haute pureté spectrale par photomélange hétérodyne (que nous décrirons par la suite) est sans doute une des plus porteuses. En effet les deux modes du laser bi-fréquence sont capables de produire un battement optique stable et potentiellement accordable du domaine micro-onde (GHz) [9]–[11] au domaine THz [12], [13].

1.1.1 Génération de THz : avantages des lasers bi-fréquences

Les lasers bi-fréquences sont des sources attrayantes pour la génération optique de radiation THz de haute pureté [12], offrant de nombreuses applications dans des secteurs très divers, comprenant la radioastronomie [2], la spectroscopie [3], la surveillance environnementale [4], la communication (télécom, sans-fil) [5], l'imagerie et la détection en médecine [6] et pour la sécurité [7], et bien d'autres.

En dépit de cette multitude de possibilités, le domaine THz reste sous exploité : le développement de sources continues compactes, accordables sur une large plage spectrale et opérant à température ambiante est un challenge technologique [2], [3]. Ainsi, différentes techniques pour générer une radiation THz continue ont été explorées, mais apportant chacune leur contrainte. L'une des premières a été l'utilisation de lasers à gaz, mais qui sont très encombrants et peu accordables. Cette accordabilité très limitée est également le défaut de la technologie électronique mature (doublage plusieurs étages, diodes Schottky, diodes tunnel résonnantes [27]–[29]). Depuis plusieurs années, une source prometteuse et compacte d'onde THz continue fait une percée remarquable : les lasers à cascade quantique [30]. Cependant, pour un fonctionnement efficace, ils requièrent un refroidissement cryogénique. Une alternative à ces lasers basse température est l'emploi de conversion de fréquence (différence de fréquence) intracavité dans des lasers à cascade quantique émettant dans le moyen-infrarouge à température ambiante [31]–[33]. La faiblesse de ces deux technologies pourtant hautement efficaces réside dans leur manque d'accordabilité spectrale et leur fabrication complexe. De plus, la fréquence émise par les dispositifs à température ambiante descend difficilement en dessous de 2 THz (soit 8,2 meV).

Le mélange hétérodyne de deux longueurs d'onde optiques proches dans un semiconducteur [8] permet de s'affranchir de ces problématiques et offre la génération d'une onde cohérente accordable du GHz au THz. En effet, lorsque deux faisceaux lasers de fréquence optique proche sont superposés sur un photodétecteur (antenne photoconductrice, photodiode rapide), leur battement excite les porteurs à la différence de fréquence optique. Pour cela, le photodétecteur doit être évidemment sensible à la longueur d'onde des deux modes, et la différence de fréquence doit être comprise dans sa bande passante. Lorsque deux sous-cavités (cavité en T) ou deux lasers indépendants sont utilisés, l'onde THz émise est souvent large spectralement se traduisant par un bruit de phase élevé. Ceci est principalement dû aux fluctuations de température et aux vibrations mécaniques de la longueur de cavité (vibration des miroirs), qui sont différentes pour les deux lasers ou sous-cavités. Ces fluctuations se répercutent sur la différence de fréquence et donc sur le

battement. Par conséquent, dans les applications où une grande pureté spectrale est requise, le mélange hétérodyne de deux modes lasers partageant la même cavité est préféré. En effet, ces deux modes oscillant simultanément sont sujets aux mêmes fluctuations mécaniques et thermiques : leurs bruits de phase sont alors corrélés, et leur battement possède alors une largeur spectrale plus faible. Pour étendre l'accordabilité au-delà de l'intervalle spectral libre du laser, les modes partageant la même cavité ne sont pas deux modes longitudinaux du laser bi-fréquence, mais deux modes de polarisations orthogonales spatialement séparés.

Etant donné les multiples possibilités d'applications dans le domaine THz, les lasers bi-fréquences ont suscité un engouement depuis plus d'une vingtaine d'années, et leur développement a commencé avec les lasers à état solide.

1.1.2 Les lasers bi-fréquences à état solide

Les premiers lasers compacts bi-fréquences étaient des lasers à état solide, à cristaux dopés (Er,Yb:Verre, Nd:YAG, Yb:KGW) dans lesquels un élément biréfringent intracavité était inséré. Ainsi, ces lasers bi-fréquences se caractérisent par l'émission de deux modes de fréquences différentes et dont les polarisations sont orthogonales entre elles. Cette technique pour l'obtention d'un battement THz a été démontrée en 1998 par *Alouini et al.* sur un laser Er,Yb :verre en insérant un cristal biréfringent de calcite dans la cavité [12]. La configuration de la cavité est présentée à la Figure 1.1.

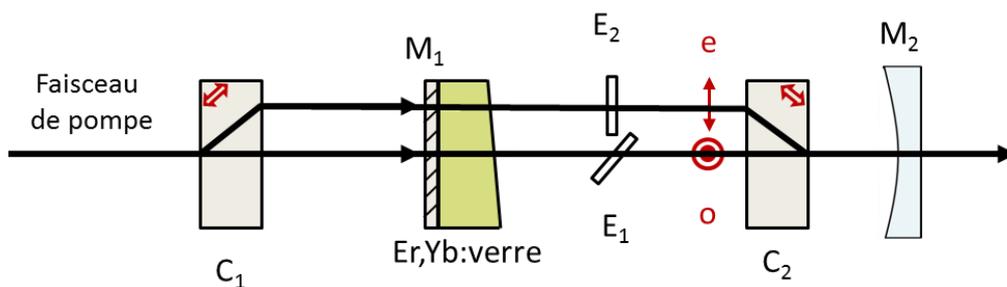


Figure 1.1: Montage utilisé pour la démonstration du laser bi-fréquence à état solide Er,Yb:verre de la référence [12]. C : cristal de calcite, M : miroir, E : étalon.

Ce cristal permet de séparer les deux polarisations (ordinaire et extraordinaire) spectralement mais aussi spatialement, en fonction de son axe de coupe et de son épaisseur. L'utilisation du cristal anisotrope entraîne le phénomène de double réfraction : à chaque faisceau incident correspond deux faisceaux réfractés de polarisation orthogonale et de directions différentes. La coupe du cristal biréfringent à 45° par rapport à son axe optique permet la séparation spatiale des deux polarisations. Les faisceaux peuvent ainsi être séparés soit sur le milieu actif (c'est le cas ici), soit sur le coupleur

de sortie, puis sont recombines lors de leur retour. La calcite (CaCO_3) et le vanadate d'yttrium (YVO_4) sont les deux cristaux anisotropes les plus couramment utilisés.

Dans la configuration de ce laser Er,Yb:verre, un second cristal de calcite également coupé à 45° par rapport à son axe est utilisé pour assurer un pompage uniforme et efficace dans le milieu à gain. Un étalon est placé sur chaque bras de polarisation pour le rendre monomode. De plus, l'étalon permet d'accorder chaque état propre de polarisation indépendamment de l'autre. Ce système a ainsi permis une large accordabilité, quasi-continue, du GHz au THz. Par la suite, de nombreuses améliorations de ce premier dispositif ont suivi, ce milieu actif étant attractif grâce à son gain large spectralement et à son émission autour de 1550 nm. Chronologiquement, il y a d'abord eu l'ajout d'un asservissement absolu de chaque mode [34] pour obtenir un battement plus fin, inférieur à 9 kHz, la mesure étant limitée par la résolution de l'équipement. Dans cette optique, un asservissement directement sur le battement a été mis en place, et des largeurs inférieures à 1 Hz ont été mesurées [35]. Enfin, toujours sur l'Er,Yb :verre, grâce à l'insertion de cristaux électro-optiques de LiTaO_3 sur chaque bras, en plus des étalons, l'accordabilité continue de l'écart de fréquence est assurée [36] ; l'accordabilité se faisant jusqu'alors par pas de quelques GHz (saut de mode).

D'autres lasers à état solide pour la génération de THz, avec un cristal différent mais dans des configurations de cavité similaires, avec séparation spatiale (ou aucune) sur le coupleur ou sur le milieu actif, sont à citer : le laser Yb:KGW émettant à 1030 nm et apportant une accordabilité importante, jusqu'à 3,1 THz [13], et le Ti :Sa [37] émettant à 780 nm et présentant une accordabilité de 1,5 THz. Quant au laser Nd :YAG, la largeur de gain faible ne permet pas d'obtenir un battement THz, mais plutôt de quelques GHz [9], et jusqu'à 150 GHz [38]. Une configuration différente de la cavité du laser, i.e. une double cavité ou un système de sous-cavité, a également permis de générer à partir d'un laser Nd :YLF un battement non-accordable à 1,64 THz [39], et de 0 à 9 THz à partir d'un laser Cr:LiCAF [40].

Ces lasers bi-fréquences à cristaux dopés pompés optiquement possèdent toutefois une accordabilité moins importante que les zones actives à base de semiconducteurs, qui de plus, peuvent bénéficier d'une injection électrique, augmentant la compacité et réduisant la consommation énergétique. Par ailleurs, en dépit de leur haute pureté spectrale, ces lasers présentent une dynamique de classe B qui les desserre : la présence d'oscillations de relaxation entraîne un bruit d'intensité non négligeable autour de leur fréquence dégradant la qualité spectrale du battement et limitant ainsi leur application pour la génération de signaux micro-ondes de haute pureté spectrale. Des solutions ont été proposées pour réduire cet effet de façon efficace, mais elles nécessitent l'insertion d'éléments

intracavité, par exemple un absorbant à deux photons [41] ou un cristal non-linéaire permettant l'absorption par génération de seconde harmonique [42]. Les principaux résultats sont regroupés dans le Tableau 1.1.

1.1.3 Les lasers bi-fréquences à semiconducteurs

1.1.3.1 Les lasers DFB à puits quantiques

Afin de profiter des avantages des semiconducteurs énoncés dans la partie précédente, les lasers bi-fréquences DFB (Distributed FeedBack laser - laser à rétroaction répartie) à puits quantiques ont été développés. Pour obtenir l'émission bi-fréquence, deux cavités (ou sections du laser) initialement indépendantes sont couplées. En plus de l'injection électrique, une grande accordabilité du battement peut être obtenue. En effet, pour la génération de THz, *Kim et al.* ont démontré un battement accordable de 0,10 à 0,57 THz, pour une émission bi-fréquence centrée à 1,55 μm [43], puis ont amélioré leur dispositif pour obtenir un battement de 0,26 à 1,07 THz [44]. Enfin, le remplacement d'une des sections DFB par une section DBR (augmentant l'accordabilité tout en préservant les caractéristiques spectrales) a permis une plus grande accordabilité du battement, de 0,48 à 2,36 THz, et dont la largeur de raie est de $\sim 2\text{-}3$ MHz [45]. Ces structures sont schématisées à la Figure 1.2.

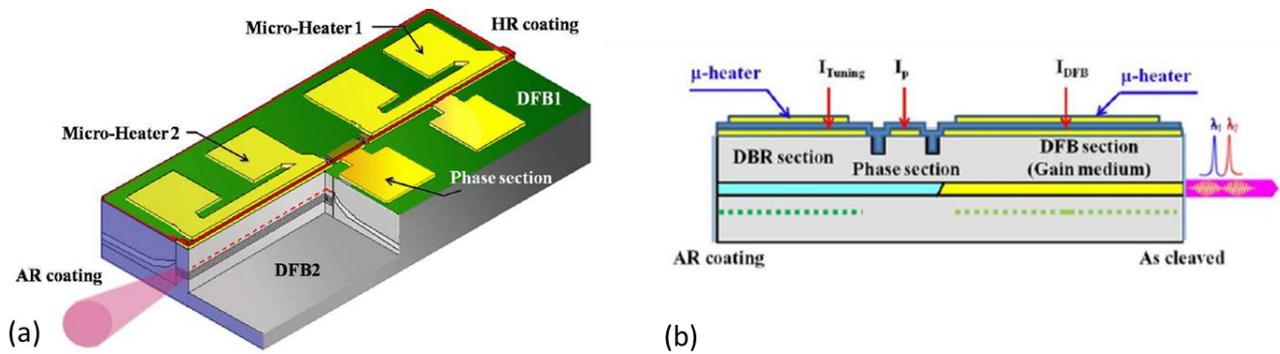


Figure 1.2 : (a) Schéma du laser DFB bi-fréquence, extrait de la référence [43]. (b) Schéma du laser bi-fréquence couplant une section DBR et une section DFB, extrait de la référence [45].

Néanmoins, tout comme les lasers à état solide précédemment cités, ces lasers présentent une dynamique de classe B, et donc un bruit d'intensité non négligeable. Passer à une architecture VECSEL permettrait de réduire le bruit grâce à la dynamique de classe A du laser. De plus, cette architecture permettrait d'avoir une plus faible largeur de raie que les lasers DFB. Ces avantages font du VECSEL l'architecture idéale (toutefois modérée par un couplage fort entre les deux modes) pour l'émission bi-fréquence et la génération d'un battement THz. A partir de ce constat,

l'utilisation de VECSELS bi-fréquences pour la réalisation de battement micro-ondes et THz a commencé à émerger.

1.1.3.2 Les VECSELS à puits quantiques

En partant du même principe que ces lasers à état solide bipolarisés, le premier VECSEL bi-fréquence présentant une dynamique de classe A (sans oscillation de relaxation, explications dans le Chapitre 4) est démontré par *Baili et al.* en 2009 [18]. La configuration particulière de la cavité est schématisée à la Figure 1.3. L'objectif de cette première démonstration était de générer un signal de battement hyperfréquence (quelques GHz) sur porteuse optique, pour le déport d'oscillateurs locaux de grande pureté spectrale et les signaux radars large bande. Ce VECSEL présente comme zone active des puits quantiques (PQs) InGaAs/GaAs, assurant une émission centrée à 1 μm . Afin d'obtenir une oscillation bi-fréquence robuste, les deux états propres de polarisation ne sont pas parfaitement superposés sur la puce : une séparation spatiale de 100 μm entre le centre des deux modes est réalisée avec le cristal biréfringent d' YVO_4 , qui entraîne également un écart spectral.

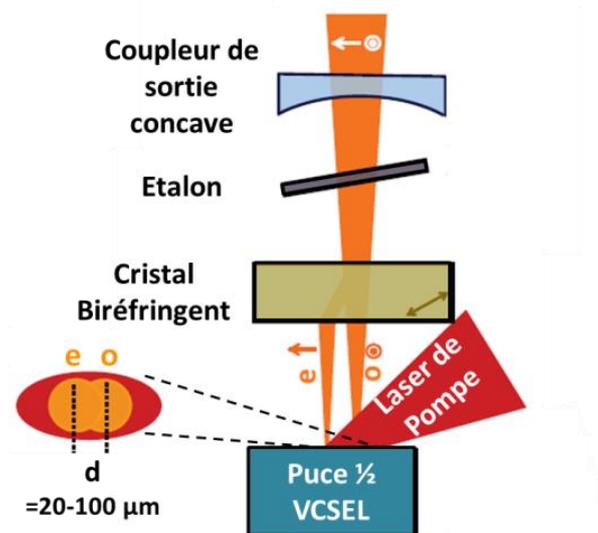


Figure 1.3 : Configuration de la cavité linéaire pour un VECSEL bi-fréquence à PQs : les deux modes (« o » pour ordinaire et « e » pour extraordinaire) sont partiellement ou totalement séparés sur le milieu actif.

En effet contrairement à la plupart des lasers précédents à état solide (excepté par exemple le laser schématisé à la Figure 1.1), dans les VECSELS à PQs, la contribution homogène du gain est élevée. Ainsi, la compétition de gain dans ce milieu actif semiconducteur ne permet pas un fonctionnement bi-fréquence robuste. Le laser finit par ne sélectionner qu'un seul mode optique avec un état de polarisation donné. L'émission laser se stabilise alors dans la direction de polarisation où le gain est le plus important et les pertes les plus faibles. Communément, dans les dispositifs VECSELS, afin

de résoudre ce problème, une séparation spatiale (totale ou partielle) des deux modes dans le milieu actif est effectuée. Ainsi la compétition de mode est réduite car chaque polarisation interagit en grande partie avec son propre réservoir d'inversion de population. Le couplage effectif entre les deux modes est alors inférieur au couplage réel (i. e. le couplage entre les deux modes sans séparation spatiale sur la puce). Cela implique que le spot de pompage soit suffisamment large pour exciter les deux modes à la fois, ou bien qu'il y ait deux spots de pompage (voir Figure 1.1). Un étalon (ou deux, un sur chaque bras de la cavité) est également inséré pour assurer le fonctionnement monomode sur les deux polarisations.

Toujours sur le même principe, en 2012 *Camargo et al.* ont démonté un VECSEL bi-fréquence à base de PQs AlGaAs/GaAs [46] émettant à 850 nm. Ce dispositif doit servir de source pour le piégeage cohérent d'atomes de Césium pour les horloges atomiques. Dans la lignée, en 2014 *De et al.* ont démontré un VECSEL bi-fréquence pompé optiquement émettant à 1,55 μm , avec des PQs InGaAlAs/InP [47]. De nombreuses applications différentes et plus spécifiques découlant de ce principe à partir des VECSELS bi-fréquences bipolarisés sont apparues, par exemple pour la métrologie [48] et pour les capteurs à fibre optique à base de l'effet Brillouin [49].

Ces précédents VECSELS ne permettent pas d'obtenir un battement THz. Cependant, des études récentes sur des VECSELS oscillant sur deux modes transverses Laguerre-Gauss d'ordre supérieur ont permis de démontrer un battement THz, et accordable de quelques dizaines de GHz à quelques THz [50], [51]. La configuration de ces VECSELS exploite le recouvrement partiel entre deux modes transverses, l'un à l'ordre 0 et l'autre à l'ordre 2 ou 3, pour diminuer leur compétition pour le gain. Une autre étude récente rapporte la génération d'une onde de 1,9 THz par différence de fréquence intracavité, et dont la stabilisation de l'émission bi-fréquence se fait par une configuration complexe de la cavité VECSEL [52].

Nous avons résumé dans le Tableau 1.1 les avancées significatives des lasers bi-fréquences, facilitant la comparaison détaillée des différents lasers présentés dans cette première partie. Des architectures autres que la cavité linéaire plan-concave existent. Le fonctionnement bi-fréquence peut être obtenu avec une configuration de cavité en T, formée en réalité par deux cavités VECSELS possédant une section commune. Cette configuration permet une grande accordabilité et une forte puissance de sortie [53]. Cependant, son défaut majeur est que les deux modes ne partagent pas la même cavité, ils ne sont donc pas exposés aux mêmes fluctuations.

1.1 Etat de l'art des lasers bi-fréquences

Références	Architecture laser et zone active	Cavité	λ (nm)	Puissance de sortie moyenne en régime bi- λ	Ecart de fréquence	Asservissement ?	Largeur du battement	Dynamique
[12] (Alouini 1998)	Etat solide Er,Yb: verre	bi-axiale	1550	~7mW	Jusqu'à 2,7 THz	non	<10 kHz	Classe B
[34] (Alouini 2000)	Etat solide Er,Yb: verre	bi-axiale	1550	8 mW	non	oui	<9 kHz	Classe B
[13] (Czarny 2004)	Etat solide Yb:KGW	bi-axiale	1030	120 mW	Jusqu'à 3,1 THz	non	<30 kHz	Classe B
[35] (Rolland 2011)	Etat solide Er,Yb: verre	bi-axiale	1550	2 mW	Jusqu'à 2 THz	oui	<1 Hz	Classe B
[36] (Danion 2014)	Etat solide Er,Yb: verre	bi-axiale	1550	<10 mW	En continu Jusqu'à 0,9 THz	non	30 kHz à 12,5 GHz	Classe B
[37] (Loas 2014)	Etat solide Ti :Sa	bi-axiale	780	50 mW	Jusqu'à 1,5 THz	non	<30 kHz	Classe B
[54] (Van Dijk 2011)	Semiconducteur DFB BatQ	Deux cavités couplées	1550	/	3 - 20 GHz	non	< 1 MHz	Classe B
[45] (Kim 2012)	Semiconducteur DFB + DBR PQ	Deux lasers différents couplés	1550	15 mW	0,48 - 2,36 THz	non	≈ 2-3 MHz à 0,5 THz	Classe B
[18] (Baili 2009)	Semiconducteur VECSEL PQ InGaAs/GaAs	bi-axiale	1000	/	0,05 - 8 GHz	non	4 kHz	Classe A
[46] (Camargo 2012)	Semiconducteur VECSEL PQ /GaAs	bi-axiale	852	19 mW	~ GHz	non	150 kHz	Classe A
[47] (De 2014)	Semiconducteur VECSEL PQ InGaAlAs/InP	bi-axiale	1550	100 mW	2,6 et 4,3 GHz	non	<10 kHz	Classe A
[50] (Paquet 2016)	Semiconducteur VECSEL PQ InGaAs/GaAsP	uni-axiale mais modes transverses	1000	80 mW	30 GHz - 3 THz	non	<300 kHz	Classe A
[55] (Jiao 2012)	Semiconducteur Laser à émission par la tranche à blocage de mode BQ InAs/InP	bi-axiale	1550	/	1 - 2,2 THz	non	/	Classe B
[56] (Hurtado 2013)	Semiconducteur DFB BQ InAs/InGaAs	Deux lasers différents	1310	0,1-1 mW	0,7 THz	non	/	Classe B
[20] (Akhane 2013)	Semiconducteur Laser à émission par la tranche BQ InAs/GaAs	uni-axiale	1240	1,7 μ W	98,8 GHz	non	/	Classe B
[21] (Fedorova 2017)	Semiconducteur Laser à émission par la tranche BQ InAs/GaAs	bi-axiale	1230	280 – 45 mW Respectivement pour l'écart de fréquence suivant	0,277 - 30 THz	non	/	Classe B

Tableau 1.1 : Principaux résultats significatifs en matière de lasers bi-fréquences. L'accordabilité, si aucune précision n'est apportée, se fait par pas (car saut de mode). L'asservissement, s'il est présent, est indiqué afin de comparer la largeur du battement dans des conditions expérimentales similaires.

Ainsi, la configuration de la cavité linéaire paraît le meilleur compromis entre simplicité et efficacité pour la génération d'un battement très pur spectralement. Cependant, la séparation spatiale des deux modes propres sur le milieu actif imposée par l'utilisation de puits quantique dans une architecture VECSEL dégrade la qualité spectrale du battement. De plus, cette séparation spatiale entraîne d'autres inconvénients : elle nécessite une architecture plus complexe par l'insertion des éléments intracavité, générant de surcroît des pertes sur le signal et ne permettant ni une forte accordabilité jusqu'au THz, ni la mise en place du pompage électrique par les technologies actuelles. Afin de réduire ce couplage, comme nous l'avons vu, plusieurs solutions existent : diminuer le recouvrement spatial des deux modes propres ou profiter de l'inhomogénéité de gain du milieu actif [9], [12], [38], [57]. Pour éviter la séparation spatiale et ses contraintes, nous nous penchons ainsi sur l'emploi de nanostructures semiconductrices pouvant s'apparenter à un milieu inhomogène pour remplacer les puits quantiques dans le milieu actif : les boîtes quantiques.

1.1.3.3 Les lasers à émission par la tranche bi-fréquences à base de boîtes quantiques

L'émission bi-fréquence a déjà été démontrée dans des dispositifs ayant pour zone active des boîtes quantiques (BQs) [20], [21], [55], [56], mais uniquement pour une architecture laser à émission par la tranche. Les deux modes oscillent ici sur la même polarisation. Parmi les démonstrations les plus significatives, nous pouvons citer *Hurtado et al.* pour un laser DFB bi-fréquence émettant à 1310 nm [56]. *Akahane et al.* [20] ont quant à eux démontré une émission bi-fréquence uni-axiale centrée à 1240 nm. *Jiao et al.* [55] ont rapporté une émission bi-fréquence centrée à 1550 nm grâce à l'utilisation de BQs InAs/InP, avec une forte accordabilité de l'écart de fréquence : de 1 à 2,2 THz. Néanmoins, la récente démonstration de *Fedorova et al.* [21] est celle la plus large accordabilité de l'écart de fréquence : de 0,277 à 30 THz pour une émission centrée à 1230 nm et pour des puissances de sortie de 45 à 280 mW.

Ces exemples notables sont présentés plus en détails dans le Tableau 1.1 avec les autres lasers bi-fréquences significatifs pour faciliter la comparaison. Nous voyons que les lasers bi-fréquences à base de BQs ne sont pas encore au niveau de la technologie bien plus mature des lasers à état solide, excepté en ce qui concerne l'accordabilité exceptionnelle du battement que proposent les zones actives à BQs. Néanmoins, ces démonstrations prouvent le grand potentiel des BQs pour un fonctionnement bi-fréquence dans une cavité uni-axiale, et pour une accordabilité quasi-continue de la différence de fréquence entre les deux modes sur une grande plage spectrale, de la centaine de GHz à 30 THz. Les lasers bi-fréquences à BQs sont ainsi très prometteurs, mais ils présentent une cavité courte, et donc une dynamique de classe B entraînant du bruit d'intensité à la fréquence des

oscillations de relaxation, se répercutant sur la pureté spectrale du battement (« pics satellites » visibles sur le spectre de battement, exemple pour un laser à état solide de classe B dans la référence [10]). L'intégration des BQs dans une architecture VECSEL pourrait résoudre ce problème.

1.2 Rappel des propriétés des BQs

Nous avons vu le potentiel des BQs pour les applications bi-fréquences. Dans cette partie, nous présenterons les propriétés générales de ces nanostructures.

1.2.1 Le confinement quantique

Lorsque l'une des 3 dimensions devient plus petite que la longueur d'onde de De Broglie associée à l'électron, on obtient le confinement quantique des porteurs dans cette direction. Ceci implique une discrétisation des niveaux d'énergie et modifie ainsi la densité d'état, qui quantifie les états électroniques disponibles pour une énergie donnée. Cette fonction de l'énergie dépend donc de la dimensionnalité du système [58]. Le principe du confinement est illustré par la Figure 1.4.

Dans un semi-conducteur massif, les porteurs sont libres de se déplacer dans les trois directions, il n'y a donc pas de confinement et la densité d'état en fonction de l'énergie est de forme parabolique. Lorsqu'une des dimensions est réduite à la longueur d'onde de De Broglie comme dans les puits quantiques, les niveaux d'énergie suivant cette direction deviennent discrets. La densité d'état prend alors une forme dite en *marches d'escaliers*. Si le mouvement des porteurs est restreint dans deux directions orthogonales, on obtient des fils quantiques. La densité d'état devient une fonction en *dents de scie* pour un matériau dont l'énergie est quantifiée selon les deux directions de confinement.

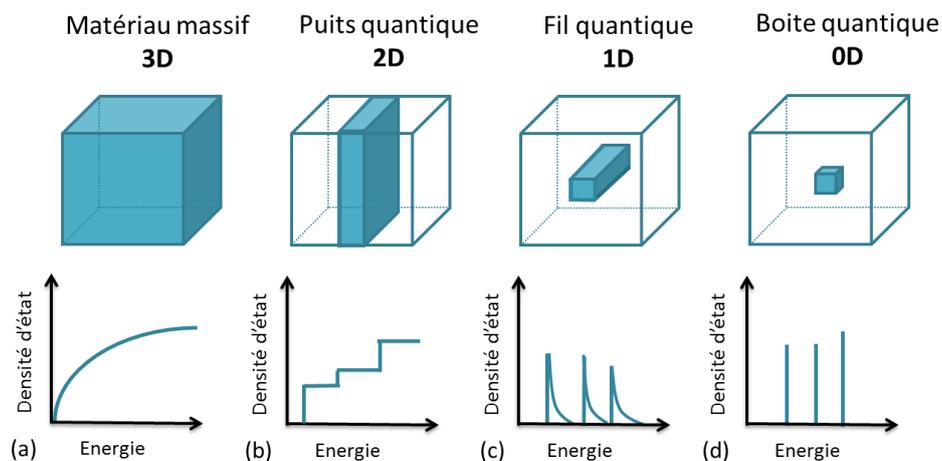


Figure 1.4 : Représentation schématique de l'effet de confinement des porteurs par la réduction de la dimensionnalité sur la densité d'état (dans la/les directions), pour : (a) un matériau massif (3D), (b) un puits quantique (2D), (c) un fil quantique (1D) et (d) une boîte quantique (0D).

Finalement lorsque le confinement est tridimensionnel (matériau 0D), la discrétisation des niveaux d'énergie est complète, et la densité d'état est une somme de fonctions de Dirac. On a alors des boîtes quantiques, apparentés à des « atomes artificiels », car la discrétisation de leurs états d'énergie électronique est équivalente à celle d'un atome [59], [60]. Toutefois, cette analogie a ses limites, car les BQs sont des nanostructures composées de quelques milliers d'atomes, et elles sont également couplées avec leur environnement cristallin, induisant des propriétés différentes comme nous le verrons par la suite. Cet effet de confinement quantique modifie les propriétés électroniques de la structure. Ainsi, les boîtes quantiques contribuent à l'amélioration des propriétés actuelles de certains dispositifs en optoélectronique et en photonique, et ouvrent également la voie à de nouvelles applications très prometteuses.

1.2.2 Propriétés électroniques

Afin de réaliser concrètement le confinement quantique, on peut utiliser des hétérostructures semi-conductrices. Une hétérostructure est formée par la juxtaposition d'au moins deux matériaux semi-conducteurs, souvent d'énergie de bande interdite différente. Pour réaliser une hétérostructure émettrice de lumière, on utilise en général un matériau de bande interdite (ou gap) plus petite et de faible dimension inclus dans une matrice formée par le matériau de plus grande énergie, formant ainsi un puits de potentiel qui piège les porteurs (électrons et trous) [61].

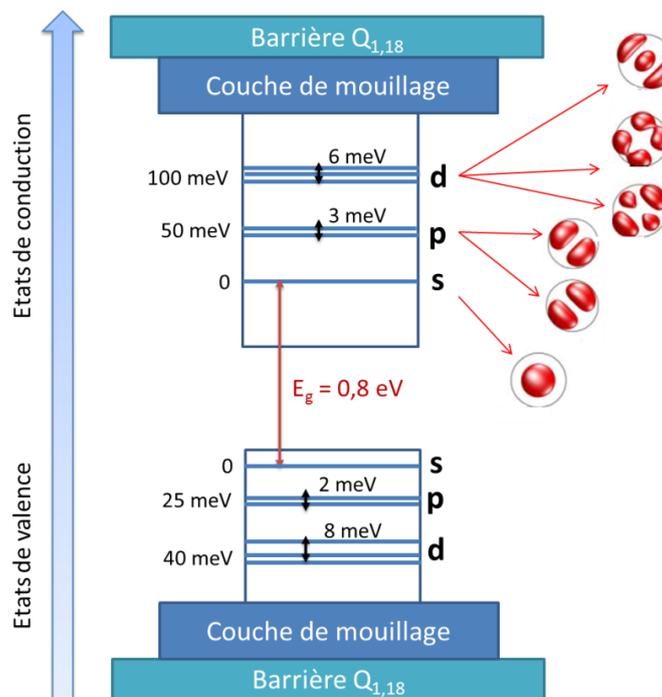


Figure 1.5 : Diagramme de bande schématisé d'une BQ InAs/InP de bande interdite directe Eg. Les valeurs de l'énergie et les modules carrés de la fonction enveloppe pour les états s p et d sont tirés de la référence [62].

Compte tenu du confinement quantique dans les trois directions de l'espace, les niveaux d'énergie des électrons et des trous d'une boîte quantique sont entièrement discrétisés. De plus, par opposition aux puits quantiques, le confinement plus fort (ainsi que la contrainte) lève la dégénérescence de la bande de valence et mène à des états de trous lourds (HH – heavy hole) qui sont énergétiquement bien au-dessus des états de trous légers (LH – light hole) [63]. Nous avons représenté à la Figure 1.5 le diagramme de bande d'une BQ encapsulée dans la couche barrière.

La structure complète se compose de la couche barrière d'encapsulation, d'une fine couche (2D) appelée couche de mouillage et de la boîte quantique. Les états de conduction de ce système sont donc constitués de deux continuums d'énergie et des états discrets des BQs. Nous avons également représenté à la Figure 1.5 les densités d'états de valence et de conduction de la BQ pour trois niveaux d'énergie pour les électrons et les trous. Les écartements entre niveaux et leur nombre accessible dépendent de la taille de la nanostructure : pour une plus petite boîte, l'espacement est plus grand. L'analogie entre la boîte et l'atome se retrouve dans la discrétisation du spectre d'énergie et notamment dans le nom donné à ses niveaux, correspondant aux orbitales atomiques. Ainsi l'état fondamental est l'état noté s , et les premiers états excités sont notés p , contenant dans cet exemple deux états distincts et d , en contenant 3.

Sous une source d'excitation optique, les semiconducteurs à gap direct vont absorber une partie de cette énergie : les électrons passent dans la bande de conduction. Cette énergie sera ensuite évacuée soit de manière radiative par émission d'un photon d'énergie de l'ordre de la bande interdite soit non-radiative, thermiquement par exemple. Le nombre et la position des niveaux d'énergie confinés dans les boîtes dépendent évidemment du choix des matériaux, mais également de la géométrie, de l'état de contraintes et de la taille de la nanostructure : de manière simple, plus la boîte est petite, plus le confinement est fort, plus la bande interdite est grande et plus les niveaux sont séparés.

1.2.3 Propriétés optiques

1.2.3.1 Longueur d'onde d'émission

La longueur d'onde d'émission des BQs est directement reliée à leur taille. En effet, si nous nous référons au modèle simplifié d'une particule dans une boîte dans le cas tridimensionnel, c'est-à-dire pour des barrières de potentiel infinies, sans tenir compte du tenseur de déformation ni de l'environnement de la BQ, en prenant des masses effectives symétriques, nous obtenons l'équation ci-dessous donnant la tendance de l'énergie en fonction des dimensions de la nanostructure :

$$E_{n_x, n_y, n_z} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m} \left[\left(\frac{n_x}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{n_y}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{n_z}{L_z} \right)^2 \right] \quad (1.1)$$

avec \hbar la constante de Planck réduite, m la masse de la particule, n_i un nombre entier positif non nul et L_i la taille de la dimension suivant i .

L'énergie est donc inversement proportionnelle au carré des dimensions. Plus les boîtes sont petites, plus leur énergie est grande et donc la longueur d'onde d'émission est petite. La hauteur des BQs étant souvent bien plus petite que leur diamètre (BQ en forme de lentille), c'est cette dimension qui détermine majoritairement l'énergie de confinement donc leur longueur d'onde d'émission.

1.2.3.2 Elargissement homogène

La largeur homogène de la transition électronique, notée γ , correspond à la largeur à mi-hauteur de l'émission d'un ensemble de nanostructures ou d'une structure homogène, comme un puits quantique unique et parfait (sans variation d'épaisseur) ou des BQs totalement identiques. La largeur homogène est très souvent mesurée par diverses méthodes de spectroscopie, car elle est liée au temps de décohérence/déphasage T_2 par la relation (1.2) :

$$T_2 = 2\hbar/\gamma \quad (1.2)$$

Cette largeur est dépendante de plusieurs facteurs : on assiste à un élargissement homogène en fonction de la température, de l'intensité du pompage et de la fluctuation de l'environnement (diffusion spectrale). L'élargissement est essentiellement dû au couplage entre les porteurs et les modes de vibration du réseau cristallin environnant (phonons) à faible densité de porteurs [64]–[66], alors qu'à forte densité de porteurs, le processus dominant est l'effet Auger [67]. Pour l'émission d'une boîte quantique comme le montre la Figure 1.6(a) et (b), la largeur homogène, de seulement quelques μeV à 2 K, subit une réelle augmentation à partir de 60 K et passe à plusieurs meV à température ambiante [66], [68]. Sur la Figure 1.6(b), l'évolution de la largeur homogène calculée pour un puits quantique InGaAs/GaAs en fonction de la température est indiquée par la courbe en trait plein. Nous remarquons que pour le même matériau grâce au confinement, la largeur homogène est bien plus faible, d'au moins un ordre de grandeur, à basse température. Cependant, cet écart tend à diminuer à partir de 200 K ; et à température ambiante les largeurs homogènes convergent vers des valeurs plus similaires, bien que dans ces résultats il existe une différence de 2 meV en faveur des BQs. En effet, au-delà de 200 K, de plus en plus de voies de dispersion par phonon s'ouvrent (absorption d'un phonon et processus impliquant plusieurs phonons), créant de nouvelles transitions d'énergie différente, ce qui élargit grandement le pic excitonique.

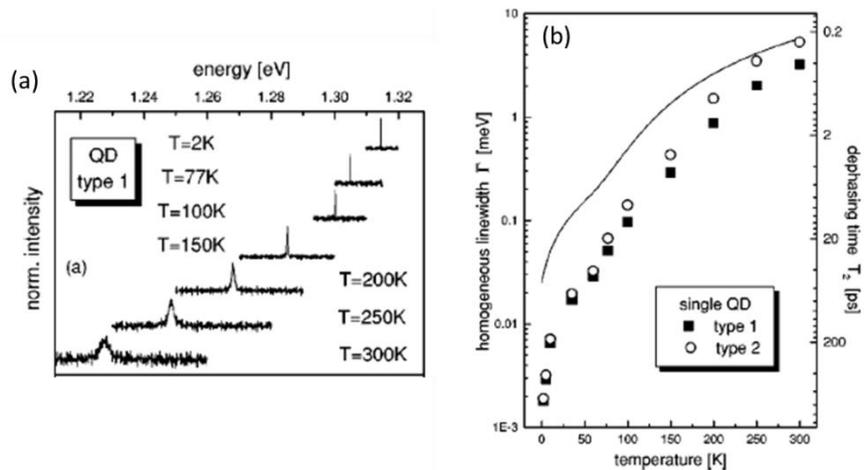


Figure 1.6 : (a) Spectres de PL d'une BQ InGaAs/GaAs unique à différentes températures : de 2 K à 300 K. (b) Evolution de la largeur à mi-hauteur du signal de PL en fonction de la température pour deux BQs différentes (carrés ou ronds) et pour un PQ (ligne continue). Les figures proviennent de la référence [66].

Dans le cas des BQs, il est nécessaire de distinguer l'émission de boîte unique, expliqué ici, et de l'ensemble de la population, que nous expliquerons dans la partie suivante.

1.2.3.3 Elargissement inhomogène

Dans la réalité, on a toujours une distribution de la taille des BQs. De manière générale, la taille des boîtes suit une distribution Gaussienne. Le spectre d'émission obtenu de l'ensemble des BQs sera une gaussienne large et qualifiée d'inhomogène, regroupant en fait l'émission spectrale plus fine de chacune des boîtes. Comme le montre la Figure 1.7, le spectre d'émission des boîtes quantiques est inhomogène, superposant l'émission homogène de chaque boîte de même dimension [69].

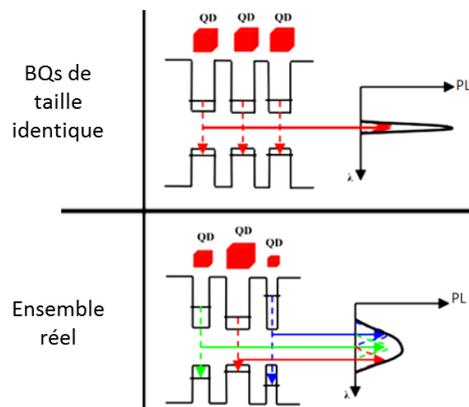


Figure 1.7 : Illustration de la structure de bande énergétique simplifiée (seul l'état fondamental est représenté) et de la photoluminescence de BQs de même taille (spectre d'émission homogène) et d'un ensemble réel, avec des BQs de tailles différentes (spectre d'émission inhomogène) [70].

A basse température, la largeur à mi-hauteur du pic de PL est généralement de l'ordre de quelques dizaines de meV pour un ensemble de BQs ; elle peut descendre à 16,5 meV à 7K pour des BQs InAs/GaAs [71] et à 17 meV à 10 K pour des BQs InAs/InP(100) [72], contre quelques μeV pour une seule boîte. La largeur à mi-hauteur renseigne alors sur la dispersion des BQs.

1.2.4 Les BQs et les lasers

1.2.4.1 Avantages des BQs

La boîte quantique est un système largement étudié, aussi bien théoriquement [73], [74] qu'expérimentalement [75]. De l'optoélectronique à la cryptographie quantique, ses caractéristiques en font une nanostructure de choix pour de nombreuses applications, telles que les sources de photons uniques [76], [77], les photodétecteurs infrarouges [78] et les lasers. C'est d'ailleurs cette dernière application qui nous intéresse. Pour rappel, les lasers à semi-conducteurs fonctionnent par émission stimulée de la zone active, où l'inversion de population peut être réalisée soit par pompage optique (laser de pompe), soit par pompage électrique (courant). Comparées aux autres hétérostructures telles que les puits et les fils, les boîtes quantiques ont en principe plusieurs avantages :

- *Une densité de courant (ou de puissance dans le cas du pompage optique) de seuil laser J_{th} (A/cm^2) plus basse.*

Cette densité est liée au nombre de porteurs nécessaire à l'inversion de population, qui est plus faible grâce à la discrétisation des niveaux d'énergie [79], [80] comme nous l'avons montré précédemment à la Figure 1.5. En effet, l'inversion de population est atteinte avec seulement deux électrons sur l'état excité pour une boîte quantique. Concrètement, des seuils laser de 5 à 10 A/cm^2 par plan de BQs (sur substrat GaAs, densités de BQs de 1,4 à 4 10^{10} cm^{-2}) ont été obtenus [81]–[84], alors qu'ils sont plutôt de l'ordre de 100 A/cm^2 (avec un record à un peu moins de 50 A/cm^2 [85]) par puits quantiques [86].

- *Une plus grande stabilité du gain et du seuil en température.*

En effet, la différence entre les niveaux énergétiques est supérieure à l'énergie d'agitation thermique. Le seuil laser en fonction de la température est défini de façon empirique comme ceci :

$$J_{th}(T) = J_{th}(0)e^{\frac{T}{T_0}} \quad (1.3)$$

avec $J_{th}(0)$ la densité de courant au seuil laser à $T = 0\text{K}$, et T_0 la température caractéristique.

Arakawa *et al.* [58] ont comparé la sensibilité théorique du seuil laser par rapport à la température en fonction de différents types de zones actives : il en ressort un $T_0 = \infty$ pour les BQs et un $T_0 < 500$ K pour les structures de plus haute dimensionnalité. Avec un T_0 infini, les BQs présentent une insensibilité théorique du seuil laser à la température. Expérimentalement, les résultats sur les lasers à BQs InAs/GaAs et InAs/InP ont permis de montrer une relative indépendance du courant de seuil avec la température (T_0 infini) jusqu'à température ambiante. Au-delà d'une température de 300 K, T_0 se dégrade. Cependant, les valeurs de T_0 restent malgré tout très élevées, pouvant atteindre 200 à 300 K à une température de 400 K. Récemment, un laser à BQs InAs/InP(311)B émettant à 1,55 μm a démontré un $T_0 > 2156$ K sur la gamme de température 303-333 K [87].

- *Un gain optique plus élevé pour une même densité de porteurs et spectralement plus large.*

La densité d'état est sous forme de pics de Dirac, ce qui concentre les porteurs sur des gammes d'énergie plus étroites. Dans une vision idéaliste, en prenant le système GaInAs/InP, Asada *et al.* [88] ont calculé le gain spectral pour différents types de zone active. Ils ont ainsi montré que la valeur du gain augmente avec la réduction de la dimensionnalité de la zone active pour une même densité de porteurs (résultat valable uniquement à faible densité). En pratique, les BQs présentent une forte dispersion en taille (distribution inhomogène) et le volume utile d'un plan de BQs est plus petit qu'un puits quantique, d'où un gain plus faible et plus étalé spectralement. Cette inhomogénéité peut tout de même devenir un avantage lorsqu'une grande accordabilité du laser est requise. Par exemple, l'émission de diodes lasers en cavité externe à BQs InAs/GaAs a été démontrée sur 201 nm (1033 à 1234 nm) [89], et plus récemment sur 202 nm (1122,5 à 1324,5 nm), présentant en plus une forte puissance de sortie, au maximum de 480 mW [90].

- *Un couplage potentiellement moins fort entre les modes longitudinaux.*

Expérimentalement, l'étude de cet effet a été réalisée par Sugawara *et al.*, sur un laser à BQs InGaAs/GaAs, recouvrant 20% de la surface par plan [91]. Les spectres d'émission obtenus pour différents courants et températures sont présentés à la Figure 1.8. A basse température (80 K), peu importe le courant injecté, les spectres sont toujours multimodes. En effet, la largeur homogène est très faible voir négligeable, les BQs d'énergie différente, qui sont de plus isolées spatialement, ne sont pas corrélées. Par conséquent, toutes les BQs ayant un gain optique au-dessus du seuil participent à l'émission laser indépendamment les unes des autres. Lorsque la température augmente à 160 K, le spectre est toujours multimode, mais les modes oscillant sont plus espacés. A température ambiante, l'émission présente un pic principal, sauf à forte intensité de pompage où

quelques pics espacés oscillent simultanément. Ainsi, la largeur homogène qui devient suffisamment importante à partir de 160 K, entraîne un couplage photonique entre les modes qui se recouvrent spectralement et donc une compétition pour le gain : uniquement quelques modes (ou un seul) voient assez de gain pour osciller. *Grundmann* a d'ailleurs démontré avec un modèle théorique [92] que lorsque la largeur inhomogène est beaucoup plus grande que la largeur homogène (ce qui est souvent le cas), les boîtes quantiques participent à l'effet laser indépendamment les unes des autres. Nous définissons ainsi la notion de couplage photonique résultant de la largeur homogène des BQs, pouvant influencer les modes lasers dès lors que leur séparation spectrale devient proche ou inférieure à la largeur homogène.

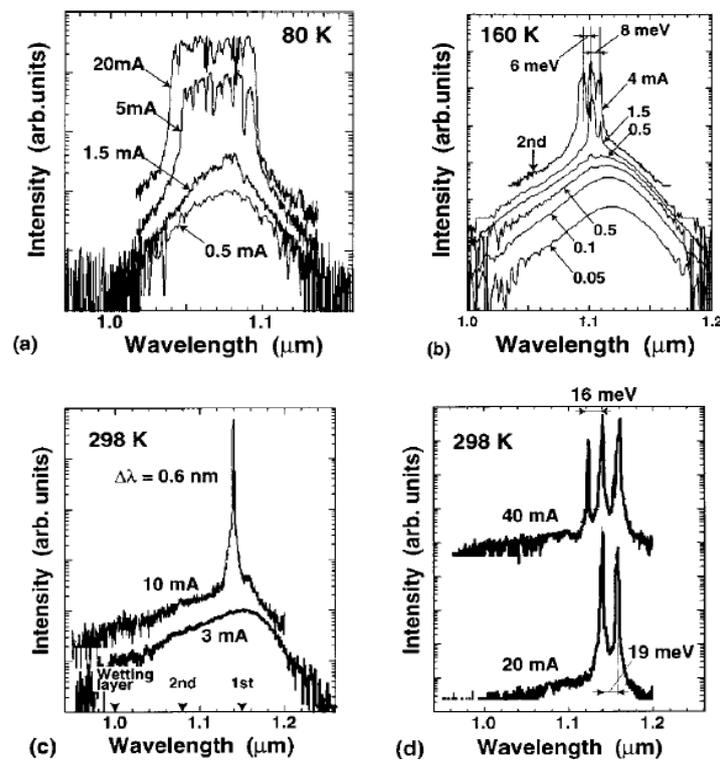


Figure 1.8 : Démonstration du caractère inhomogène des BQs avec l'émission laser à (a) 80 K, (b) 160 K et (c) et (d) 298 K [91].

1.2.4.2 Les lasers à BQs InAs/InP

Pour établir un bref état de l'art des lasers à BQs InAs/InP, nous devons distinguer l'orientation du substrat. En effet, la grande majorité des très étudiés lasers sur InP orienté (100) sont des lasers à bâtonnets quantiques. Comme il est plus difficile de faire des BQs InAs/InP par rapport au système InAs/GaAs, il y a moins de résultats sur les dispositifs lasers [86], [93]. Néanmoins, de récents résultats sur les lasers à BQs InAs/InP(100) obtenus par le groupe de *J.P. Reithmaier* sont à mentionner ; on peut citer une faible densité de courant de seuil de 43 A/cm^2 [94], un fort gain modal de $\sim 90 \text{ cm}^{-1}$ [95], et une température caractéristique $T_0 > 100\text{K}$ de 15 à 110°C,

et $T_0 = 70\text{K}$ jusqu'à 180°C [96]. A présent, nous nous cantonnons à l'utilisation de substrat InP orienté (311)B, méthode employée au laboratoire pour croître les BQs InAs/InP.

Dans le système InAs/InP(311)B, les premiers lasers fonctionnant à température ambiante datent du début des années 2000 [97], période où des dispositifs sont également réalisés à notre laboratoire [98]. La plus faible densité de courant de seuil atteinte est de $63\text{A}/\text{cm}^2$ par plan de BQs ($190\text{A}/\text{cm}^2$ au total) pour une émission proche de $1,55\ \mu\text{m}$ à température ambiante [99]. Pour le gain modal, une valeur de $25\ \text{cm}^{-1}$ a été mesurée [100] dans un laser à blocage de modes. Les plus hautes températures caractéristiques atteintes récemment à température ambiante (de 303 à 333 K) sont de quasiment 2000 K [101] et 3560 K [87] dans un système InAs/InGaAlAs/InP(311)B émettant à $1,55\ \mu\text{m}$. Il est à noter que ces records sont obtenus avec des densités surfaciques de BQs supérieures à $9 \cdot 10^{10}\ \text{cm}^{-2}$, complétées par un dopage p de la zone active. Ces lasers comportent un empilement pour la zone active de plus de 30 plans, mais un laser avec un seul plan et présentant un gain modal de $13\ \text{cm}^{-1}$ a été réalisé [102]. Sur ce système de matériau (BQs InAs/InP), aucun VECSEL n'a jamais été réalisé, à cause du gain faible et des difficultés technologiques qui en découlent.

1.3 Le couplage dans les lasers à boîtes quantiques

Nous avons déjà introduit la notion de couplage photonique dans les lasers à BQs, induit par l'élargissement homogène et pouvant impacter le comportement spectral du laser. En complément de ce couplage, il est nécessaire de prendre en considération le couplage électronique, susceptible de s'établir dans le plan entre BQs voisines, et pouvant également avoir des effets sur la stabilité modale du laser. Dans cette partie, nous expliquerons ce nouveau type de couplage, puis, nous détaillerons le couplage total dans un laser bi-fréquence à BQs, en s'appuyant sur des études expérimentales et théoriques.

1.3.1 Couplage électronique

Entre les nanostructures, il est nécessaire de différencier deux dimensions de couplage électronique : le couplage électronique latéral entre BQs du même plan que nous allons présenter, et le couplage vertical entre les plans de BQs empilés. Ce dernier ne sera pas présenté ici car il est considéré comme étant négligeable lorsque l'espaceur entre les plans de BQs est supérieur à 10 nm, ce qui est généralement le cas [103]. Le couplage électronique latéral dans les BQs InAs/InP(311)B a été notamment étudié au laboratoire au cours de la thèse de *Charles Cornet*, et ses résultats résumés ici peuvent être retrouvés dans les références [104]–[106]. Le couplage latéral est

dépendant de la distance entre BQs, qui est étroitement liée à leur densité. Le couplage peut être direct, c'est-à-dire entre les états fondamentaux des BQs par effet tunnel. Il ne se produit qu'à très forte densité de BQs (forte proximité des BQs, distante de ~ 35 nm), typiquement à partir de $9 \cdot 10^{10}$ cm^{-2} , et est le couplage électronique dominant pour des densités supérieures à $1,6 \cdot 10^{11}$ cm^{-2} , qui par ailleurs sont difficilement atteignables dans ce système (et sur GaAs également). Pour des densités de 8 à $10 \cdot 10^{10}$ cm^{-2} , le couplage électronique dominant (le couplage direct est alors négligeable) est le couplage entre les états excités des BQs. Ce couplage s'explique par deux mécanismes :

1. La redistribution thermique classique R_T : un porteur sur l'état fondamental de boîte quantique peut être thermiquement excité vers la barrière ($Q_{1,18}$), puis capturé par une autre boîte quantique. Le processus R_T est fortement dépendant de la température.
2. La redistribution des charges par effet tunnel R_C via le couplage inter-BQ assisté par la couche de mouillage (WL – pour wetting layer). Dans ce cas, un porteur dans un état fondamental de boîte quantique peut atteindre des niveaux d'énergie supérieurs. Ils passent dans une autre boîte par effet tunnel à travers la barrière de potentiel.

Le principe du couplage électronique entre états excités est schématisé par la Figure 1.9, représentant les deux mécanismes de redistribution en compétition pour (a) des boîtes non couplées, et (b) des boîtes couplées latéralement. Le processus R_C nécessite moins d'énergie (thermique) que le processus R_T et entraîne par conséquent une meilleure efficacité de redistribution des porteurs. Pour des températures plutôt basses, entre 110 K et 180 K, le processus R_T devient moins actif.

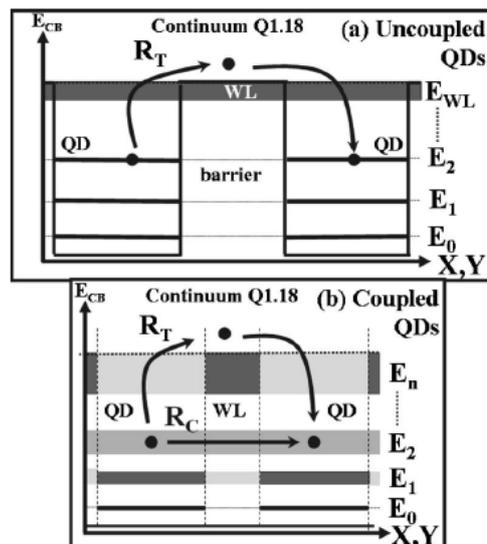


Figure 1.9 : Représentation schématique du diagramme en énergie de la bande de conduction pour (a) des BQs non-couplées (faible densité) et (b) des BQs couplées latéralement (forte densité). La densité de probabilité électronique associée à chaque niveau d'énergie est représentée en échelle de gris (blanc = 0 et noir = 1) [105], [106].

Cet effet de couplage latéral et donc de redistribution a un effet sur l'émission laser. Les résultats expérimentaux obtenus dans cette étude sur des lasers à BQs InAs/InP sont présentés à la Figure 1.10 : nous y retrouvons l'émission laser à 110 K (R_T moins actif) pour des BQs en forte densité ($8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$), et en faible densité ($4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$). De manière analogue aux résultats présentés auparavant, on retrouve ici la signature caractéristique des lasers à BQs à basse température, pour laquelle le couplage photonique est négligeable, et conséquemment, la largeur de raie du laser est très large. En particulier, la largeur de raie de l'émission laser avec des BQs à forte densité est 2,4 fois plus faible. L'interprétation de l'évolution des largeurs de raie de l'émission laser est la suivante : à faible densité (R_c faible), la redistribution des porteurs n'existe pas, ou est très peu efficace, ainsi toutes les boîtes quantiques de l'échantillon participent à l'émission laser indépendamment, et la largeur du spectre d'émission laser se rapproche de la largeur inhomogène [92], [107]. Au contraire en cas de forte densité (R_c fort), la redistribution est efficace, alors tous les porteurs se redistribuent préférentiellement vers une famille de boîtes quantiques sur laquelle le gain sera maximal. Dans ce cas, la largeur du spectre d'émission laser se trouve réduite en comparaison du cas précédent.

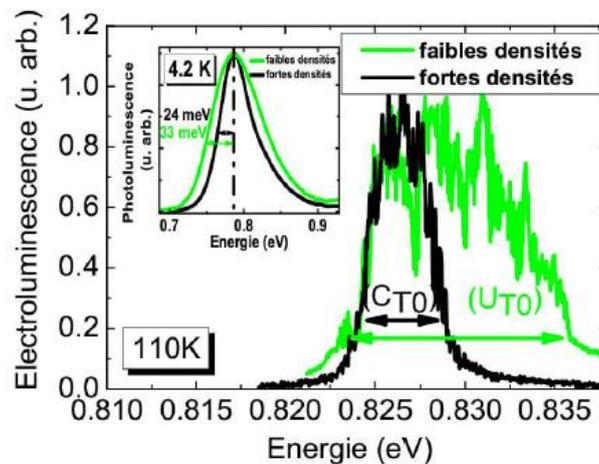


Figure 1.10 : Emissions lasers mesurées à 110 K pour des échantillons à faible (courbe verte) et forte (courbe noire) densité de BQs. L'encart est l'émission des échantillons en photoluminescence à 4,5 K [106].

1.3.2 Couplage dans les lasers

Le couplage dans un laser entraîne la compétition entre les modes pour le gain, et par conséquent une sélectivité des modes. Si le couplage est trop fort, le régime d'émission est monomode. Entre deux modes (appelés ici mode 1 et mode 2), le couplage peut être quantifié par la constante de couplage de Lamb, notée C [24], dont nous ferons une explication détaillée au Chapitre 5. Sa valeur retranscrit le régime dans le laser : lorsque $C < 1$, le laser peut osciller en régime bi-

fréquence. Plus elle est proche de 1, moins le régime est robuste. C est le produit des taux de saturation croisée du mode 1, noté K_{12} , et du mode 2, noté K_{21} [25]:

$$C = K_{12}K_{21}. \quad (1.4)$$

La constante de couplage de Lamb dans un laser à boîtes quantiques a récemment fait l'objet d'une étude théorique réalisée avec nos partenaires de l'IES de Montpellier [108]. Ces travaux proposent une approche théorique pour prédire la dépendance de C par rapport à l'écart spectral entre les deux modes oscillant dans la cavité, tout en prenant en compte les phénomènes de couplage photonique et électronique que nous avons préalablement présentés dans le cas des BQs. Le premier paramètre, a , est une combinaison des paramètres du matériau et du design du laser, prenant notamment en compte le couplage électronique et les pertes optiques :

$$a = \frac{\xi g_0}{kB\alpha} \quad (1.5)$$

avec ξ le taux de recombinaison non-radiative spontanée (taux de fuite des porteurs présents dans l'état excité), g_0 le gain non-saturé, B le nombre total de BQs, α les pertes optiques linéaires et k le pompage par famille de BQs (BQs émettant à la même longueur d'onde). Le produit kB représente ainsi le taux d'échange de porteurs entre les familles de BQs. Le second paramètre \mathcal{F} prend en compte l'élargissement homogène γ de l'émission des BQs, qui mène à une superposition du gain entre les modes adjacents et représentant le couplage photonique :

$$\mathcal{F} = \frac{hf}{\gamma} \quad (1.6)$$

avec h la constante de Planck et f la différence de fréquence entre les deux modes.

L'évolution de la constante de couplage en fonction de a et de \mathcal{F} est représentée à la Figure 1.11, de deux manières différentes. Sur ces deux graphiques, nous observons que pour $a \neq 0$ et $\mathcal{F} \geq 0,3$ (ou 0,5 quand a est très faible), C diminue lorsque \mathcal{F} augmente, et de manière plus prononcée avec l'accroissement simultané de a . Concrètement, le couplage dans le laser devient plus important quand le couplage électronique est plus fort ($a \ll 1$), mais aussi quand le rapport entre l'écartement spectral des deux modes et l'élargissement homogène diminue. Dans le cas où le couplage électronique reste faible ($a \gg 1$), la contribution de la largeur homogène devient dominante pour la réduction du couplage.

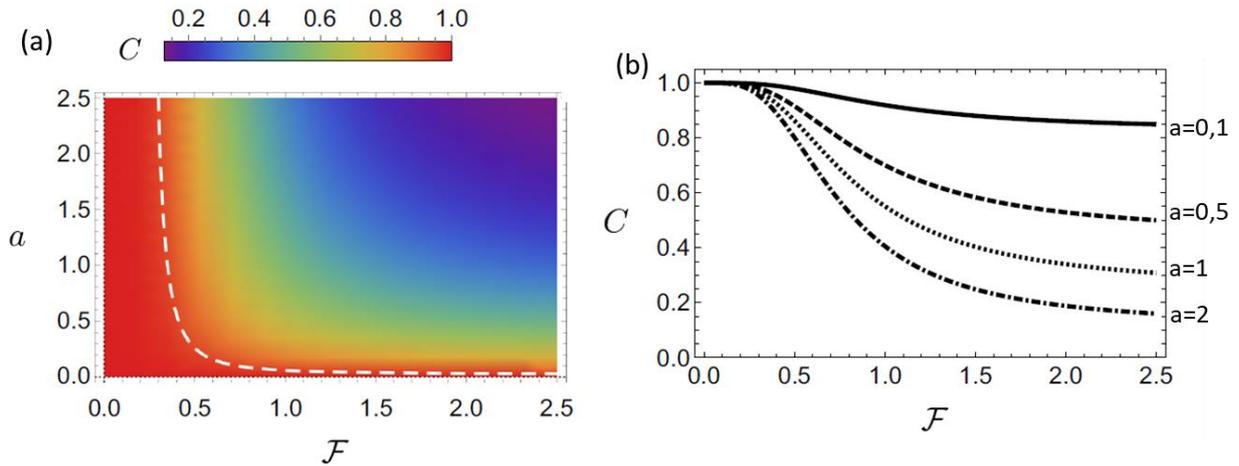


Figure 1.11 : (a) Valeurs de la constante de couplage calculées dans le plan (a, \mathcal{F}) . La ligne pointillée blanche correspond à $C=0,95$. (b) Evolution de C en fonction de \mathcal{F} pour quatre valeurs de a . La figure est extraite de la référence [108].

Cette étude est réalisée dans le cas d'une symétrie parfaite entre les deux modes, c'est-à-dire en matière d'intensité, de gain et de pertes, impliquant $K_{12} = K_{21}$. La simulation va également plus loin en se rapprochant de la réalité, i. e., en considérant également le cas où les deux modes ont des pertes optiques différentes. Les mêmes conditions pour améliorer la stabilité du régime sont retrouvées.

De cette étude, nous retenons en particulier que la condition de stabilité d'un laser bi-fréquence à BQs peut en théorie toujours être satisfaite. Accroître la robustesse d'un tel laser revient donc à :

- limiter le couplage électronique. Dans ce cas, le principal levier expérimental revient à accroître les distances moyennes entre BQs voisins, ce qui implique de réduire la densité de BQs, au dépend d'un gain effectif plus faible.
- restreindre le fonctionnement du laser bi-fréquence aux domaines spectraux permettant de limiter le couplage photonique. Dans ce cas, il devient fondamental de connaître l'élargissement homogène des BQs, et ses paramètres d'influence (température, densité de porteurs), en particulier dans le cas d'un fonctionnement en régime laser.

1.4 Objectifs de la thèse

Au vu des paragraphes précédents, on pourrait définir le laser bi-fréquence idéal comme étant un laser :

- à semiconducteurs, pour sa versatilité spectrale, son potentiel de compacité et de simplicité si l'injection électrique est possible,

- ayant une cavité VECSEL, pour les performances bas bruit (classe A) et les faibles largeurs de raie ($\ll 10$ kHz),
- en configuration mono-axe, pour une faible largeur de raie du battement, pour sa compatibilité avec l'injection électrique des technologies actuelles, et le fait de pouvoir accorder à volonté l'écart en longueur d'onde,
- d'où une zone active à BQs, la théorie prédisant un couplage plus faible entre les deux modes comparé aux zones actives à PQs,
- et où on disposerait de leviers pour designer la zone active à BQs, afin d'accroître la stabilité du laser, en particulier en jouant sur la densité, et d'établir les liens entre le couplage et l'élargissement homogène.

Ces caractéristiques sont regroupées dans le Tableau 1.2.

	Architecture laser et zone active	Cavité	λ (nm)	Puissance de sortie moyenne en régime bi- λ	Ecart de fréquence	Asservissement ?	Largeur du battement	Dynamique
Laser bi-fréquence idéal	Semiconducteur	uni-axiale	1550	> 10 mW	Jusqu'à 30 THz	non	<10 kHz	Classe A
	VECSEL BQ InAs/InP					oui	< dizaine Hz	

Tableau 1.2 : Caractéristiques du laser bi-fréquence idéal.

L'objectif de cette thèse est donc de réaliser un laser bi-fréquence fonctionnant autour de $1,5 \mu\text{m}$, à partir d'un VECSEL intégrant des BQs InAs/InP(311)B.

Le chapitre suivant de cette thèse a pour objectif principal de définir les conditions expérimentales de croissance de ces nanostructures, permettant à la fois d'avoir un contrôle sur la densité des BQs (et donc sur le couplage électronique), tout en s'assurant d'une émission à $1,5 \mu\text{m}$ et d'un gain suffisant pour assurer le fonctionnement du VECSEL. Le Chapitre 3 s'intéressera en particulier à mesurer l'élargissement homogène de ces BQs en température et dans des conditions proches du régime laser, avec une technique de spectroscopie de saturation d'absorption basée sur le phénomène de Spectral Hole Burning. Enfin, les deux derniers chapitres sont destinés à la réalisation d'un VECSEL à BQs sur InP, et à la mesure directe du couplage, en fonction de l'écart spectral entre les deux modes, à travers la constante de couplage de Lamb.

Chapitre 2

Ingénierie de la zone active pour la conception d'un laser bi-fréquence

2.1	Croissance des BQs InAs/InP(311)B par épitaxie	30
2.1.1	Le matériau III-V	30
2.1.2	Croissance des boites quantiques par MBE.....	32
2.1.3	Cas particulier de l'InP : l'orientation cristalline.....	34
2.2	Protocole expérimental pour l'optimisation des BQs.....	36
2.3	Propriétés structurales des BQs.....	37
2.3.1	Réalisation et traitement des mesures d'AFM.....	38
2.3.2	Densité et auto-organisation des boites quantiques	40
2.3.3	Dimension des boites en fonction des paramètres de croissance	43
2.4	Propriétés spectrales des BQs.....	47
2.4.1	Principe de la Photoluminescence et conditions expérimentales	48
2.4.2	Evolution de la longueur d'onde d'émission des BQs	49
2.4.3	Elargissement inhomogène de nos échantillons	50
2.4.4	Rendement de la photoluminescence	51
2.5	Design de la zone active pour le VECSEL.....	53
2.5.1	Contrôle de la longueur d'onde d'émission.....	53
2.5.2	Empilement des plans de BQs.....	55
2.6	Conclusion du Chapitre 1	56

Ce deuxième chapitre marque le début de notre cheminement vers la réalisation du VECSEL bi-fréquence à boites quantiques. Nous commençons ainsi ce projet par une étude de la croissance par épitaxie des boites quantiques, première étape cruciale à l'ingénierie de la zone active. En effet, les propriétés de nos nanostructures sont grandement modulables avec les paramètres de croissance appliquée. Nos critères pour les boites quantiques sont :

- un gain suffisant pour l'obtention de l'émission laser, d'où une densité élevée de BQs ($\sim 1 \times 10^{11}$ BQs/cm²) et un nombre plutôt important de plans de BQs (une vingtaine),
- mais en évitant un couplage électronique latéral et vertical trop fort entre elles,
- et en évitant une dégradation du matériau liée à l'empilement.
- un contrôle précis de la longueur d'onde des boîtes quantiques pour in fine obtenir une émission laser à 1,55 μm , soit une émission des BQs autour de 1520 nm.

Ces différents besoins amènent à la réalisation nécessaire d'une étude sur la croissance des boîtes quantiques. Le but est ici de savoir quels sont les paramètres à appliquer lors de la croissance pour répondre à ces attentes, puis de vérifier la qualité de la zone active.

Ainsi, nous présenterons dans un premier temps la croissance de nos boîtes quantiques InAs sur substrat InP orienté suivant la direction (311)B par épitaxie par jets moléculaires. Nous expliquerons par ailleurs le choix du matériau et de cette orientation particulière du substrat ainsi que les études de croissance déjà effectuées au laboratoire. Puis dans un second temps, nous détaillerons l'étude réalisée spécialement pour l'ingénierie de la zone active du laser bi-fréquence, à savoir l'évolution des propriétés structurales et optiques des boîtes quantiques avec la modification de deux paramètres de croissance primordiaux : le débit d'arsine (AsH₃) et l'épaisseur d'InAs déposée. Dans ce but, nous présenterons d'abord le protocole expérimental, puis les caractérisations structurales (densité, taille des BQs) réalisées par microscopie à force atomique, et ensuite optiques (longueur d'onde, largeur de raie et qualité de l'émission des BQs) réalisées par photoluminescence. Enfin, nous aborderons le design de la zone active avec le contrôle de la longueur d'onde et l'empilement des plans.

2.1 Croissance des BQs InAs/InP(311)B par épitaxie

2.1.1 Le matériau III-V

Nous souhaitons utiliser les BQs comme zone active d'un laser pour des applications en optique micro-ondes, comme la communication radio sur fibre, la génération et la détection de signaux radar et la génération de signaux THz. De ce fait, le laser devra émettre à une longueur d'onde adaptée aux fibres optiques qui vont transporter le signal, afin d'éviter les pertes optiques qui dépendent de la longueur d'onde du rayonnement injecté. C'est à 1,55 μm que le minimum de pertes optiques est atteint dans les transmissions par fibres optiques modernes en silice. Cette

longueur d'onde, très utilisée dans les télécommunications, est ainsi appelée longueur d'onde télécom.

Le choix des matériaux pour la formation des BQs est très important car, même si l'émission dépend fortement de la géométrie et de la taille des nanostructures, elle est en premier lieu dictée par le système de matériau employé. La micro-électronique repose majoritairement sur la technologie du silicium, notamment grâce à son faible coût de production. Cependant pour les applications optoélectroniques, le silicium n'est pas adapté : son gap est indirect, c'est-à-dire que le maximum de la bande de valence ne coïncide pas avec le minimum de la bande de conduction. Cela implique l'intervention de phonons pour avoir une émission de lumière, ce qui entraîne une diminution du rendement. Or le gap de beaucoup de semi-conducteurs III-V est direct, les recombinaisons des porteurs sont donc majoritairement radiatives. Par conséquent, ils ont de bien meilleures caractéristiques optoélectroniques.

Par ailleurs, un autre intérêt majeur des alliages pour la croissance, notamment les III-V, est la large gamme de composition que l'on sait fabriquer, ce qui permet une véritable ingénierie de la bande interdite. En effet, les hétérostructures se divisent en plusieurs filières, chacune regroupant les matériaux possédant des paramètres de maille proches. Ces filières possèdent un substrat, InP, GaAs ou GaSb à partir duquel il est possible de réaliser l'épitaxie. La Figure 2.1 permet de connaître l'évolution de l'énergie de la bande interdite de plusieurs semi-conducteurs III-V avec leur paramètre de maille. Grâce à celle-ci, on peut déterminer quel système de matériau est propice à la formation de BQs émettant à $1,55\mu\text{m}$. Par exemple, les très étudiées BQs InAs/GaAs présentent un fort désaccord paramétrique (7%), favorable à leur formation. Cependant, elles sont très souvent de faibles dimensions, d'où un fort confinement des porteurs entraînant une émission naturellement autour de 1 eV (~ 1250 nm), et jusqu'à 1300 nm [109], [110]. L'émission vers $1,55\mu\text{m}$ est certes possible, mais difficile à réaliser et les divers moyens employés dégradent généralement l'émission [111]. Ce qui, dans notre cas, n'est pas un bon choix. Un autre système, bien que moins étudié, se dessine alors : dans le système InAs/InP, le désaccord est bien plus faible (3,2%), ce qui résulte en la formation de BQs plus grandes avec une émission potentiellement autour de 0,8 eV ($1,55\mu\text{m}$). Ce qui en fait un système adéquat. De plus, l'utilisation de substrats InP a l'avantage d'être déjà bien connu par l'industrie des télécommunications optiques, puisque l'ensemble des composants utilisés sont réalisés sur ce type de substrat.

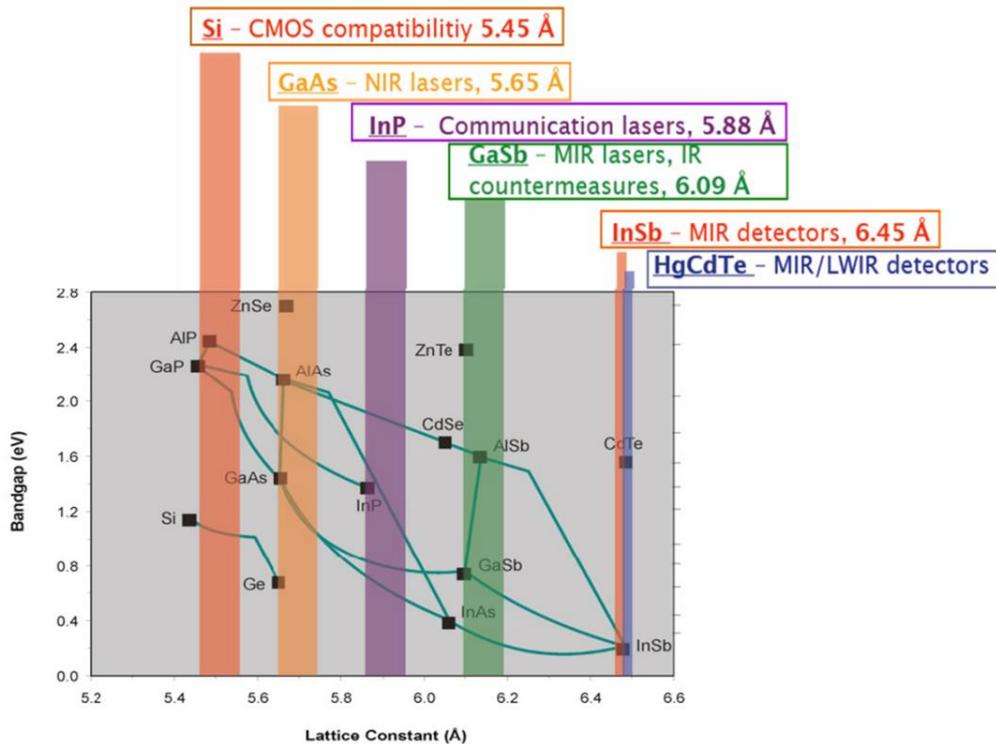


Figure 2.1 : Energie de bande interdite des semiconducteurs en fonction de leur paramètre de maille à température ambiante [112].

2.1.2 Croissance des boîtes quantiques par MBE

L'élaboration de nos nanostructures se fait par épitaxie par jets moléculaires à sources gazeuses (GS-MBE – pour Gas Source Molecular Beam Epitaxy), présentée en détail à l'Annexe 1. Dans ce cas particulier, les éléments V (As_2 , P_2) sont apportés par la dissociation thermique de gaz (AsH_3 , PH_3). Le contrôle des flux atomiques des éléments V est donc rendu possible par le contrôle du débit de gaz, et ces flux seront donc indiqués dans le manuscrit en tant que débit, donné en sccm (standard centimeter cube per minute). Bien qu'il existe plusieurs méthodes de synthèse des boîtes quantiques [109], leur fabrication se fait essentiellement par croissance auto-assemblée (ou auto-organisée) selon le mode de croissance Stranski-Krastanov (SK) [113] par MBE ou MOCVD, schématisé par la Figure 2.2. Ce mode de croissance apparaît dans le cas d'une croissance hétéroépitaxiale (substrat et couche déposée de nature chimique différente) par le dépôt d'un matériau présentant un paramètre de maille plus grand que celui du substrat cristallin. En effet, le désaccord de paramètre de maille entre le substrat et le matériau épitaxié provoque une contrainte en compression dans la couche déposée, et une accumulation d'énergie élastique. La croissance des premières couches se fait de façon pseudomorphique, c'est-à-dire en s'adaptant au paramètre de maille du substrat. Mais au fur et à mesure du dépôt monocouche par monocouche, l'épaisseur de la couche déposée augmente, entraînant l'accroissement linéaire de l'énergie élastique. Après une

épaisseur dite critique, les contraintes se relaxent élastiquement. On observe alors une transition de la croissance 2D vers un mode de croissance 3D : des îlots quantiques se forment sur la couche 2D résiduelle, appelée la couche de mouillage. Il est à noter que le passage 2D/3D est facilité pour des désaccords de paramètre de maille plus importants. Lorsque la croissance des boîtes se poursuit, une relaxation plastique apparaît au-delà d'une dimension critique, créant des dislocations au bord des boîtes.

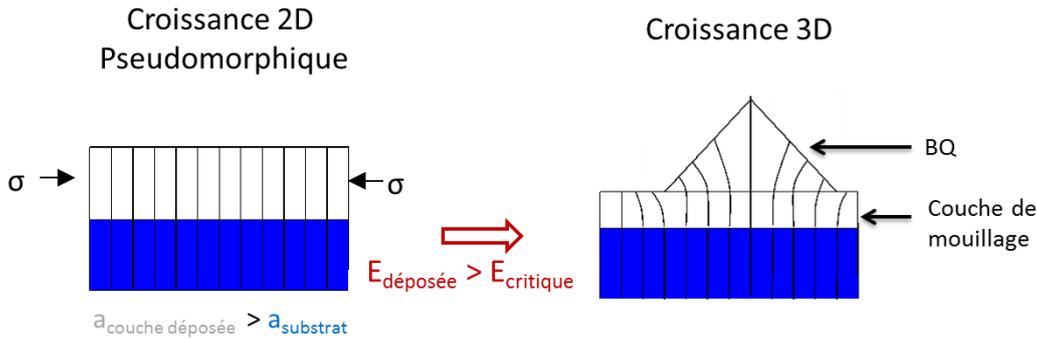


Figure 2.2 : Principe de croissance de BQs par le mode de croissance Stranski-Krastanov. a désigne le paramètre de maille, E l'épaisseur et σ la contrainte de compression.

Bien que proposé en 1939 par Stranski et Krastanov [113], ce mode de croissance a été observé pour la première fois sur des puits contraints d'InAs/GaAs (créant de ce fait les premières BQs III-V par le passage 2D/3D) fabriqués par MBE en 1985 [114].

La procédure de croissance par MBE des BQs InAs/InP auto-assemblées (Figure 2.3) est la suivante : la première étape consiste à déposer une couche barrière sur le substrat d'InP assurant le confinement optique. Il s'agit un alliage, le quaternaire $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$ en accord de maille sur InP, qui a une émission lumineuse à $1.18 \mu\text{m}$ (1.05 eV) à 300K et qui est donc appelé $\text{Q}_{1.18}$. Ensuite, le dépôt d'InAs monocouche par monocouche débute par la formation de la couche de mouillage (2D), de 1 nm d'épaisseur en général. La transition vers le 3D s'effectue par la relaxation des contraintes et se traduit par la formation des BQs, d'où le terme d'auto-assemblée. Enfin, elles sont encapsulées, c'est-à-dire recouvertes par une couche de $\text{Q}_{1.18}$. Cette étape essentielle au confinement des porteurs et donc aux bonnes propriétés optiques de la BQ peut modifier sa forme et sa composition. En effet durant cette étape, les sommets des BQs d'InAs non recouverts sont tronqués par la migration des atomes d'indium à la surface ce qui conduit en quelque sorte à un lissage. Pour la composition, des phénomènes de ségrégation des atomes III peuvent se produire entre la BQ et la couche d'encapsulation GaInAsP. De plus dans le système InAs/InP, il peut y avoir des phénomènes d'échange entre les éléments V (As et P) [115].

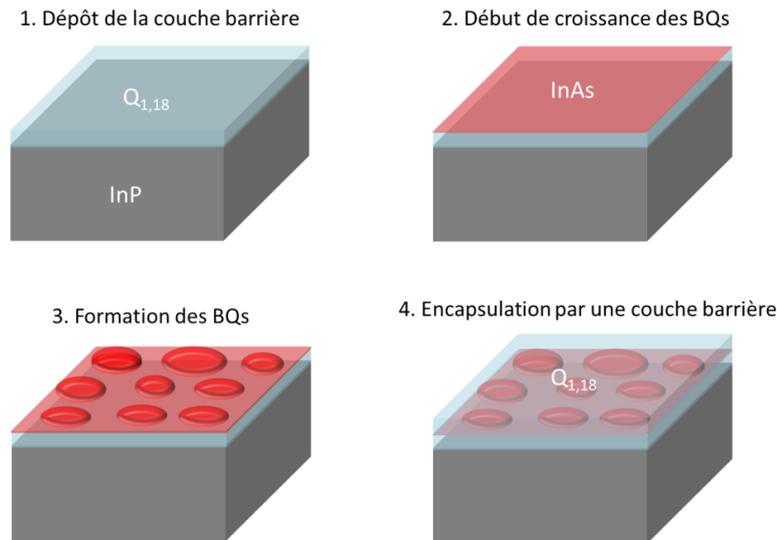


Figure 2.3 : Principe de croissance d'un plan de BQs InAs/InP par MBE dans le mode de Stranski-Krastanov, qui commence par le dépôt de la couche barrière de $Q_{1,18}$ sur le substrat d'InP. Ensuite le dépôt couche atomique par couche atomique d'InAs forme d'abord la couche de mouillage, puis la relaxation de contraintes forme les BQs. Enfin elles sont recouvertes d'une barrière de $Q_{1,18}$.

Ce type de croissance permet de n'avoir qu'une seule étape d'épitaxie pour former les BQs. Néanmoins, les BQs étant auto-organisées, cette méthode nécessite la maîtrise de l'influence des paramètres de croissance pour contrôler leurs propriétés géométriques et optiques.

2.1.3 Cas particulier de l'InP : l'orientation cristalline

Dans le système InAs/GaAs à cause du fort désaccord de maille de 7 % la nucléation des BQs est très importante, et permet spontanément de former de petites BQs en forte densité en ayant recourt à des substrats de GaAs d'orientations cristallines conventionnelles. Dans le cas du système InAs/InP, le faible désaccord de maille de 3% rend la formation des BQs plus délicate. Ainsi, la nature même des nanostructures spontanément formées va dépendre de la technologie de croissance (MBE, MOCVD), et aussi de l'orientation cristallographique du substrat. En effet par MBE, un substrat d'InP orienté (100) aura plutôt tendance à générer des bâtonnets quantiques présentant des propriétés électroniques s'apparentant plus à des fils quantiques [116] ou encore de grosses BQs en faible densité ; alors qu'on obtiendra des BQs sur un substrat (311)B pour les mêmes paramètres de croissance, où la croissance de cette forme de nanostructure est facilitée.

La relaxation élastique sur substrat InP (100) entraîne ainsi fréquemment, suivant les paramètres de croissance, la formation de bâtonnets ou de fils quantiques en forte densité [117]–[119], orientés suivant la direction [1-10]. Leurs dimensions sont typiquement de 20 à 30 nm de large et de 200 à 700 nm de long. La formation de BQs sur substrat d'InP (100) est néanmoins possible, mais elles

sont alors plus grandes que sur (311)B : 70nm de diamètre et 15 nm de hauteur, soient des dimensions au minimum doublées. Elles sont également plus dispersées en taille ($\pm 50\%$ contre 13%), et avec une densité 10 fois plus faible [120], [121].

Deux voies se démarquent avec succès : le substrat désorienté (surfaces vicinales) [122]–[125] et le substrat à forts indices de Miller, de type (11n) [97], [121], [126]. Cependant, l'emploi d'un substrat désorienté amène à des BQs généralement plus larges et de densité plus faible qu'avec un substrat (311)B (Figure 2.4). De plus les conditions de croissance s'avèrent plus délicates pour assurer un contrôle reproductible de ces nanostructures.

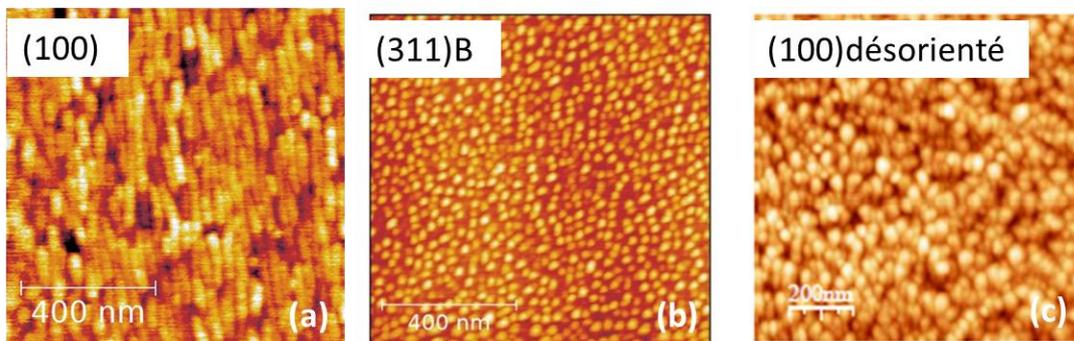


Figure 2.4 : Images AFM ($1\mu\text{m}^2$) des nanostructures InAs obtenues à faible flux d'arsine (0,3sccm) sur les substrats (a) InP(100), (b) InP(311)B et (c) InP(100)B désorienté de 2° . L'image (c) provient de [124].

Ainsi dans ce travail de thèse, nous choisissons l'orientation (311)B du substrat InP pour croître nos BQs. Au laboratoire, plusieurs études sur l'impact des paramètres de croissance ont été précédemment réalisées sur cette orientation du substrat, avec également différents matériaux pour la couche barrière [127]. Voici les plus pertinentes par rapport à notre étude :

- Etude de la croissance de BQs InAs/InP (311)B avec une couche barrière de GaInAs ou de $\text{Q}_{1,18}$ pour différents flux d'arsine (de 0,1 à 13,4 sccm ; avec une épaisseur d'InAs déposée fixe de 2,1 MC) [128]–[131]. Elle montre les effets du débit d'arsine sur la densité, le diamètre et l'émission des BQs. L'étude met en relief l'utilisation de flux plus faible (0,3 sccm) pour une forte densité et une plus faible dispersion en taille des nanostructures.
- Etude de la quantité d'InAs déposée (de 0 à 3,5 MC) à bas flux d'arsine (0,3 sccm) et à fort flux (5 sccm) sur des BQs InAs/ $\text{Q}_{1,18}$ /InP (311)B [128]. On retiendra que les propriétés structurales sont meilleures pour des dépôts plus épais mais une dégradation apparaît à partir de 3,5 MC. La plus forte densité et la plus faible dispersion en taille, concordant avec les propriétés spectrales également mesurées, sont atteintes pour une quantité d'InAs de 2 à 3 MC.

- Etude de l'empilement de plans de BQs à bas flux et fort flux d'arsine [105], [106], [128]. Cette étude montre que les BQs s'élargissent au fur et à mesure de l'empilement et que leur densité diminue légèrement. Il y est également démontré que l'organisation latérale des BQs, bien qu'amplifiée par le processus d'empilement, a son origine dans les hautes densités surfaciques de boîtes : l'échantillon haute densité présentait une forte organisation latérale en translation et en orientation, organisation qui était absente pour l'échantillon faible densité.

Dans notre cas, nous souhaitons une forte densité surfacique de BQs, de l'ordre de 1×10^{11} BQs/cm², pour obtenir un gain suffisant pour l'émission laser, au détriment du couplage électronique, alors amplifié. Ainsi, ces différentes études antérieures nous guident sur les paramètres de croissance à appliquer pour élaborer la zone active du laser, que nous présenterons dans les parties suivantes.

2.2 Protocole expérimental pour l'optimisation des BQs

En vue de concevoir un laser bi-fréquence à BQs, nous réalisons une étude de la zone active pour optimiser ses propriétés optiques, comme la longueur d'onde d'émission et la largeur à mi-hauteur du pic de photoluminescence, et structurales, telles que la densité surfacique et la taille des BQs. Pour modifier ces propriétés, deux paramètres de croissance lors de l'épitaxie sont ajustés :

- le débit d'arsine (AsH₃), exprimé en sccm (pour standard centimeter cube per minute), est ajusté de 0,3 à 13 sccm. La notion de très bas flux est appliquée pour 0,3 sccm, bas flux pour 1 sccm et fort flux pour ≥ 5 sccm.
- la quantité d'InAs déposée, exprimée en monocouche (MC – correspondant à une épaisseur de 0,3 nm), est ajustée de 1 à 2,5 MC.

Pour étudier les propriétés structurales et notamment mesurer un paramètre crucial dans notre étude, la densité, la microscopie à force atomique est employée. Afin de la réaliser, il faut que les boîtes soient « visibles » en surface, c'est-à-dire non recouvertes. Or les propriétés optiques, telles que la longueur d'onde, la largeur et la qualité (rendement) de l'émission, sont mesurées par photoluminescence à intensité de laser de pompe constante. Ces propriétés sont difficilement quantifiables sans encapsulation, car l'efficacité des recombinaisons radiatives est fortement réduite. Dans le but de réaliser ces deux procédés de caractérisation sur le même échantillon, ceux-ci, décrits à la Figure 2.5, sont constitués d'un premier plan de boîtes classique (donc enterré), et d'un deuxième plan de BQs non recouvert, réalisés dans les mêmes conditions de croissance.

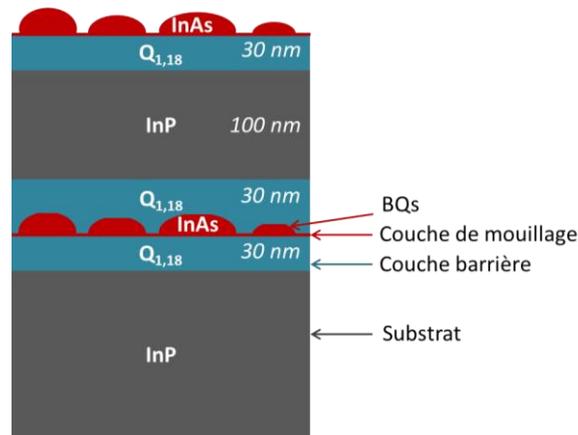


Figure 2.5 : Schéma de l'empilement des échantillons pour la caractérisation par AFM et par PL où les épaisseurs des couches sont indiquées.

La disposition est la suivante : d'abord le substrat d'InP, ensuite une couche barrière de $Q_{1,18}$, puis le dépôt d'InAs qui forme la couche de mouillage et les boîtes quantiques, et finalement une épaisseur de $Q_{1,18}$ qui recouvre le premier plan. Pour le deuxième plan, la procédure est la même mais est arrêtée avant le recouvrement des BQs. Cette procédure avait déjà été utilisée au laboratoire pour les études antérieures [128].

Pour cette étude, 15 échantillons sont donc fabriqués avec différentes valeurs de flux d'arsine et d'épaisseur d'InAs déposée. Le tableau suivant indique le numéro de l'échantillon et ses paramètres de croissance.

InAs déposé Débit d'AsH ₃	InAs déposé			
	1 MC	1,5 MC	2 MC	2,5 MC
0,3 sccm	6172-2	6173-2	6178-2	6175-2
1 sccm	6196-2	6197-2	6198-2	6199-2
5 sccm	6304-2		6305-2	6306-2
13 sccm	6183-2	6184-2	6185-2	6186-2

Tableau 1.3 : Liste des échantillons étudiés classés suivant le débit d'AsH₃ et l'épaisseur d'InAs utilisés durant la croissance.

2.3 Propriétés structurales des BQs

Les propriétés structurales des boîtes quantiques sont étudiées par microscopie à force atomique (AFM – pour Atomic Force Microscopy). Cette technique de microscopie permet d'obtenir la topographie d'une surface avec une très bonne résolution, de l'ordre de quelques

Angströms. De plus, elle est rapide malgré la taille des surfaces étudiées ($1\mu\text{m}^2$) et elle ne requiert pas de préparation spéciale pour les échantillons (technique non destructive). Elle est expliquée en détails dans l'Annexe 2.

2.3.1 Réalisation et traitement des mesures d'AFM

Les images obtenues en mode contact de l'AFM pour quatre débits d'arsine différents et également quatre épaisseurs d'InAs déposées sont présentées à la Figure 2.6. Au total, 15 images sont obtenues et 14 sont exploitables. En effet, après plusieurs essais, l'échantillon 6172-2 (0,3 sccm et 1 MC) n'a pas permis de réaliser une acquisition exploitable pour traiter correctement les données. Il est à noter cependant que sur les 14 images AFM, nous observons des BQs déjà formées avec seulement 1 MC d'InAs déposée, alors que sur substrat GaAs l'épaisseur critique est de 1,8 MC. Cette différence s'explique par les échanges As/P ayant lieu sur le $Q_{1,18}$ avant le dépôt de l'InAs, qui tend à enrichir la surface en InAs, permettant la formation préliminaire d'une couche d'InAs de 1 à 2 MC.

Sur ces images, nous observons qu'une augmentation du flux d' AsH_3 entraîne une forte diminution de la densité surfacique des BQs, ainsi qu'une augmentation de leur diamètre. Quant à l'épaisseur d'InAs déposée, son accroissement implique une augmentation de la densité, moins importante, mais il est difficile de conclure sur l'évolution de la taille des BQs, au vue des images uniquement. Afin de quantifier ces résultats, les images sont traitées d'abord avec le logiciel de traitement Gwyddion puis avec SPM Image Magic, présentés en Annexe 3. La procédure de traitement y est également expliquée.

Quelques précisions importantes sont à apporter avant de présenter les résultats de cette étude. Comme nous sondons par AFM les BQs en surface, donc non-encapsulées, les mesures de la densité seront légèrement sous-évaluées et les dimensions, telles que la hauteur et le diamètre, seront surévaluées par rapport aux BQs réelles, c'est-à-dire encapsulées. En effet, dû au murissement d'Ostwald lorsque les échantillons refroidissent sous As_2 , les BQs de surface tendent à grossir en incorporant l'InAs autour d'elles et donc en absorbant les plus petites BQs. De plus le cas particulier de l'InAs/InP fait qu'il y a des échanges As/P lorsque les BQs d'InAs sont encapsulées par le $Q_{1,18}$. Ces échanges contribuent à réduire les dimensions de la BQ encapsulée, et plus particulièrement sa hauteur. Néanmoins, excepté la valeur de la hauteur (son évolution en fonction des paramètres de croissance étant ici la donnée importante à considérer), la densité et le rayon des BQs de surface mesurés seront représentatifs du plan de BQs enterré.

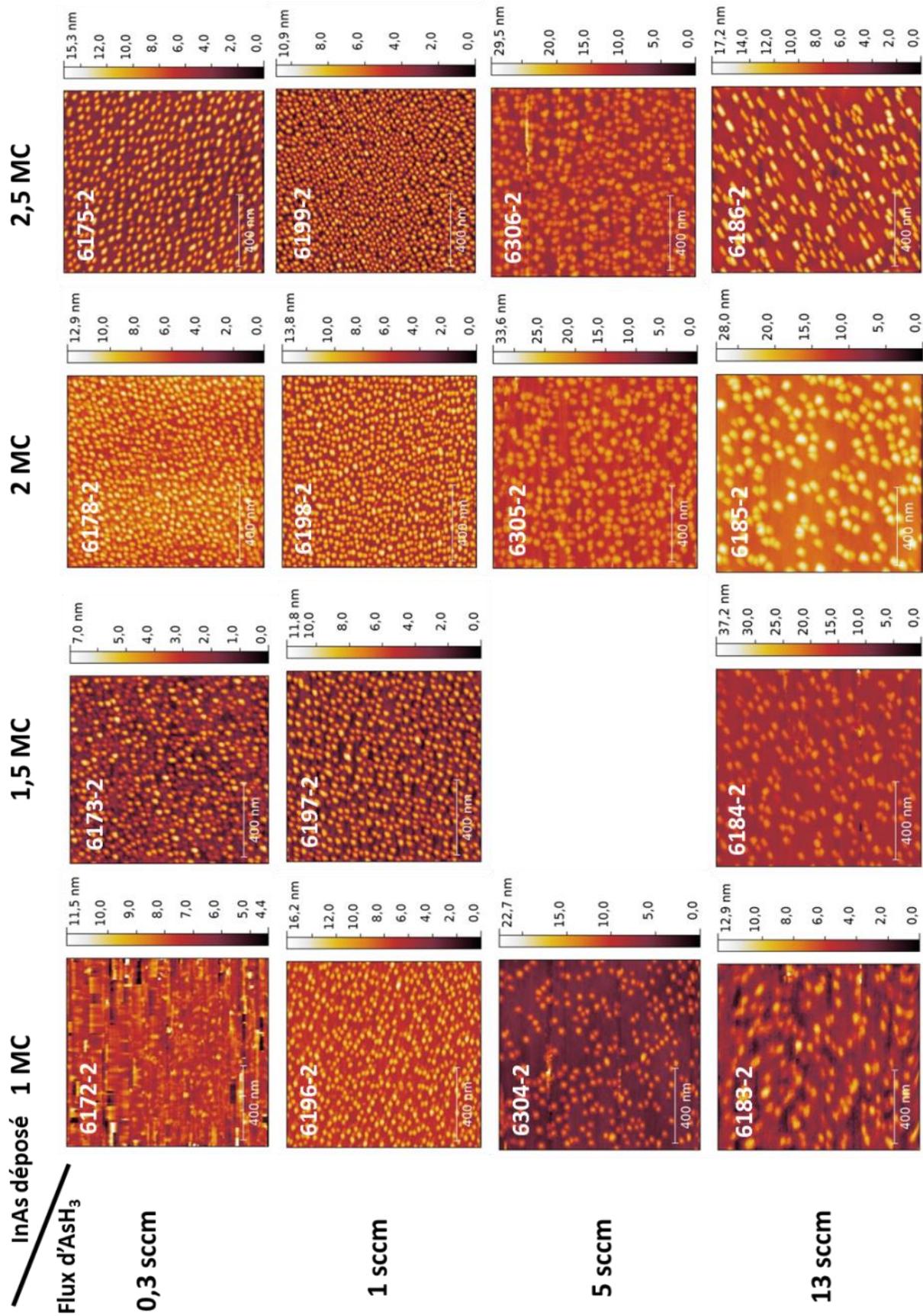


Figure 2.6 : Images AFM de $1\mu\text{m}^2$ pour tous les échantillons de l'étude : pour différents flux d'arsine et d'épaisseur d'InAs déposée.

2.3.2 Densité et auto-organisation des boîtes quantiques

2.3.2.1 Densité surfacique des boîtes quantiques

La Figure 2.7 représente l'évolution de la densité surfacique des BQs en fonction du débit d'arsine, pour chaque épaisseur d'InAs déposée. Grâce au choix de ces deux paramètres, la densité des boîtes quantiques peut être modifiée d'un facteur 10. En effet, l'amplitude maximale mesurée est de $1,3 \cdot 10^{10}$ à $13,2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, respectivement obtenue pour 1 MC – 13 sccm et 2,5 MC – 1 sccm. Si nous regardons plus en détails nous observons que, sauf à très bas flux As, lorsque la quantité d'InAs déposée augmente en passant de 1 à 2,5 MC, la densité surfacique des BQs est généralement doublée. L'inverse se produit avec le passage du débit d'arsine de 0,3 à 13 sccm : la densité est diminuée d'un facteur 3 à 4. La densité peut donc être sélectionnée de $5,5 \cdot 10^{10}$ à $13,2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ à bas flux As et de $1,3 \cdot 10^{10}$ à $2,9 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ à fort flux As. La combinaison des deux paramètres de croissance offre ainsi un choix conséquent sur la densité.

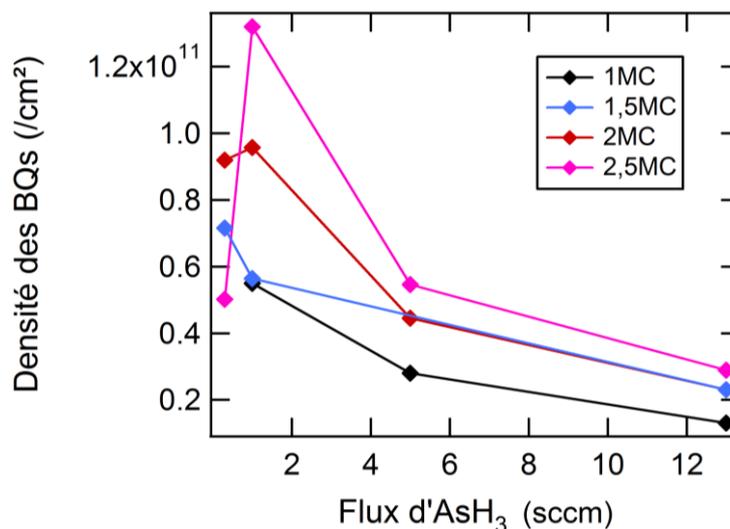


Figure 2.7 : Evolution de la densité surfacique des BQs en fonction du débit d'AsH₃.

L'augmentation de la densité surfacique des BQs entraînée par la diminution du débit d'arsine est un effet propre au substrat (311)B, et qui est contre intuitif. En effet il est communément admis que sur GaAs, l'augmentation du débit d'AsH₃ a pour effet de réduire la longueur de diffusion des atomes en surface, conduisant à un accroissement du taux de nucléation et donc de la densité. Dans notre cas, la situation s'inverse, et la baisse de la densité des BQs est principalement liée à l'accroissement de l'énergie de surface de l'InP(311)B avec le flux As [128].

Nous pouvons ainsi distinguer deux cas : la forte densité pour des faibles débits à 1 sccm et la faible densité pour des forts débits, à partir de 5 sccm.

2.3.2.2 Organisation des boîtes quantiques

Comme expliqué dans l'Annexe 3, les images de 2D-FFT et d'autocorrélation renseignent sur l'organisation spatiale des BQs. Pour la 2D-FFT, si on observe une unique tache diffuse, il n'y a pas d'organisation. Au contraire, si l'image est structurée sous forme de plusieurs lobes, l'organisation des BQs dans le plan est initiée. Il en va de même pour l'image d'autocorrélation 2D.

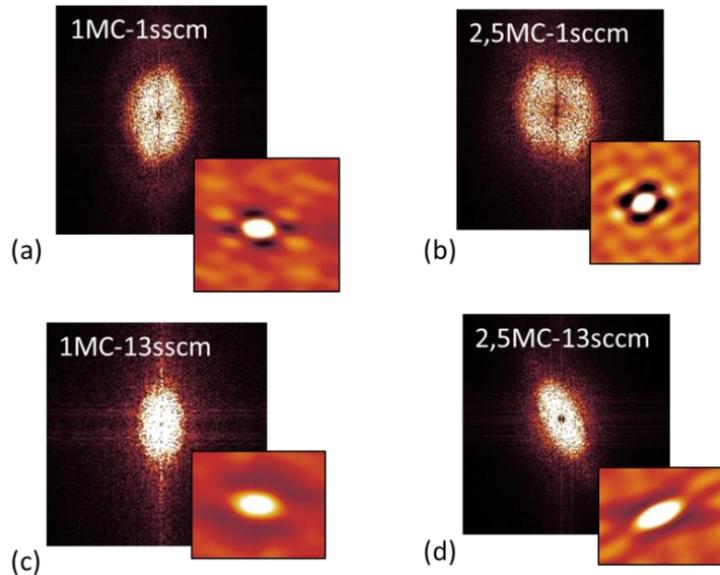


Figure 2.8 : Traitement des images AFM par 2D-FFT et autocorrélation 2D (en encart) pour des échantillons présentant les paramètres de croissance suivant : (a) 1 MC – 1 sccm, (b) 2,5 MC – 1 sccm, (c) 1 MC – 13 sccm, (d) 2,5 MC – 13 sccm.

Ainsi nous observons, grâce à la Figure 2.8, que pour un débit de 13 sccm, le degré d'organisation est très faible, peu importe la quantité d'InAs déposée. A l'inverse à bas débit, un début d'organisation est présent et se renforce à 2,5 MC. La structuration des BQs est donc meilleure pour des débits d'arsine plus bas et pour des épaisseurs d'InAs plus importantes, et suit ainsi la même évolution que la densité. Nos résultats sont conformes à des observations précédentes [128], montrant qu'une plus haute densité améliore l'organisation des boîtes quantiques dans le plan grâce à l'interaction de leur champ de contrainte via les couches 2D (couche de mouillage et barrière). Cette interaction est plus forte lorsque les BQs sont rapprochées. Il est à noter que l'organisation spatiale des boîtes quantiques est de plus en plus marquée lorsque les plans s'empilent en raison des champs de contrainte induits par les plans de BQs enterrés [106]. Dans notre cas, deux plans successifs sont indépendants dès lors que l'espaceur a une épaisseur de plus de 30 nm.

2.3.2.3 Distance inter-BQs

Dans notre étude pour la réalisation du laser bi-fréquence, le couplage électronique latéral inter-BQs est un paramètre clef qu'il faudrait minimiser. C'est pourquoi nous avons mesuré la densité, qui nous donne des informations qualitatives quant à ce type de couplage [104], [106]. En effet, il peut y avoir des fuites de porteurs vers d'autres BQs lorsqu'une boîte est excitée. Ces fuites se produisent notamment par effet tunnel entre deux BQs voisines, et sont d'autant plus favorisées si celles-ci sont proches. Ces fuites de porteurs entraînent l'émission de photons de toute la population de BQs. Mais c'est plutôt la distance entre les BQs que la densité qui est le paramètre à considérer pour le couplage électronique latéral, car la densité ne prend pas en compte l'évolution du rayon des BQs. Afin de la déterminer, l'autocorrélation des images AFM est effectuée. L'image d'autocorrélation obtenue renseigne sur l'organisation des boîtes comme expliqué précédemment, mais elle peut également donner la distance moyenne au plus proche voisin.

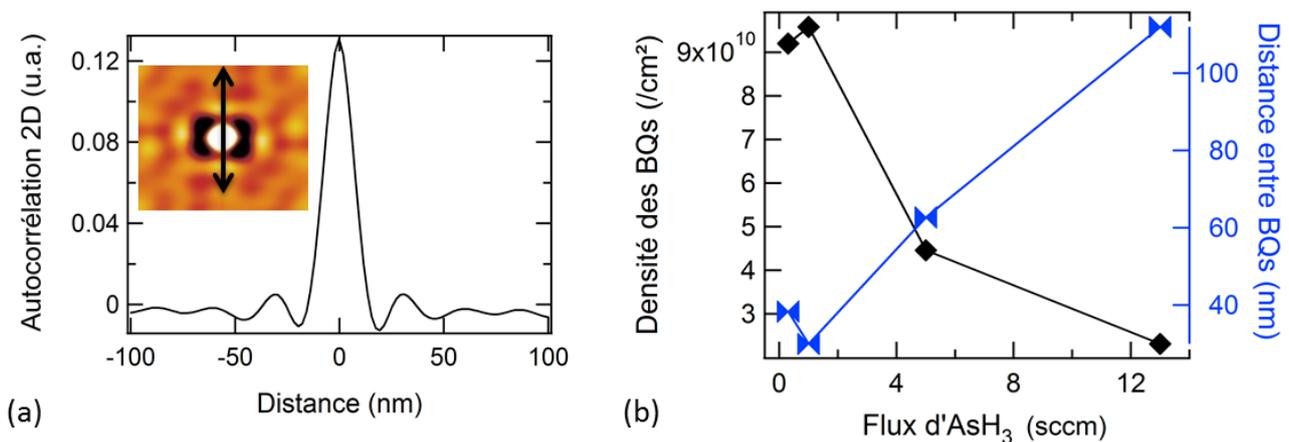


Figure 2.9: (a) Profil de l'image d'autocorrélation 2D (en insert) du scan AFM pour l'échantillon 6198-2 (2 MC – 1 sccm). Le profil est réalisé suivant la flèche noire de l'image d'autocorrélation insérée. (b) Evolution de la densité et de la distance entre boîtes en fonction du débit d'AsH₃ pour une épaisseur déposée de 2 MC.

En effet, en extrayant le profil de l'image suivant une droite comme indiqué à la Figure 2.9(a), nous obtenons un pic central, qui renseigne sur la forme et sur la distribution en taille des BQs, et deux pics secondaires, correspondants à la périodicité des BQs. Ainsi, la distance entre le pic central et les deux pics secondaires permet de définir une distance moyenne entre les BQs selon ces directions. Pour l'échantillon pris en exemple, le 6198-2 (2 MC – 1 sccm), la distance moyenne est de 30 nm. Pour des échantillons crûs sous fort flux d'arsine, la valeur mesurée est beaucoup moins précise, avec une erreur relativement grande (~20%), car la méthode est dépendante du degré d'organisation des boîtes.

La Figure 2.9(b) reprend l'évolution de la densité mesurée précédemment en fonction du flux d'arsine pour une épaisseur de 2 MC, et en y ajoutant l'évolution de la distance inter-BQs extraite de l'autocorrélation. Nous observons que la distance moyenne entre BQs passe de 30 nm pour un flux de 1 sccm à 110 nm pour 13 sccm, soit une multiplication par 3,7 pour une densité divisée par 4. Nous remarquons donc que la distance entre BQs suit rigoureusement, de manière symétrique, la même variation que la densité surfacique. L'impact du diamètre des BQs est en effet négligeable par rapport à l'évolution de la densité. Nous avons représenté sur la Figure 2.10 la variation de la distance entre BQs en fonction du débit d'arsine pour les différentes épaisseurs d'InAs déposées.

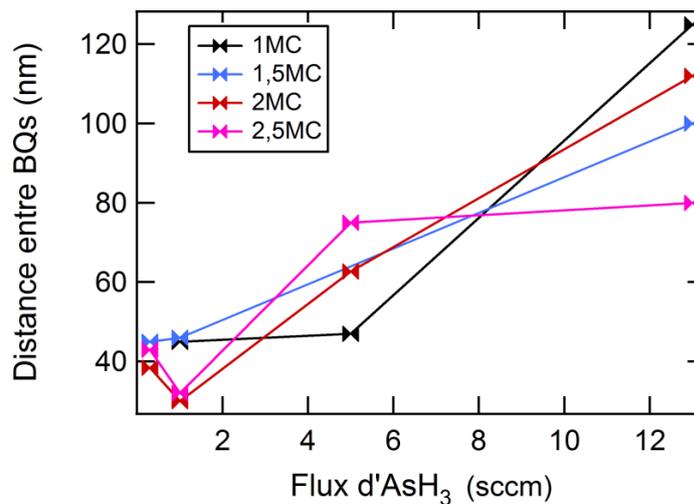


Figure 2.10 : Evolution de la distance entre BQs en fonction du débit d'arsine.

Ainsi, grâce au contrôle de la densité des BQs par la quantité d'InAs déposée et le débit d'arsine, nous pouvons également contrôler la distance inter-BQs d'une trentaine de nm à plus de 120 nm, ce qui permet de passer d'un fort couplage électronique à un très faible.

2.3.3 Dimension des boîtes en fonction des paramètres de croissance

2.3.3.1 Hauteur des boîtes quantiques

Nous étudions d'abord l'évolution de la hauteur des boîtes en fonction des paramètres de croissance. La hauteur des BQs est ainsi présentée en Figure 2.11(a) avec sa dispersion (b). Elles augmentent toutes les deux en fonction du débit d'arsine : en passant de 0,3 sccm à 13 sccm, la hauteur augmente de 36% pour 1 MC, 186% pour 1,5 MC, 109% pour 2 MC et 36% pour 2,5 MC, en conservant une dispersion relative de $\pm 20\%$. Cependant, l'évolution de la hauteur avec l'épaisseur d'InAs déposée est moins importante (augmentation de 10% à 30%, sauf à très bas flux

où l'augmentation est de 174%) et elle n'est pas linéaire. Grâce à la combinaison de ces deux paramètres de croissance, la hauteur peut être sélectionnée de 2,6 à 8,2 nm avec une dispersion de $\pm 20\%$.

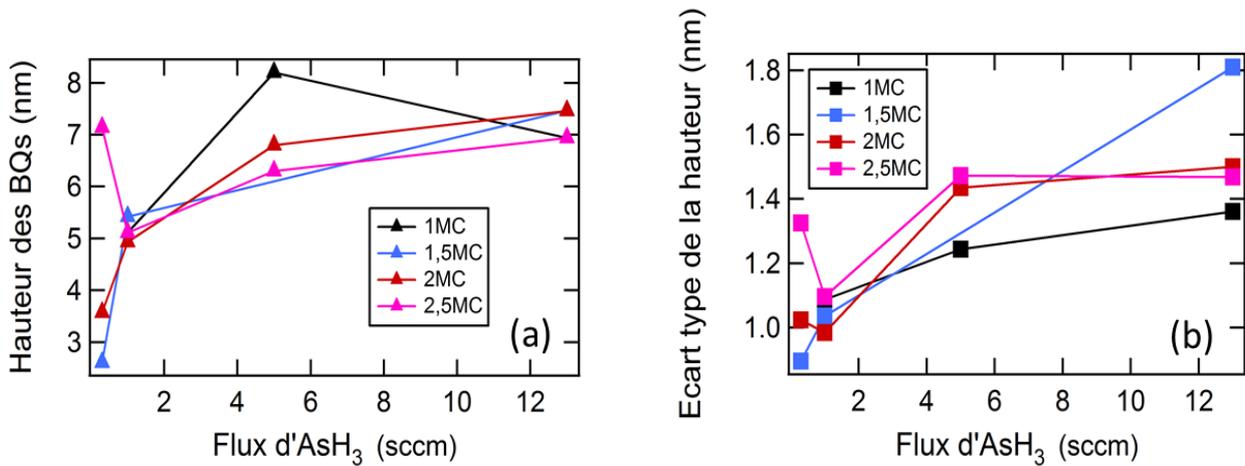


Figure 2.11 : Evolution de la hauteur des BQs (a) et de sa dispersion (b) en fonction du débit d'AsH₃.

2.3.3.2 Rayon des boites quantiques

La Figure 2.12 montre l'évolution du rayon des boites quantiques et de son écart type, en fonction du flux d'AsH₃ et pour quatre quantités d'InAs déposées différentes, variant de 1 à 2,5 monocouches.

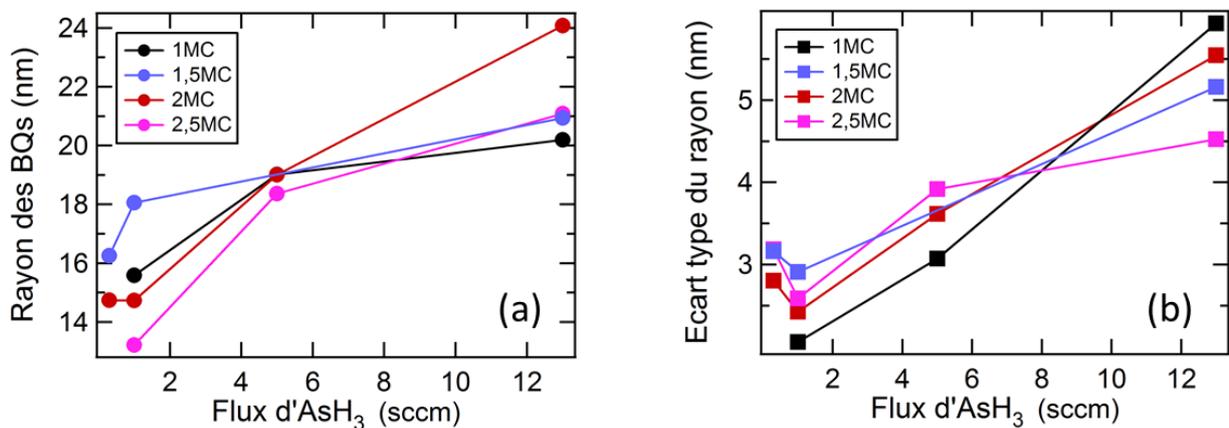


Figure 2.12 : (a) Evolution du rayon des BQs (ronds) et (b) de son écart type (carrés) en fonction du débit d'AsH₃.

L'écart type représente la dispersion de la taille des boites quantiques. Nous remarquons que le lien entre le rayon des BQs et la quantité de monocouches déposées n'est pas direct. A faible flux, le rayon mesurant 15 nm pour 1 MC atteint sa valeur maximale de 18 nm pour 1,5 MC, puis diminue jusqu'à 13 nm en arrivant à 2,5 MC, soit une diminution totale de 28%. A fort flux, il passe de 20 à 24 nm entre 1 MC et 2 MC déposées puis décroît pour arriver à une valeur de 21 nm pour 2,5 MC.

L'amplitude maximale ainsi obtenue en ne modulant que la quantité d'InAs est de 5 nm (augmentation de 39%), obtenue à 1 sccm. En ce qui concerne l'évolution en fonction du débit d'arsine, le résultat est plus marqué.

En effet, lorsque celui-ci augmente, le rayon des boites ainsi que leur dispersion en taille augmentent également : le rayon augmente de 5 à 10 nm en fonction de l'épaisseur d'InAs (augmentation de 33% à 66%) et sa dispersion de 2 à 3 nm (soit une dispersion doublée). L'impact du débit d'arsine est donc plus important. Ainsi, grâce à ces deux paramètres de croissance, nous pouvons presque doubler le rayon des boites, et l'ajuster de 13 à 24 nm en prenant en compte les écarts de taille entre les boites que cela entraîne : $13 \text{ nm} \pm 15\%$ et $24 \text{ nm} \pm 20\%$.

2.3.3.3 Facteur de forme

La hauteur et le rayon des BQs suivent une évolution semblable en fonction des paramètres de croissance. Il est intéressant de voir si cette évolution est identique et ainsi, si les BQs conservent la même forme ou s'allongent dans une des directions. Par conséquent, le facteur de forme, qui est le rapport du diamètre moyen sur la hauteur moyenne des BQs, est calculé pour les différents paramètres de croissance et est présenté à la Figure 2.13 en fonction du débit d'arsine.

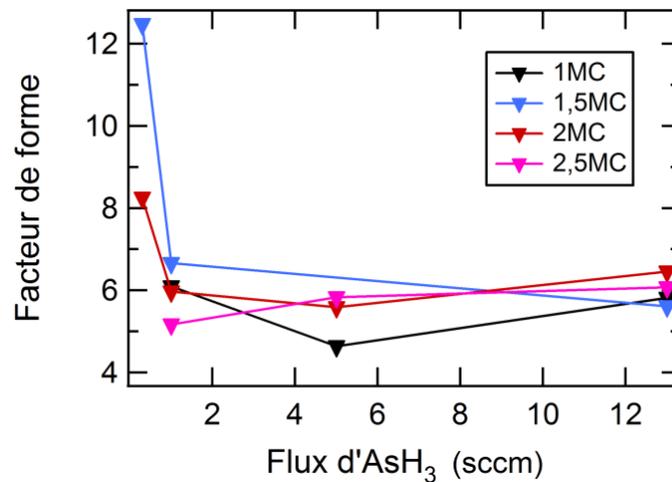


Figure 2.13 : Facteur de forme des BQs (rapport du diamètre sur la hauteur) en fonction du débit d'arsine et pour différentes épaisseurs d'InAs déposées.

Nous observons que, mis à part le très bas débit (0,3 sccm), où les BQs peinent à se former et sont beaucoup moins hautes (sauf pour une épaisseur de 2,5 MC), le facteur de forme varie peu et reste autour de 6. Les BQs maintiennent donc leur forme même en doublant presque de taille. Ceci peut s'expliquer par une forme optimale par rapport à l'énergie de surface.

Bilan des mesures par AFM

Pour conclure sur cette partie, c'est majoritairement le débit d'arsine qui contrôle les propriétés structurales des BQs, la quantité d'InAs déposée est plutôt un levier secondaire pour affiner les propriétés. Comparé aux forts débits, pour les débits plus faibles, les BQs sont une fois et demie plus petites (en rayon et hauteur) et moins dispersés en taille. La densité est quant à elle quatre fois plus forte, et peut même être ajustée de 10^{10} à 10^{11} cm^{-2} grâce à l'épaisseur d'InAs, pour une distance entre BQs trois fois plus faible. Ce qui nous accorde un large choix au niveau des paramètres géométriques, que voici :

- Rayon de $13 \text{ nm} \pm 15\%$ à $24 \text{ nm} \pm 20\%$.
- Hauteur de $2,6$ à $8,2 \text{ nm}$ avec une dispersion de $\pm 20\%$.
- Densité de $1,32 \cdot 10^{11}$ à $1,31 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$
- Distance entre BQs de 30 à 125 nm .

Il est à rappeler que ces paramètres dépendent les uns des autres. Par exemple, la densité aura tendance à être plus forte pour des boîtes plus petites. Le Tableau 1.4 est un bilan des résultats obtenus pour tous les échantillons étudiés.

Nous avons représenté, à la Figure 2.14, l'évolution des deux paramètres les plus importants de cette étude structurale : la densité des BQs pour le couplage électronique, comme les valeurs de la distance inter-BQs sont trop imprécises aux forts flux, et leur hauteur pour la photoluminescence.

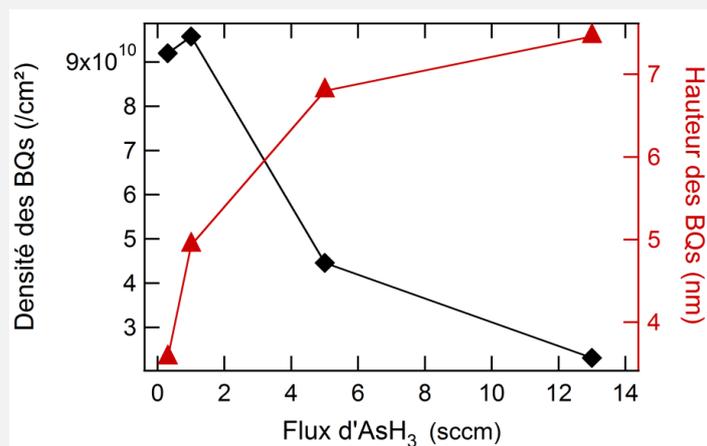


Figure 2.14 : Bilan de l'évolution des paramètres structuraux à 2 MC qui nous intéressent : densité pour le couplage (les valeurs de la distance inter-BQs sont trop imprécises aux forts flux) et la hauteur pour la photoluminescence.

Débit d'AsH ₃	InAs déposé					
	1 MC	1,5 MC	2 MC	2,5 MC		
0,3 sccm	R=/ H=/ D=/ d _{BQ-BQ} =/	R=16,3nm H=2,6nm D=7,16 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =45nm	R=14,7nm H=3,6nm D=9,2 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =38nm	R=18nm H=7,1nm D=5,02 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =43nm		
	1 sccm	R=15,6nm H=5,1nm D=5,5 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =45nm	R=18,1nm H=5,4nm D=5,65 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =46nm	R=14,7nm H=4,9nm D=9,58 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =30nm	R=13,2nm H=5,1nm D=13,2 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =32nm	
		5 sccm	R=19nm H=8,2nm D=2,81 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =47nm		R=19nm H=6,8nm D=4,46 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =63nm	R=18,4nm H=6,3nm D=5,47 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =75nm
			13 sccm	R=20,2nm H=6,9nm D=1,31 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =125nm	R=20,9nm H=7,5nm D=2,31 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =100nm	R=24,1nm H=7,5nm D=2,31 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =110nm

Tableau 1.4 : Récapitulatif des résultats obtenus pour les propriétés structurales des différents échantillons. *R* correspond au rayon, *H* à la hauteur, *D* à la densité et *d_{BQ-BQ}* à la distance entre BQs.

Ces paramètres interdépendants ont également une influence directe sur les propriétés spectrales des BQs, que nous étudierons dans la partie suivante. En effet, la longueur d'onde d'émission dépend principalement de la hauteur des BQs. Le diamètre a quant à lui un effet sur la séparation entre états excités (dépendant également de la hauteur des BQs) : plus il est faible, plus les états excités sont écartés.

2.4 Propriétés spectrales des BQs

Les propriétés spectrales de base des échantillons, telles que la longueur d'onde d'émission et sa largeur à mi-hauteur, sont mesurées par photoluminescence (PL). C'est une technique couramment utilisée dans la caractérisation optique des semi-conducteurs car elle a pour avantages d'être rapide, non destructive et relativement simple à mettre en œuvre.

2.4.1 Principe de la Photoluminescence et conditions expérimentales

Son principe (Figure 2.15) consiste à exciter avec une source lumineuse intense (un laser) le matériau semi-conducteur ayant une énergie de bande interdite plus faible que l'énergie du photon incident. Sous l'effet du laser, des paires électrons-trous sont générées dans le semi-conducteur par absorption des photons incidents. Les porteurs ainsi créés relaxent ensuite par différentes voies vers les plus bas niveaux d'énergie où ils se recombinent en générant, par émission spontanée, un photon d'énergie semblable à l'énergie de bande interdite si la puissance d'excitation est faible. Elle renseigne ainsi sur la longueur d'onde d'émission, sa largeur, et le rendement de PL, lié à la densité de défauts.

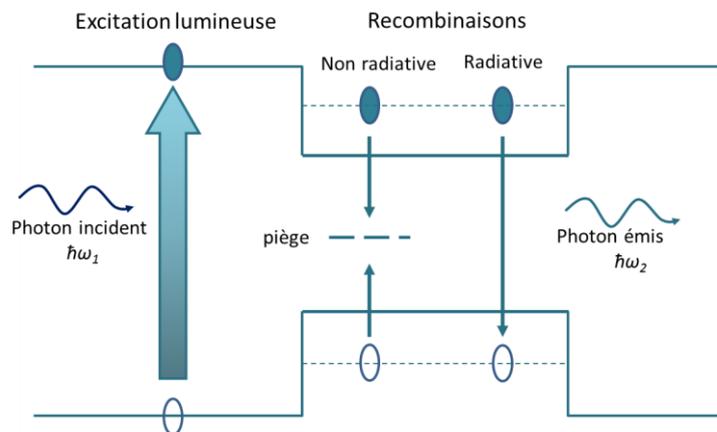


Figure 2.15 : Schéma de principe de la photoluminescence.

Dans le cas des BQs, comme nous l'avons expliqué au Chapitre 1, il est nécessaire de distinguer la photoluminescence d'ensemble et de boîtes uniques. D'ailleurs, nous avons vu précédemment lors des caractérisations structurales que les échantillons comportent des BQs de tailles différentes, avec dans certaines conditions de croissance de très grandes dispersions (variation de $\pm 20\%$). Le spectre de PL, réalisé en général avec des spots de pompe de l'ordre d'une centaine de micromètres de diamètre, est donc un spectre inhomogène large et Gaussien, de largeur à mi-hauteur renseignant sur la dispersion des BQs, superposant l'émission homogène de chaque famille de boîtes de même dimension.

Dans cette étude, nous réalisons uniquement de la photoluminescence d'ensemble à température ambiante, dans le but d'obtenir les informations sur la longueur d'onde d'émission, la distribution en taille des BQs encapsulées et les éventuels défauts impactant le rendement de la PL. Nous rappelons que les mesures de PL sont ici réalisées avec les BQs de surface, pouvant impacter nos mesures. Ce constat sera vérifié et commenté dans la partie 2.4.4.

La pompe (modèle MGL-III-532) est un laser à état solide YAG (grenat d'yttrium et d'aluminium) pompé par une diode puis doublé en fréquence pour obtenir une émission laser continue à 532 nm avec une puissance que nous limitons à 30 mW pour les mesures (sinon puissance maximale de 300 mW). Cette limite est imposée afin d'éviter un échauffement de l'échantillon et un peuplement important des BQs. A cette longueur d'onde, des paires électrons-trous sont formées jusque dans l'InP. L'émission spontanée des BQs est récoltée par injection dans une fibre et analysée par un spectromètre NIRQuest. Toutes les mesures sont faites à puissance quasiment constante ($29 \text{ mW} \pm 1 \text{ mW}$), pour comparer directement la PL des différents échantillons. De plus, un échantillon de référence est utilisé lors de chaque série de mesures pour étalonner le montage en intensité de PL, et permet de normaliser les intensités des différents échantillons de manière précise lors des comparaisons.

2.4.2 Evolution de la longueur d'onde d'émission des BQs

Les spectres de photoluminescence obtenus pour un débit d'arsine de 1 sccm et pour différentes épaisseurs déposées ainsi que ceux obtenus pour une épaisseur de 2 MC avec différents débits sont présentés à la Figure 2.16 (a) et (b).

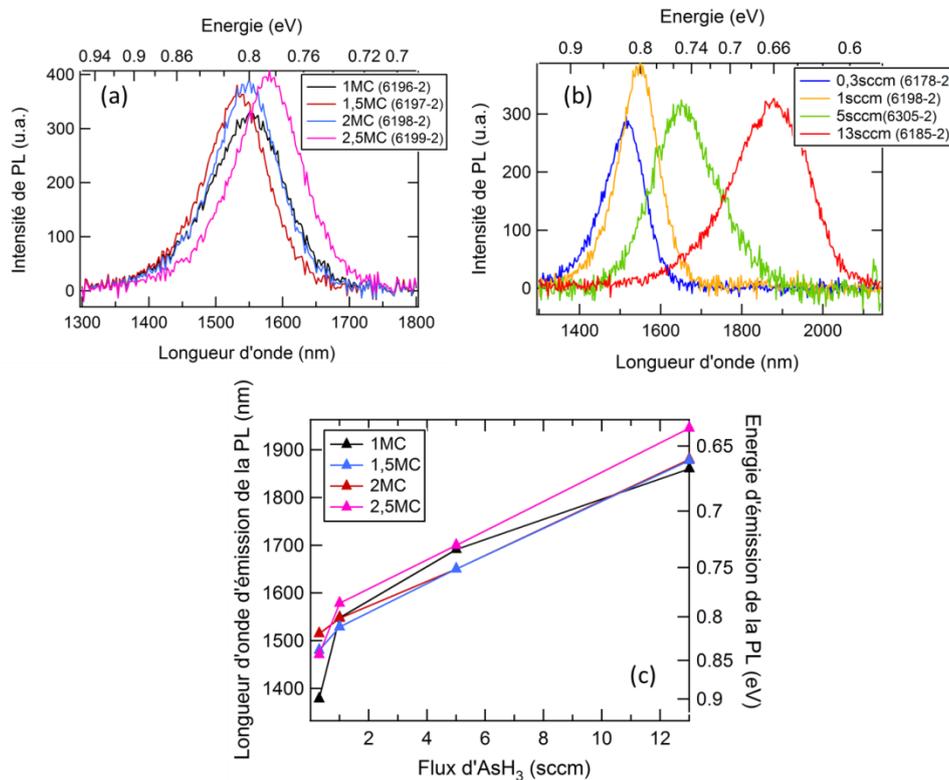


Figure 2.16 : Spectres de photoluminescence pour (a) différentes épaisseurs d'InAs déposée avec un flux d'arsine constant de 1 sccm et (b) pour différents flux d'arsine à 2 MC. (c) Bilan de l'évolution de la longueur d'onde d'émission (en nm et eV) en fonction du débit d'AsH₃ pour toutes les épaisseurs d'InAs étudiées.

La figure montre également un bilan de toutes les mesures sous forme d'abaque (c). Nous remarquons que la quantité d'InAs déposée permet de modifier légèrement la longueur d'onde, d'une cinquantaine de nm à 100 nm pour un très faible débit (0,3 sccm), mais ne présente pas de relation linéaire. En ce qui concerne l'évolution des spectres de PL avec le débit d'arsine, le résultat est bien plus probant : la longueur d'onde augmente quasiment linéairement avec le flux d'arsine et de façon considérable. En effet, les BQs à bas flux peuvent émettre de 1400 à 1500 nm en fonction de l'épaisseur d'InAs, puis autour de 1900 nm pour le débit maximal (13 sccm). La longueur d'onde peut donc être augmentée de presque 500 nm, soit une augmentation de 30% en moyenne pour chacune des épaisseurs déposées.

Ces résultats sont en accord avec les mesures effectuées par AFM, où les dimensions des nanostructures et surtout la hauteur, augmentent considérablement avec le débit d'arsine, entraînant une réduction du confinement quantique et donc une énergie d'émission plus faible.

2.4.3 Elargissement inhomogène de nos échantillons

Pour ce qui est de la largeur à mi-hauteur des spectres de PL (Figure 2.17), nous la présentons en meV, car la différence de la longueur d'onde d'émission est significative. La largeur à mi-hauteur à bas débit, relativement faible et quasiment constante pour les différentes épaisseurs déposées, oscille entre 65 et 70 meV. Elle augmente considérablement (au maximum de 46%) jusqu'à un débit de 5 sccm, où elle vaut entre 90 et 95 meV. Elle finit par diminuer à 13 sccm, passant à environ 80 meV. Ainsi à fort flux (≥ 5 sccm), la largeur inhomogène est plus grande, car la dispersion de la taille (rayon et surtout hauteur) des BQs est plus importante, avec un maximum de dispersion atteint dès 5 sccm. D'ailleurs, ces résultats coïncident avec l'évolution de la dispersion de la hauteur obtenue par AFM (Figure 2.11).

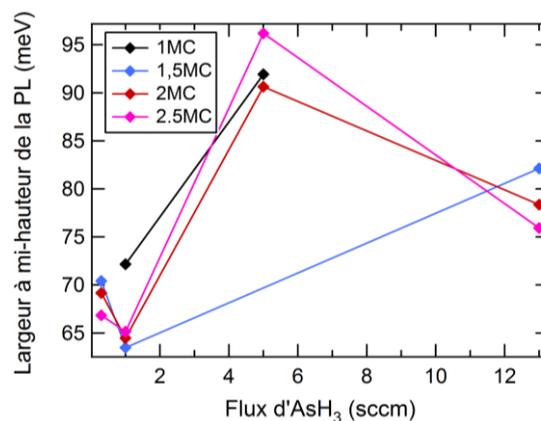


Figure 2.17 : Evolution de la largeur à mi-hauteur (en meV) du spectre de PL en fonction du débit d'arsine. Les points sont reliés pour faciliter la lecture de la figure.

2.4.4 Rendement de la photoluminescence

Sur les spectres présentés à la Figure 2.16, nous remarquons que les intensités de PL sont sensiblement similaires, mais il faut faire attention à la réabsorption des BQs de surface. Afin de vérifier l'impact du plan de surface sur la photoluminescence du plan enterré, ce plan et la couche de $Q_{1,18}$ sous-jacente sont retirés par attaque chimique sélective sur les échantillons 6178-2 (2 MC – 0,3 sccm), 6198-2 (2 MC – 1 sccm) et 6185-2 (2 MC - 13 sccm), et la PL est de nouveau effectuée. Les spectres de PL avant et après retrait des échantillons crûs avec un débit de 1 et 13 sccm sont présentés à la Figure 2.18.

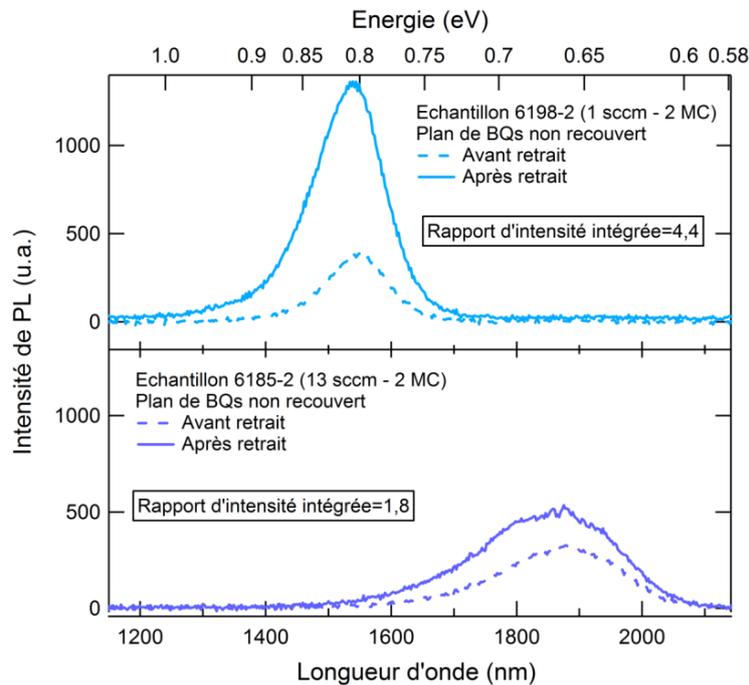


Figure 2.18 : Spectres de photoluminescence des échantillons 6198-2 (en haut) et 6185-2 (en bas) avant (courbe pointillée) et après retrait (courbe pleine) du plan de BQs de surface et de la couche barrière sous-jacente.

Nous observons une nette différence de l'intensité de PL, avec un facteur 3,6 et 1,5 pour 1 et 13 sccm, en faveur de l'échantillon après retrait. Il en va de même pour l'intensité de PL intégrée, dont les rapports plus importants sont de 4,4 et de 1,8 respectivement. En effet, les spectres après retrait sont plus larges de 20 nm côté basse longueur d'onde, soit haute énergie. Il est à noter que l'effet du plan de surface concernant l'intensité est bien plus important autour de 1,55 μm que de 1,9 μm . Nous pouvons en conclure que le plan de BQs du dessus absorbe une partie de l'émission (de haute énergie) du plan enterré puis relaxe de manière non radiative ou avec une très faible efficacité. Ainsi, les spectres de PL mesurés sont conformes au niveau de la longueur d'onde d'émission, mais les valeurs de la largeur à mi-hauteur et du rendement de PL sont sous-estimées : de 20 nm soit 11

meV, et d'un facteur allant de 1,8 à 4,4 en fonction de la longueur d'onde d'émission pour l'intensité intégrée.

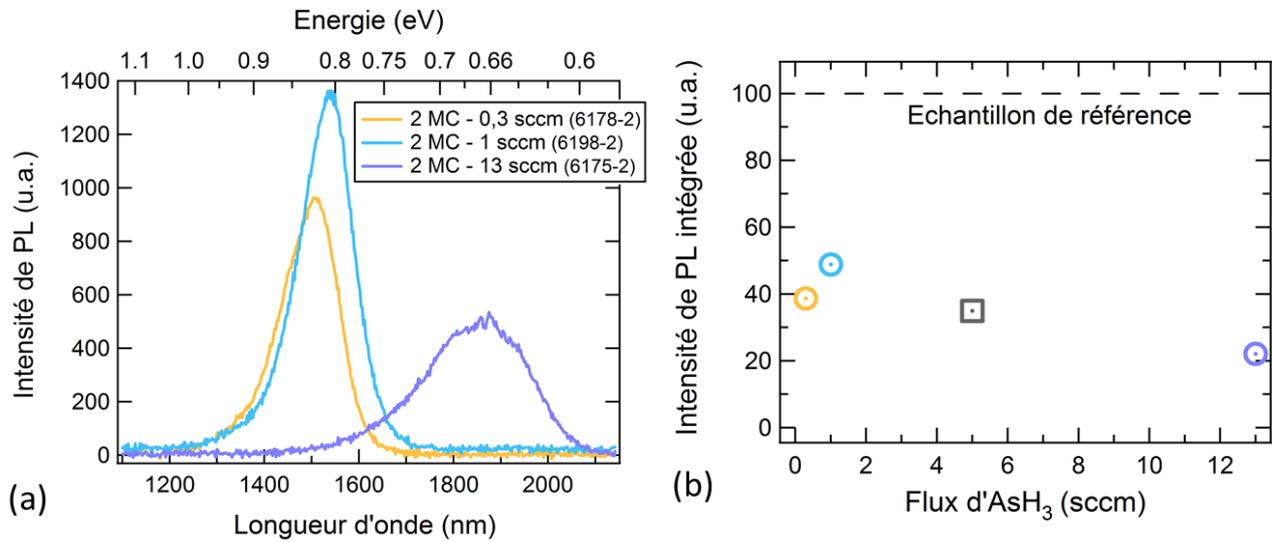


Figure 2.19 : (a) Spectres de PL réalisés après retrait du plan de BQs de surface et de sa couche barrière sous-jacente pour 3 échantillons crûs sous différents flux d'AsH₃. (b) Evolution de l'intensité de PL intégrée, normalisée par rapport à l'échantillon de référence en PL (valeur fixée à 100), en fonction du flux d'arsine et pour une quantité d'InAs déposée de 2 MC. Les cercles représentent les données mesurées alors que le rectangle est une estimation.

Par conséquent, nous avons comparé l'intensité de PL des spectres uniquement après retrait, que nous avons tracé à la Figure 2.19(a). Pour qualifier le rendement de PL, compte tenu des largeurs à mi-hauteur différentes pour les 3 échantillons, nous considérons l'intensité de PL intégrée. Nous reportons ainsi, à la Figure 2.19(b), les intensités intégrées mesurées en fonction du débit d'arsine, pour 0,3, 1 et 13 sccm. Le point à 5 sccm (représenté par un carré) est une estimation, effectuée en appliquant un facteur correctif déduit des observations précédentes à la PL de l'échantillon 6305-2 comportant le plan de BQs de surface. Nous constatons que le rendement de PL est plutôt constant (amélioration de 20% pour 1 sccm), excepté pour le flux de 13 sccm où il est presque deux fois plus faible. Comme pour toutes les mesures nous pompons les nanostructures à peu près à la même intensité, celle-ci étant inférieure à l'intensité de saturation, le rendement de PL doit être constant (ou légèrement plus fort), sauf s'il y a une dégradation du matériau liée aux conditions de croissance, ce qui génère des défauts. Par conséquent pour les faibles débits et forts débits (mais non-extrême), nous avons des plans de BQs présentant peu de défauts non-radiatifs, essentiels à la réalisation du laser.

Bilan de l'ensemble des caractérisations

Ainsi, grâce aux mesures d'AFM et de PL, nous avons vu que les propriétés des boîtes quantiques peuvent être sélectionnées :

- Rayon de $13 \text{ nm} \pm 15\%$ à $24 \text{ nm} \pm 20\%$
- Hauteur de 2,6 à 8,2 nm avec une dispersion de $\pm 20\%$
- Densité de $1,32 \cdot 10^{11}$ à $1,31 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$
- Distance entre BQs de 30 à 125 nm
- Emission de 1400 à 1900 nm
- Largeur à mi-hauteur de 65 à 95 meV (+11 à 7 meV pour des plans encapsulés)
- Rendement de PL constant à intensité de pompage identique et hors saturation, excepté pour un flux de 13 sccm où il y a une dégradation.

Néanmoins, la gestion des paramètres de croissance ne permet pas de contrôler la densité des boîtes indépendamment de la longueur d'onde d'émission, d'où la difficulté d'obtenir une émission à 1,55 μm tout en choisissant la densité. Par ailleurs, l'intensité de PL d'un seul plan de BQs et son rendement sont actuellement insuffisants pour obtenir le gain nécessaire à l'émission du VECSEL.

2.5 Design de la zone active pour le VECSEL

2.5.1 Contrôle de la longueur d'onde d'émission

Pour répondre en partie à cette problématique, un procédé de croissance a été mis au point au laboratoire [132] : un procédé reposant sur une encapsulation double, le double-cap (DC). Il permet de définir une hauteur maximale pour les BQs, et in fine, de contrôler leur longueur d'onde d'émission. Ce procédé est illustré par la Figure 2.20.

Après formation des boîtes d'InAs, une couche de $\text{Q}_{1,18}$ est déposée. Sa fine épaisseur permet de ne recouvrir que les petits îlots, tout en laissant les plus gros dépasser. Ensuite, un recuit sous flux de $\text{P}_2 + \text{As}_2$ est effectué. Grâce aux échanges As/P, la hauteur des BQs dépassant de la couche barrière est réduite. Les plus petites boîtes, protégées par la première couche, ne subissent aucune modification de leur hauteur. Ainsi, la hauteur maximale des BQs fabriquées avec ce procédé est égale à l'épaisseur de $\text{Q}_{1,18}$ (dite de 1^{er} cap) déposée lors de la première encapsulation. Enfin, la deuxième couche barrière est déposée pour assurer le confinement des BQs.

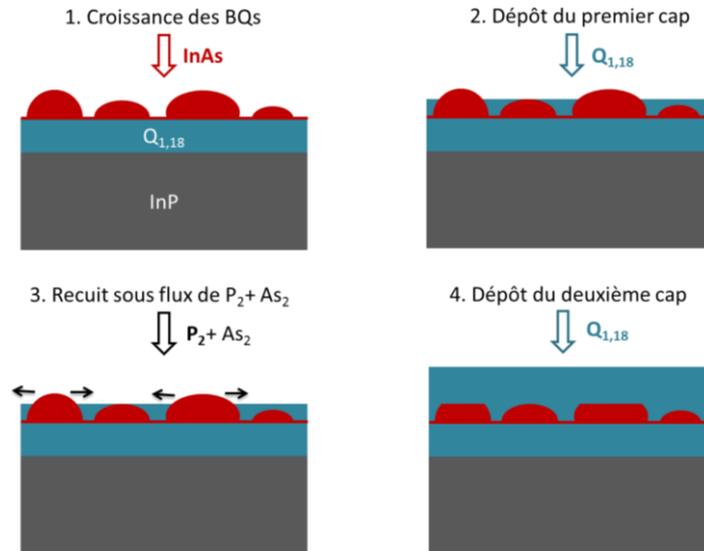


Figure 2.20 : Etapes du procédé de double-cap qui permet le contrôle de la longueur d'onde d'émission des BQs.

Grâce au double-cap comme le montre la Figure 2.21, on peut ainsi retrouver la longueur d'onde d'émission ciblée à 1520 nm, pour la réalisation du VECSEL émettant à 1,55 μm , en ajustant la hauteur des boîtes. Cependant, pour de très grandes boîtes (formées sous un flux d'arsine de 13 sccm), il est tout de même très difficile de « raboter » suffisamment leur hauteur pour passer d'une longueur d'onde de 1900 nm à 1520 nm. En effet, nous observons que même si l'effet du DC est bien présent, la plus basse longueur d'onde atteinte est de 1630 nm, ce qui est encore à optimiser.

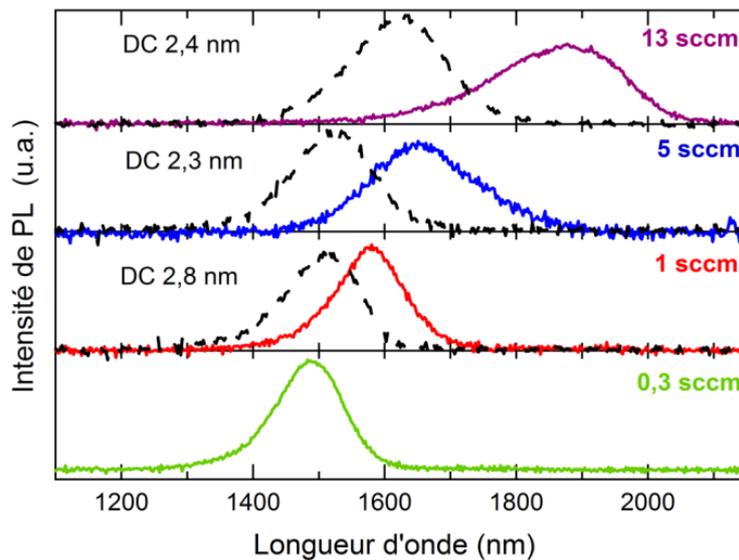


Figure 2.21 : Spectres de photoluminescence pour des échantillons fabriqués sous différents flux d' AsH_3 , de 0,3 à 13 sccm. En pointillés, le spectre de photoluminescence après double cap, dont l'épaisseur est indiquée.

Par ailleurs, cette technique permet également de réduire la dispersion de la hauteur des boîtes, car toutes les BQs dépassant de la hauteur de DC sont ajustées. Seules les plus petites gardent leur

hauteur initiale. Ce qui réduit également légèrement la distribution inhomogène (Figure 2.22). Sans DC, pour l'échantillon 6304-2 (1 MC – 5 sccm) émettant à 1700 nm, la largeur inhomogène est de 213 nm (92 meV). Elle est réduite à 140 nm (80 meV) pour un « recentrage » autour de 1500 nm.

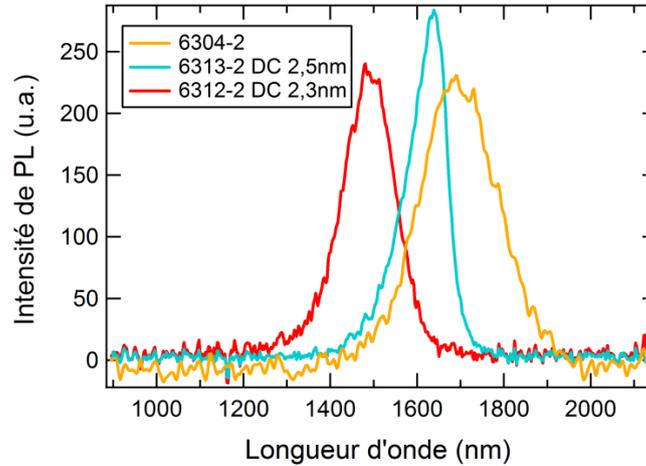


Figure 2.22 : Comparaison de la PL d'échantillons fabriqués sous 1MC – 5sccm pour différentes épaisseurs de DC. Spectres de PL de l'échantillon 6304-2 n'ayant pas subi de DC (courbe orange), de l'échantillon 6312-2 avec un DC de 2,3 nm (courbe rouge) et de l'échantillon 6313-2 avec un DC de 2,5nm (courbe turquoise).

2.5.2 Empilement des plans de BQs

Nous nous intéressons à présent à la qualité de l'empilement des plans de BQs, étape indispensable pour obtenir le gain nécessaire à l'émission du laser. Cette étape constitue une difficulté supplémentaire dans la conception du laser, notamment à cause des interactions entre plans, pouvant rajouter un couplage additionnel, néfaste pour une émission bi-fréquence robuste. Pour vérifier d'une part la qualité de l'empilement et d'autre part que la couche barrière limite ce couplage vertical, nous mesurons puis comparons la photoluminescence de plusieurs échantillons crus dans les mêmes conditions (1 sccm - 2MC), mais comportant un nombre différent de plans et/ou une épaisseur différente de couche barrière (appelée ici espaceur) :

- 1 plan : échantillon 6272-2
- 5 plans - espaceur de 15 nm : échantillon 6273-2
- 5 plans - espaceur de 30 nm : échantillon 6274-2.

Les résultats de la photoluminescence sont présentés à la Figure 2.23. Nous observons une largeur à mi-hauteur identique pour les trois échantillons, avec quasiment la même longueur d'onde d'émission, à moins de 15 nm près ; cette fluctuation est attribuée à la croissance par épitaxie. Quant au rendement de PL, il est nettement amélioré lors de l'empilement. La PL n'étant pas

effectuée en condition de saturation mais à intensité de pompage identique entre les deux échantillons, le rendement ici n'est pas proportionnel à la quantité de plans. Comme nous voyons tout de même une nette augmentation de l'intensité de PL (multipliée par 3), l'empilement de 5 plans prouve sa bonne qualité car il ne présente pas de défauts qui pourraient être des centres de recombinaison non-radiative.

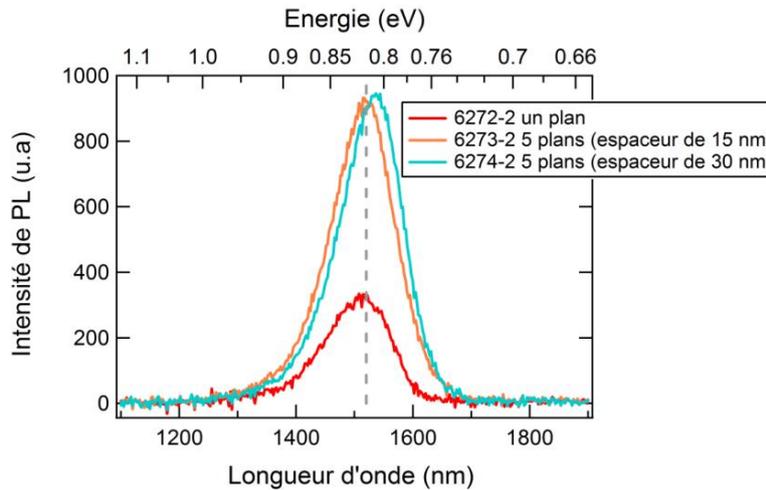


Figure 2.23 : Spectres de PL pour différents empilements de plans de BQs : un plan (courbe rouge), 5 plans avec un espaceur de 15 nm (courbe orange) et 5 plans également mais avec un espaceur de 30 nm (courbe turquoise). Les traits pointillés gris sont une aide pour situer 1520 nm.

Dans l'objectif final d'avoir un gain modal important dans le VECSEL, nous avons fait le choix d'empiler les plans avec des espaceurs aussi petits que possible, tout en évitant la dégradation du matériau et le couplage électronique vertical entre les plans. Ce type de couplage est présenté dans la référence [103] sur le même type de BQs. La PL de l'empilement suffit pour voir s'il est présent, car il entraîne un décalage spectral conséquent (~ 50 meV, soit ici 90 nm) vers les hautes longueurs d'onde. Or, nous ne constatons pas cette différence entre un plan de BQs et 5 plans comportant des espaceurs de 15 ou 30 nm. Ainsi pour ces deux épaisseurs, les 5 plans sont découplés. Par conséquent 15 nm de barrière suffisent à empêcher le couplage vertical dans la structure. Cette épaisseur de $Q_{1,18}$ sera donc appliquée pour l'empilement de la zone active du VECSEL.

2.6 Conclusion du Chapitre 2

Pour conclure, nous avons le choix entre deux possibilités quant au débit d' AsH_3 à appliquer pour former des BQs de qualité, c'est-à-dire sans dégradation du rendement de PL, et la possibilité d'ajuster la longueur d'onde à 1520 nm grâce au DC pour obtenir une émission laser proche de 1550 nm:

- 1 sccm, avec une forte densité de BQs augmentant le gain pour l'émission laser, mais en contrepartie apporte probablement un fort couplage
- 5 sccm, avec une densité plus faible (globalement divisée par deux) mais un couplage réduit.

En ce qui concerne la quantité d'InAs déposée, impactant moins les propriétés que le débit d'arsine, nous choisissons 2 MC qui globalement démontre de bonnes caractéristiques sur tous les points abordés, aussi bien pour un flux de 1 sccm que pour 5 sccm. Les propriétés obtenues avec ces deux combinaisons sont résumées dans le Tableau 1.5.

InAs déposé Débit d'AsH ₃	2 MC
1 sccm	R=14,7nm H=4,9nm D=9,58 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =30nm λ=1510nm LMH=65meV
5 sccm	R=19nm H=6,8nm D=4,46 10 ¹⁰ cm ⁻² d _{BQ-BQ} =63nm λ=1520nm LMH=80meV

Tableau 1.5 : Bilan des principaux résultats obtenus pour un faible débit d'arsine (1 sccm) et un fort débit (5 sccm). La case colorée en bleu correspond aux paramètres choisis pour la fabrication de la zone active.

Pour la réalisation d'un premier dispositif, il est préférable d'appliquer un débit de 1 sccm, malgré l'entraînement d'un couplage plus fort entre nanostructures. En effet la quantité de BQs deux fois plus importante est favorable pour franchir le seuil de l'émission laser. De plus, l'empilement des plans est plus facile car les BQs sont plus petites, ce qui permet d'éviter leur relaxation plastique lors de l'empilement. Les défauts (dislocations) conduisant à des centres de recombinaison non-radiative sont ainsi réduits, permettant un meilleur rendement de PL.

Nous retenons ainsi un flux d'arsine de 1 sccm et une épaisseur de 2 MC pour la croissance de la zone active. Les paramètres de croissance et les procédés sont à présent optimisés pour réaliser l'empilement de plans de BQs, c'est-à-dire la zone active du laser. Afin d'évaluer le couplage entre BQs, qu'il soit photonique ou électronique, nous caractériserons dans le chapitre suivant un empilement de plans de boîtes quantiques à forte densité surfacique par spectroscopie non-linéaire de saturation : le Spectral Hole Burning.

Chapitre 3

Spectroscopie de saturation d'absorption

3.1 Principe de la saturation d'absorption	60
3.1.1 Absorption d'un système à deux niveaux.....	60
3.1.2 Absorption d'un ensemble homogène.....	62
3.1.3 Absorption d'un ensemble inhomogène.....	64
3.1.4 Le Spectral Hole Burning	65
3.1.5 Absorption des puits quantiques.....	65
3.2 Spectroscopie des boites et bâtonnets quantiques	68
3.2.1 Les différentes techniques pour obtenir la largeur homogène	68
3.2.2 Elargissement homogène en température.....	70
3.2.3 Etat de l'art des études spectroscopiques de la largeur homogène des BQs et BatQs.....	72
3.3 Montage expérimental	73
3.3.1 Lasers de pompe et de sonde.....	74
3.3.2 Contrôle et mise en forme de la sonde.....	76
3.3.3 Contrôle des profils de mode de la pompe et de la sonde sur l'échantillon.....	85
3.3.4 Détection et traitement des données	88
3.4 Echantillons étudiés	93
3.4.1 Echantillon de référence pour l'étalonnage : les PQs.....	93
3.4.2 Echantillon à bâtonnets et boites quantiques.....	94
3.5 Spectroscopie de saturation d'absorption de la structure à puits quantiques	97
3.5.1 Interférences.....	97
3.5.2 Résolution du problème de « marches »	98
3.5.3 Validation du montage expérimental	100
3.6 Spectroscopie et comparaison des structures à BQs et à BatQs	108
3.6.1 A basse température.....	108
3.6.2 Elargissement homogène et inhomogène en température	118
3.6.3 Mesures à température ambiante	125
3.7 Conclusion sur le couplage électronique et photonique	128

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, les nanostructures sont très dispersées en taille, rendant le milieu inhomogène et élargissant par conséquent le spectre d'absorption et d'émission des échantillons, qui devient la somme des contributions homogènes des nanostructures de même énergie. La largeur homogène des nanostructures est un paramètre crucial dans la réalisation d'un laser bi-fréquence : le couplage entre les deux longueurs d'onde est maximal tant que leur écart spectral est inférieur ou égal à la largeur homogène, ce qui rend l'oscillation simultanée des deux modes peu robuste. Il faut donc réduire la largeur homogène au maximum et savoir sur quel type de structure celle-ci est minimale. Sur des ensembles inhomogènes, par opposition aux puits quantiques, elle ne peut pas être obtenue par des techniques de spectroscopie « classiques » [133], telles que la spectroscopie d'absorption ou la photoluminescence. En effet, la largeur inhomogène, bien plus grande, masque la partie homogène mesurée par ces techniques de spectroscopie d'ensemble [69] non-résolues ni spectralement ni temporellement.

Pour nous affranchir de l'élargissement inhomogène, nous avons recours à la spectroscopie de saturation d'absorption (ou de transmission différentielle), exploitant le phénomène de Spectral Hole Burning (SHB), dont le principe est illustré par la Figure 3.1. Sur cette figure, nous observons le spectre d'absorption d'un ensemble inhomogène (en bleu), comportant les réponses homogènes des différentes nanostructures. Grâce à un laser de pompe suffisamment puissant et de faible largeur de raie pour saturer l'absorption d'une seule famille de BQs, un trou est creusé dans le spectre d'absorption inhomogène autour de la longueur d'onde de la pompe, correspondant à la famille de BQs ; il s'agit du phénomène de SHB (flèche rouge). Un laser de sonde permet de sonder le spectre d'absorption saturée. La largeur à mi-hauteur du trou spectral est directement reliée à la largeur homogène par une relation que nous expliquerons. Cette technique repose ainsi sur un montage de type pompe-sonde réalisé sur une surface comprenant un grand nombre de nanostructures et résolu spectralement, ce qui permet de s'affranchir de l'élargissement inhomogène dû aux fluctuations de leur taille. La spectroscopie de transmission différentielle permet de quantifier le couplage photonique (largeur homogène) et de qualifier le couplage électronique (interactions entre les nanostructures).

Dans ce chapitre, nous expliquerons dans un premier temps la technique de spectroscopie de saturation d'absorption. Puis, nous détaillerons l'état de l'art sur la spectroscopie générale des bâtonnets et boîtes quantiques III-V. Dans un second temps, nous présenterons le montage expérimental et ses spécificités ainsi que son étalonnage et sa validation par l'utilisation d'un échantillon de référence à base de puits quantiques InGaAs. Nous étudierons par la suite deux échantillons : un empilement de boîtes quantiques présentant les conditions de croissance choisies

précédemment (2MC-1scm) ainsi qu'un échantillon réalisé simultanément sur substrat orienté (100), donnant naissance à des bâtonnets quantiques (BatQs) InAs/InP. Nous terminerons ainsi par les résultats obtenus sur les BatQs et les BQs à basse température (77K), puis en remontant jusqu'à température ambiante. Au cours de cette étude, nous mettrons en avant la comparaison directe entre ces deux types de nanostructures.

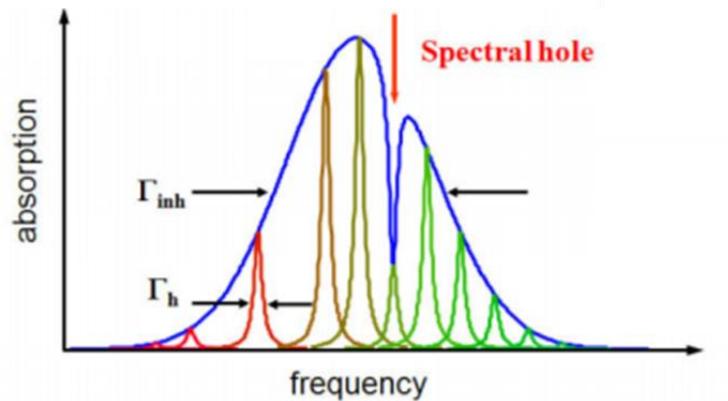


Figure 3.1 : Principe du Spectral Hole Burning dans le spectre d'absorption d'un échantillon inhomogène. Γ_h et Γ_{inh} sont la largeur homogène et inhomogène [134].

3.1 Principe de la saturation d'absorption

Pour cette première partie, nous décrivons le principe de la spectroscopie de saturation d'absorption et du SHB de manière non exhaustive. Le détail des calculs pour arriver à l'expression de l'absorption homogène et inhomogène ne sera pas présenté dans ce manuscrit, et le cheminement détaillé peut être retrouvé dans les références [135]–[138].

3.1.1 Absorption d'un système à deux niveaux

Dans cette première approche simple, les nanostructures étudiées sont considérées en tant que systèmes à deux niveaux fermés. Le système à deux niveaux est défini par un état fondamental numéroté 1, et un état excité numéroté 2, de densités de population N_1 et N_2 respectivement. Les deux niveaux sont couplés l'un à l'autre par des processus d'absorption ou d'émission et de relaxation, mais n'ont aucune transition vers d'autres niveaux. C'est un système fermé dont la densité de population totale $N = N_1 + N_2$ est constante. Le taux d'absorption ou d'émission d'un photon par interaction avec une onde électromagnétique est P , et le seul mécanisme de relaxation considéré est l'émission spontanée du niveau excité vers le niveau fondamental, avec un taux R . La

différence de population entre les deux niveaux est notée $\Delta N = N_1 - N_2$. Le système est représenté à la Figure 3.2.

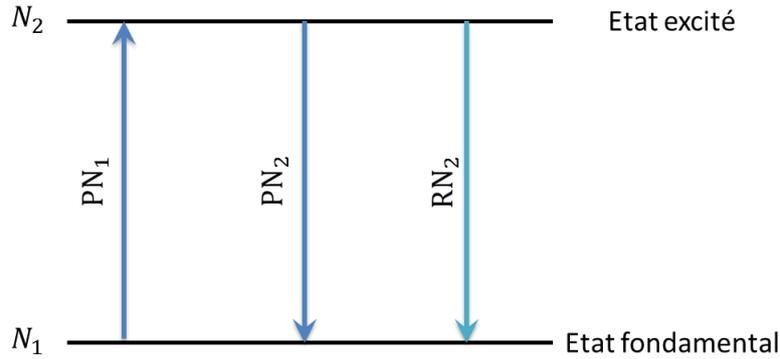


Figure 3.2 : Système à deux niveaux fermé, où le seul mécanisme de relaxation considéré est l'émission spontanée.

L'équation d'évolution pour la densité de population des niveaux est ainsi [136] :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\frac{dN_2}{dt} = -P(N_1 - N_2) + RN_2. \quad (3.1)$$

Nos expériences de saturation d'absorption sont réalisées en régime stationnaire $\frac{dN_i}{dt} = 0$. Les densités de population sont par conséquent :

$$N_1 = N \frac{P + R}{2P + R} \quad (3.2)$$

$$N_2 = N \frac{P}{2P + R}. \quad (3.3)$$

En l'absence de pompage ($P = 0$), l'état excité est totalement dépeuplé : $N_2^{(P=0)} = 0$, par opposition à l'état fondamental : $N_1^{(P=0)} = N$, et $\Delta N^{(P=0)} = N$ est alors maximal. Au contraire, lorsque le taux de pompage P devient bien plus grand que R , $N_1 = N/2$, soit $N_1 = N_2$. Cela signifie que le coefficient d'absorption $\alpha = \sigma\Delta N$, avec σ la section efficace d'absorption, tend vers zéro : le milieu devient transparent. La différence de population est ainsi diminuée en présence d'excitation, et d'après (3.2) et (3.3), son expression générale s'écrit :

$$\Delta N = \frac{N}{1 + 2P/R} = \frac{\Delta N^{(P=0)}}{1 + S} \quad (3.4)$$

avec $S = 2P/R$ le paramètre de saturation. Le coefficient d'absorption saturé d'après (3.4), est [136] :

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + S} \quad (3.5)$$

où α_0 est le coefficient d'absorption non saturé ($P=0$). S représente le degré de saturation d'un système : si $S = 1$, l'absorption homogène est réduite de moitié, et à très forte saturation, l'absorption tend vers 0. C'est sur ce principe qu'est basée la spectroscopie de saturation de l'absorption.

3.1.2 Absorption d'un ensemble homogène

Les équations que nous allons présenter sont valables pour un système à deux niveaux élargi de manière homogène, et le traitement est effectué dans le cadre des équations de Bloch optiques [135]. De ce traitement, il ressort que l'équation simple (3.5) reste vraie au pic $\omega = \omega_0$, et peut être étendue à d'autres valeurs de ω , en écrivant :

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_0(\omega)}{1 + S(\omega)}. \quad (3.6)$$

Le profil spectral de l'absorption d'un ensemble homogène est déterminé par le déphasage. Si le temps de déphasage est constant, l'absorption homogène non-saturée a un profil lorentzien centré à la pulsation ω_0 et de largeur à mi-hauteur γ :

$$\alpha_0(\omega) = \alpha_0(\omega_0) \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (3.7)$$

où $\alpha_0(\omega_0)$ est le coefficient d'absorption homogène non saturé, obtenu à la résonance, écrit α_0 par la suite pour alléger les expressions. Le paramètre de saturation dépend lui aussi de la longueur d'onde à laquelle l'absorption est mesurée (qui est, pour le moment, également la longueur d'onde de saturation) et devient :

$$S(\omega) = S \times \frac{(\gamma/2)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega - \omega_0)^2} \quad (3.8)$$

avec S , la saturation du pic ($S(\omega_0)$), pouvant être décrite de façon plus pratique par l'intensité de saturation I_s , qui correspond à une intensité d'excitation I telle que S vaille 1 :

$$S = I/I_s \quad (3.9)$$

où I_s peut être définie par [135], [139] :

$$I_s = \frac{n \hbar \omega_0}{6 T_1 \sigma_a} \quad (3.10)$$

avec n l'indice de réfraction du matériau. Cette expression apporte une interprétation simple de l'intensité de saturation : pour atteindre celle-ci, il faut envoyer un photon d'énergie $\hbar \omega_0$ sur une surface correspondant à la section efficace σ_a plus rapidement que le temps T_1 nécessaire pour que le système se désexcite spontanément. L'intensité de la saturation peut également être définie de manière à faire apparaître clairement les deux temps caractéristiques T_1 et T_2 , respectivement les temps de vie des porteurs et de décohérence (ou déphasage) [135] :

$$I_s = \frac{nc\varepsilon_0 \hbar^2}{2d^2 T_1 T_2}, \quad (3.11)$$

avec c la célérité, ε_0 la permittivité dans le vide, d le moment dipolaire. T_2 est inversement proportionnel à la largeur homogène, que nous définissons comme la largeur à mi-hauteur de l'absorption homogène, notée γ . Ces deux termes sont ainsi liés par la relation suivante :

$$T_2 = 2\hbar/\gamma. \quad (3.12)$$

Il est à noter que dans certaines références, la largeur homogène est définie comme la demi-largeur à mi-hauteur, mais dans ce cas, $T_2 = \hbar/\gamma$ [138], [140], [141]. L'absorption en fonction de l'intensité, exprimée à travers le paramètre de saturation S , et de la pulsation ω s'exprime donc, d'après les équations (3.6), (3.7) et (3.8) [135], [136] :

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_0(\omega)}{1 + S(\omega)} = \alpha_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \frac{1}{1 + S \times \frac{(\gamma/2)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega - \omega_0)^2}}. \quad (3.13)$$

Lorsque l'absorption homogène est saturée (voir Figure 3.3(a)), elle est ainsi réduite d'un facteur $1 + S(\omega)$, mais sa largeur à mi-hauteur γ_s est plus large que sa largeur non-saturée :

$$\gamma_s = \gamma \sqrt{1 + S}. \quad (3.14)$$

En effet, le paramètre de saturation $S(\omega)$ a un profil lorentzien. La saturation de l'absorption est donc plus importante au centre de son spectre que sur ses bords, où elle finit par devenir nulle. C'est la raison pour laquelle la largeur à mi-hauteur s'élargit avec la saturation.

3.1.3 Absorption d'un ensemble inhomogène

Regardons maintenant ce qu'il se passe en présence d'un ensemble de systèmes à deux niveaux dont les fréquences de résonance ω_0 ne sont pas toutes identiques. On parle alors d'un élargissement inhomogène de la transition. L'absorption d'un ensemble inhomogène $\bar{\alpha}(\omega)$ de systèmes à deux niveaux est différente de l'absorption d'un ensemble homogène $\alpha(\omega)$. Ces systèmes diffèrent uniquement par leur énergie de transition et possèdent donc un même profil spectral d'absorption homogène. Le spectre d'absorption de cet ensemble, appelé spectre d'absorption inhomogène, est le produit de convolution du spectre d'absorption homogène de profil lorentzien $\alpha(\omega)$ et de la distribution du nombre de systèmes en fonction de l'énergie de transition. La distribution inhomogène est gaussienne, centrée en ω_g et d'écart type σ , et s'écrit :

$$g(\omega_0) = g_0 e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_g)^2}{2\sigma^2}}, \quad (3.15)$$

avec g_0 une constante de normalisation. Le coefficient d'absorption de l'ensemble, à partir des équations (3.13) et (3.15), est ainsi :

$$\bar{\alpha}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2(1+S)} g_0 e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_g)^2}{2\sigma^2}} d\omega_0. \quad (3.16)$$

Pour $\omega = \omega_0$, on a :

$$\bar{\alpha}(\omega_0) = \frac{\bar{\alpha}_0(\omega_0)}{\sqrt{1+S}}. \quad (3.17)$$

où $\bar{\alpha}_0(\omega_0)$ est le coefficient d'absorption inhomogène non saturée de la population homogène sondée.

Si on sonde le spectre d'absorption à l'aide d'un seul faisceau laser accordable et intense, la saturation classique de l'ensemble inhomogène ne présente pas de trou, mais présente un profil de Voigt, dont l'intensité dépend de la saturation avec un facteur $\frac{1}{\sqrt{1+S}}$, différent de l'absorption d'un ensemble homogène par la racine carrée et qui n'est pas dépendant de ω . Des spectres calculés pour différentes saturations sont présentés à la Figure 3.3(b). Ainsi, le spectre est réduit uniformément, et sa largeur à mi-hauteur est constante, à peu près égale à celle de la distribution gaussienne. La largeur homogène n'est donc pas accessible par des mesures d'absorption linéaire d'ensemble. Ainsi, le besoin d'utiliser un montage de type pompe-sonde s'impose.

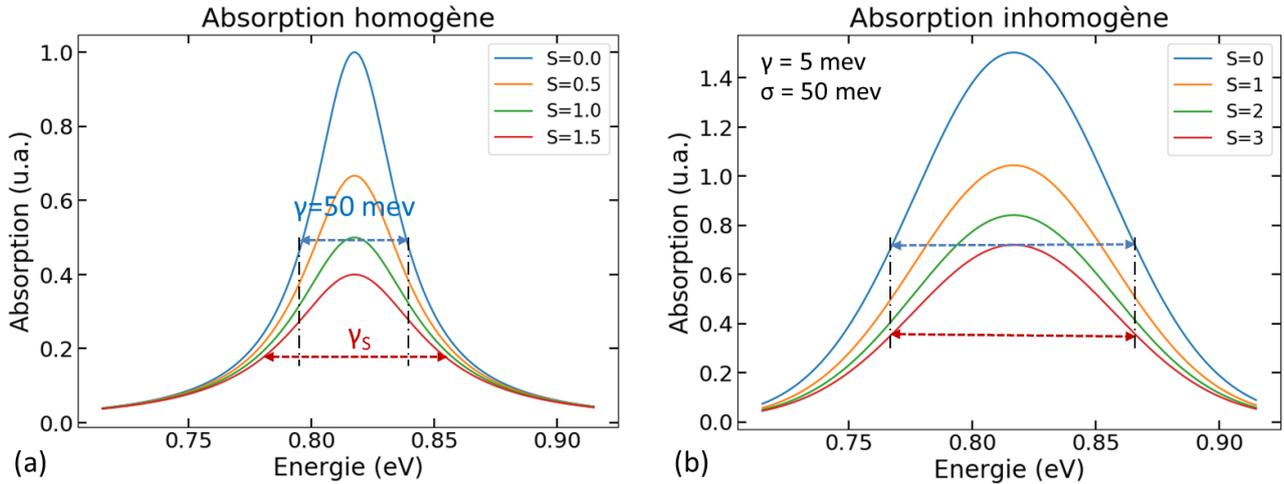


Figure 3.3 : Spectres d'absorption (a) d'un ensemble homogène et (b) d'un ensemble inhomogène, calculés pour différentes intensités de saturation (paramètre S).

3.1.4 Le Spectral Hole Burning

La largeur homogène d'un ensemble inhomogène peut cependant être mesurée en utilisant deux lasers : un laser de pompe de longueur d'onde fixe et d'intensité suffisante pour saturer uniquement l'absorption des systèmes individuels résonants, ce qui creuse un trou autour de cette longueur d'onde dans le spectre d'absorption inhomogène, et qui est détecté par le laser de sonde accordable de pulsation ω_s balayant le spectre (Figure 3.4(a)). La sonde doit être d'intensité suffisamment faible pour ne pas causer de saturation supplémentaire. La pompe, fixée à la pulsation ω_p , est la seule à induire de la saturation, et d'après (3.8), la fonction spectrale de saturation centrée en ω_p est donc pour chaque population homogène à la résonance ω_0 :

$$S(\omega_p) = S \times \frac{(\gamma/2)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega_0 - \omega_p)^2}. \quad (3.18)$$

Ainsi, le coefficient d'absorption d'un système avec élargissement homogène mesuré par la sonde, donné par l'équation (3.6) lorsque $\omega_p = \omega_s = \omega$ en présence d'un seul faisceau, devient, en présence des deux faisceaux :

$$\alpha(\omega_s) = \frac{\alpha_0(\omega_s)}{1 + S(\omega_p)}. \quad (3.19)$$

A cela s'ajoute une distribution inhomogène des pulsations de résonance ω_0 pour obtenir l'absorption inhomogène saturée. En reprenant l'équation (3.16) de l'absorption inhomogène, mais avec l'expression comprenant les différentes pulsations (3.19), l'absorption inhomogène saturée par la pompe de pulsation fixe et mesurée par la sonde est donc :

$$\bar{\alpha}(\omega_s) = \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega_s - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \frac{1}{1 + S \times \frac{(\gamma/2)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega_p - \omega_0)^2}} g_0 e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_g)^2}{2\sigma^2}} d\omega_0 \quad (3.20)$$

pouvant se réécrire :

$$\bar{\alpha}(\omega_s) = \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega_s - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \left[1 - S \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega_p - \omega_0)^2 + (\gamma_s/2)^2} \right] g_0 e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_g)^2}{2\sigma^2}} d\omega_0, \quad (3.21)$$

où l'on a inséré la largeur de raie saturée définie précédemment comme $\gamma_s = \gamma\sqrt{1 + S}$. Cette intégrale comporte trois termes : le premier correspond à l'absorption homogène non-saturée et est une lorentzienne centrée en ω_0 , le deuxième représente la saturation, et le troisième est la distribution inhomogène, gaussienne centrée en ω_g . La distribution inhomogène est généralement bien plus grande que la largeur homogène, souvent d'un facteur 10, et est donc presque constante sur les largeurs γ et γ_s des deux autres termes. Elle peut être sortie de l'intégrale en prenant sa valeur en $\omega_0 = \omega_s$. L'intégrale est calculée analytiquement et finalement on obtient [135] :

$$\bar{\alpha}(\omega_s) = \bar{\alpha}_0(\omega_s) \left(1 - \frac{S}{\sqrt{1 + S}(1 + \sqrt{1 + S})} \frac{\left(\frac{\Gamma_{shb}}{2}\right)^2}{(\omega_s - \omega_p)^2 + \left(\frac{\Gamma_{shb}}{2}\right)^2} \right), \quad (3.22)$$

avec $\bar{\alpha}_0(\omega_s)$ l'absorption inhomogène non-saturée et Γ_{shb} la largeur à mi-hauteur du trou creusé par la pompe, centré sur sa longueur d'onde, et du spectre de spectral hole burning mesuré par la sonde [137]:

$$\bar{\alpha}_0(\omega_s) = \frac{\pi\gamma}{2} \alpha_0 g_0 e^{-\frac{(\omega_s - \omega_g)^2}{2\sigma^2}}, \quad (3.23)$$

$$\Gamma_{shb} = \gamma + \gamma_s = \gamma(1 + \sqrt{1 + S}), \quad (3.24)$$

où γ est l'absorption homogène non-saturée correspondant à la sonde de faible intensité et γ_s l'absorption homogène saturée engendrée par la pompe. Une autre façon d'expliquer cette équation est que la convolution de deux lorentziennes (la sonde et le trou creusé dans le spectre) est elle-même une lorentzienne dont la largeur est égale à la somme des largeurs individuelles. On remarque que lorsque l'intensité de la pompe croît, la profondeur et la largeur du trou spectral augmentent. Ce type d'élargissement en puissance résulte de la contribution croissante des systèmes (BQs non-résonants, absorption d'un ou plusieurs phonons) causant des transitions non-résonantes. A faible

intensité de pompe ($S \sim 0,1$), Γ_{shb} est égale à deux fois la largeur homogène. A cela peut s'ajouter la diffusion spectrale, elle aussi dépendante de l'intensité. Il s'agit de l'évolution temporelle aléatoire de l'énergie d'un système causée par la fluctuation de l'environnement électrostatique.

En pratique pour les BatQs et BQs, le trou creusé par la pompe est très faible, il est donc plus intéressant et facile de mesurer directement la différence d'absorption. L'absorption différentielle normalisée (appelée plus simplement absorption différentielle dans la suite) perçue par la sonde, caractéristique de cette technique de spectroscopie est ainsi :

$$\frac{\Delta\bar{\alpha}(\omega_s)}{\bar{\alpha}_0(\omega_s)} = \frac{\bar{\alpha}(\omega_s) - \bar{\alpha}_0(\omega_s)}{\bar{\alpha}_0(\omega_s)} = \left(-\frac{S}{\sqrt{1+S}(1+\sqrt{1+S})} \frac{\left(\frac{\Gamma_{shb}}{2}\right)^2}{(\omega_s - \omega_p)^2 + \left(\frac{\Gamma_{shb}}{2}\right)^2} \right). \quad (3.25)$$

La Figure 3.4(b) montre un exemple de spectre calculé à partir de l'équation précédente. Le spectre a une forme lorentzienne, de largeur à mi-hauteur Γ_{shb} et centré en ω_p .

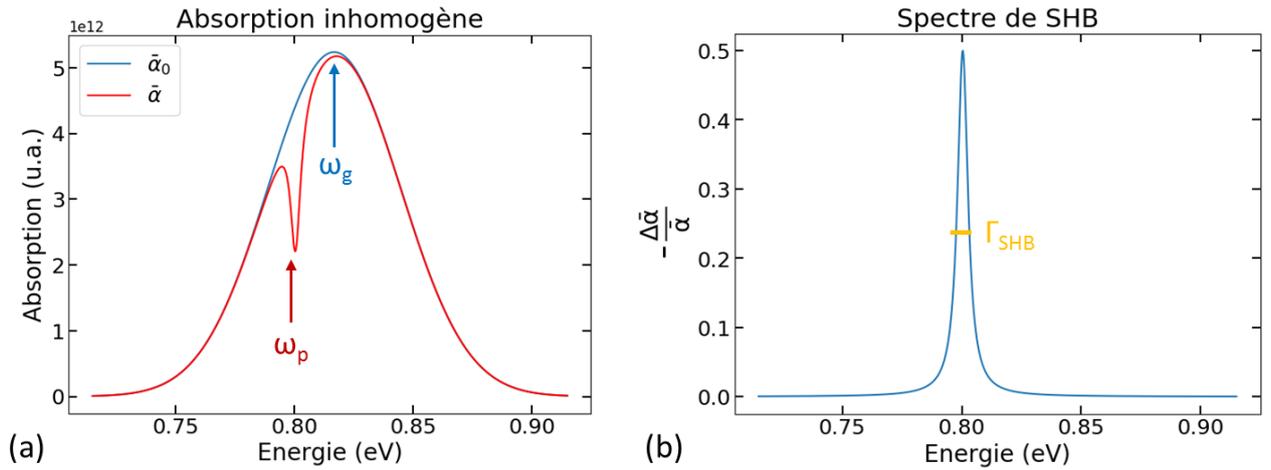


Figure 3.4 : (a) Spectre d'absorption inhomogène non-saturé (bleu) et saturé (rouge) par la pompe de pulsation fixe et mesuré par la sonde. (b) Spectre d'absorption différentielle classiquement obtenu par spectroscopie de saturation d'absorption.

A la résonance, $\omega_s = \omega_p$,

$$\frac{\Delta\bar{\alpha}(\omega_p)}{\bar{\alpha}_0(\omega_p)} = \frac{\bar{\alpha}(\omega_p) - \bar{\alpha}_0(\omega_p)}{\bar{\alpha}_0(\omega_p)} = -\frac{S}{\sqrt{1+S}(1+\sqrt{1+S})} \quad (3.26)$$

qui peut se réécrire :

$$\frac{\Delta\bar{\alpha}(\omega_p)}{\bar{\alpha}_0(\omega_p)} = \frac{1}{\sqrt{1+S}} - 1. \quad (3.27)$$

Toutes nos mesures de spectroscopie de saturation d'absorption se feront en mesurant la différence d'intensité de la sonde transmise, c'est-à-dire sa transmission différentielle. Elle correspond à l'augmentation de la transmission de la sonde, apportée par la saturation de l'absorption par la pompe, par rapport à la transmission initiale de l'échantillon (absence de pompage) :

$$\Delta T = T_{max} - T_{min} = T_{avec\,pompe} - T_{sans\,pompe}. \quad (3.28)$$

Pour un changement d'absorption faible, la relation entre $\Delta\alpha$ et ΔT est la suivante :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{e^{-(\alpha+\Delta\alpha)L} - e^{-\alpha L}}{e^{-\alpha L}} = e^{-\Delta\alpha L} - 1 \approx -\Delta\alpha L \quad (3.29)$$

avec L la longueur de la zone active. Ainsi, on trouve une transmission différentielle normalisée à la résonance égale à :

$$\frac{\Delta T(\omega_p)}{T(\omega_p)} = \bar{\alpha}_0(\omega_p)L \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1+S}}\right). \quad (3.30)$$

3.1.5 Absorption des puits quantiques

L'absorption des puits quantiques multiples ne peut pas être décrite quantitativement par un système à deux niveaux, mais rentre dans le cadre de la théorie à N corps. Le détail de la modélisation de l'absorption excitonique de PQs multiples est présenté dans la thèse de *Maud Guézo* [308]. Elle a également comparé la modélisation des effets à N corps à la modélisation d'un système simple à deux niveaux : à faible densité de porteurs injectés (jusqu'à 10^{12} cm⁻²), l'absorption excitonique des puits quantiques multiples peut être correctement décrite par la loi empirique simple du système à deux niveaux.

3.2 Spectroscopie des boites et bâtonnets quantiques

3.2.1 Les différentes techniques pour obtenir la largeur homogène

Il existe plusieurs techniques de spectroscopie pour analyser les bâtonnets et les boites quantiques, et extraire la largeur homogène de ces ensembles inhomogènes. La première, issue de

l'émergence des lasers ultrarapides à blocage de modes dans les années 70-80, est une technique de spectroscopie résolue dans le temps : le mélange à quatre ondes [142]. De l'anglais four-wave mixing (FWM), cet effet non-linéaire du troisième ordre repose sur une séquence de trois impulsions, qui permet d'étudier le déclin de la polarisation et d'obtenir le temps de déphasage T_2 . La première impulsion excite l'ensemble des nanostructures et aligne les dipôles des systèmes individuels, ce qui crée une polarisation macroscopique. À cause de l'inhomogénéité, les dipôles se déphasent individuellement. La cohérence est perdue au bout d'un temps caractéristique $1/\Gamma_{inh}$ où Γ_{inh} est la largeur inhomogène. Ce déphasage peut cependant être annulé par une seconde impulsion. Les dipôles reviennent en phase et réémettent une impulsion cohérente avec l'impulsion de départ. Une troisième impulsion peut servir à la détection cohérente de ce signal. Le signal récupéré par la troisième impulsion décroît exponentiellement et a pour temps caractéristique $T_2/4$. Alors que le déphasage dû à la largeur inhomogène peut être annulé, celui dû à la largeur homogène de chacun des dipôles ne peut pas l'être. Dans le cas où les différentes ondes ont la même fréquence, on parle de mélange à quatre ondes dégénéré.

La seconde technique, appelée micro-photoluminescence, apparue une dizaine d'années plus tard grâce au développement des détecteurs bas-bruit, consiste à sonder uniquement une nanostructure individuelle. Pour l'isoler spatialement, on peut soit réaliser les mesures en champ proche [143], soit en champ lointain sur des échantillons de densité surfacique adaptée [144], ou bien structurés en surface par des ouvertures submicroniques [145] ou des mésas [146], [147]. La micro-PL fournit des données complémentaires à celles obtenues par mélange à quatre ondes. En effet, il est possible d'étudier statistiquement les variations des propriétés optiques d'une nanostructure à une autre. Ainsi les phénomènes associés aux effets de l'environnement, tels que le couplage aux phonons acoustiques [64] et la diffusion spectrale [148], [149] peuvent être observés. Les conditions nécessaires à la mise en place de ces études sont d'avoir d'une part des photodétecteurs bas-bruit dans la gamme spectrale correspondante, et d'autre part un rendement quantique suffisamment élevé pour détecter le signal de luminescence provenant du nano-objet unique.

Ces deux techniques sont très couramment appliquées, et sur un grand ensemble de structures et nanostructures, des atomes aux BQs. Nos échantillons présentent de forte densité de BQ, distantes de 30 nm en moyenne, ce qui rend difficile l'utilisation de la micro-PL. De plus, nos structures sont étudiées pour concevoir un dispositif laser, le comportement individuel est donc moins important, et il est préférable de sonder les interactions de l'ensemble des nanostructures en même temps que la largeur homogène. Le montage de mélange à quatre ondes est plus difficile à mettre en place et

résolu en temps, c'est pourquoi la spectroscopie de saturation est retenue. Moins courante que ces deux dernières pour la spectroscopie de BQs, elle est pourtant bien répandue pour les atomes où elle a été développée pour s'affranchir de l'élargissement inhomogène dû à l'effet Doppler : les atomes d'un gaz, en mouvement thermique, voient leurs longueurs d'onde d'absorption redistribuées suivant la distribution de leurs vitesses.

Par ailleurs, un comparatif entre la spectroscopie de saturation d'absorption et le FWM sur des BQs CuBr [150] a été effectué à 5K : la spectroscopie de saturation donne une largeur homogène 2 à 3 fois supérieure. Ceci est expliqué par le pulse de 20 ns de la pompe bien plus long (100 fs pour le FWM), qui génère de la diffusion spectrale que la sonde voit lors de son passage. Cependant, une autre comparaison de ces deux techniques a été réalisé sur des BQs InAs/GaAs à température ambiante en utilisant la même pompe avec des pulses de 140 fs [133] et montre des valeurs très proches (10% d'écart, ce qui est dans l'intervalle d'incertitude des mesures). Ces deux techniques, réalisées dans les mêmes conditions, sont donc équivalentes pour mesurer T_2 et γ .

3.2.2 Elargissement homogène en température

Comme brièvement expliqué dans le Chapitre 1, la largeur homogène augmente avec la température. Ici, nous décrirons plus en détail ce phénomène.

L'élargissement homogène est principalement dû au couplage des excitons (paires électron-trou liées par l'interaction coulombienne) avec les phonons, également appelée décohérence assistée par phonons. Les phonons sont des modes de vibration collective du réseau d'ions dans un cristal. Deux types de phonons sont à distinguer : les phonons acoustiques pour lesquels deux atomes de la maille oscillent en phase et les phonons optiques, pour lesquels l'oscillation est en opposition de phase. Par ailleurs, pour chaque type de phonons, il existe trois modes de vibration : deux transverses et un longitudinal (LA et LO pour des phonons acoustiques et optiques respectivement). Les interactions électron-phonon (ou exciton-phonon) sont de grandes importances en optique des semiconducteurs, car elles dominent le déphasage pur et les processus de relaxation de population. Le déphasage pur n'est pas lié à une diminution de population des excitons, il s'agit du déclin de la cohérence sans perte mesurable de population.

Les mécanismes de l'interaction électron-phonon se divisent en deux catégories. La première est le couplage par potentiel de déformation et la seconde le couplage polaire, lui-même engendré par deux mécanismes différents : l'effet piézoélectrique pour les phonons acoustiques, et son analogue l'interaction de Fröhlich pour les phonons optiques.

- Le couplage par potentiel de déformation provient des distorsions de la maille causées par les phonons se propageant à travers le cristal, perturbant l'arrangement cristallin et modifiant par conséquent la structure de bande. Il est à noter que ce couplage est maximal pour les modes longitudinaux.
- L'effet piézoélectrique est provoqué par le couplage au champ électrique créé par les contraintes dans les matériaux polaires. Ils sont ainsi souvent négligeables dans les semiconducteurs III-V.
- L'interaction de type Fröhlich consiste en l'oscillation en opposition de phase de deux ions au sein de la maille cristalline, ce qui génère un champ électrique macroscopique qui se couple avec les électrons.

De ce couplage, il en résulte l'apparition des ailes de phonons acoustique et l'élargissement thermique de la raie à zéro phonon. Cette raie de profil lorentzien, en anglais zero-phonon line (ZPL, acronyme qui sera majoritairement utilisé par la suite), correspond comme son nom l'indique à une transition sans l'implication de phonons. L'apparition de bandes latérales sur le spectre ou ailes de phonons acoustiques avec la température est illustrée par la Figure 3.5, [64], [151].

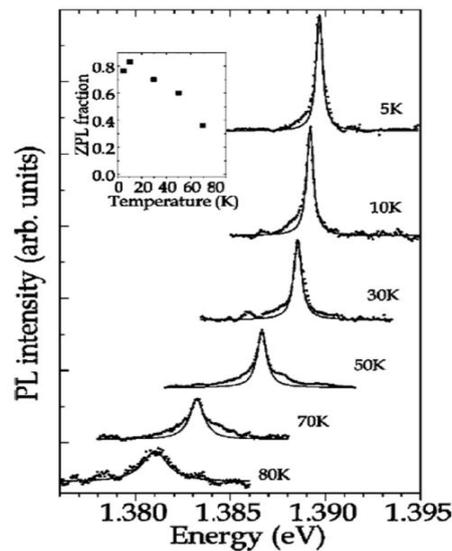


Figure 3.5 : Spectres de photoluminescence d'une BQ unique, illustrant le couplage aux phonons acoustiques en fonction de la température. Le trait plein correspond à un ajustement lorentzien des données [151].

Ce phénomène s'explique comme ceci : la transition excitonique depuis le premier état excité vers le niveau fondamental peut se faire soit en émettant, soit en absorbant des phonons acoustiques. A basse température les modes de phonons sont peu présents, l'état excité est quasiment vide de phonons. Ainsi le couplage se manifeste par l'émission de phonons lors du passage de l'état excité vers le niveau fondamental et une aile apparaît uniquement côté basse énergie de la ZPL (déjà

visible à 5 K sur la figure). Puis, lorsque la température augmente, le semiconducteur se peuple progressivement de modes de phonons acoustiques, et la relaxation vers l'état fondamental peut s'effectuer en absorbant un phonon : une aile apparaît côté haute énergie de la ZPL. Sur la figure, l'aile apparaît à 30 K ; le spectre alors asymétrique devient symétrique à partir de 50 K et les deux ailes commencent à recouvrir la ZPL. A partir d'une certaine température, ici 80 K, la ZPL devient indiscernable des ailes de phonons qui dominent ainsi l'émission, et l'ajustement de l'ensemble est de nouveau lorentzien.

Des phénomènes autres que le couplage aux phonons contribuent, dans une moindre mesure dans notre cas, à l'élargissement en température : la diffusion spectrale [148], [149] et l'effet Auger, qui, à forte densité de porteurs, devient le processus dominant [67].

3.2.3 Etat de l'art des études spectroscopiques de la largeur homogène des BQs et BatQs

Concernant l'état de l'art, la technique de spectroscopie de saturation d'absorption (avec pompe et sonde pulsés) a été employée à température ambiante [133] et de 5K à 90K [152], [153] sur des BQs InAs/GaAs, mais à notre connaissance, cette technique n'a pas été utilisée sur des BatQs ou BQs InAs/InP. Les nanostructures basées sur GaAs, notamment les BQs InAs et InGaAs/GaAs, sont en effet bien plus étudiées [109], [154] et par conséquent, leur largeur homogène l'est également [155]. De nombreuses études existent sur son évolution en température jusqu'à 50-80K comprenant l'élargissement de la raie à zéro phonon et les causes de sa disparition [65], [146], [148], [149], [151], [155]–[158] (liste non exhaustive). Les références sont moindres sur une plus large gamme de température, mais d'excellentes études sont rapportées : la mesure de T_2 par FWM de 7 K à 300 K [68], et la mesure de γ par photoluminescence de BQ unique de 2 K à 300 K [66]. Au contraire, la mesure de la largeur homogène des BQs InAs/InP(311)B a été rapportée seulement à 3K par FWM [159], et à 8K par micro-PL sur substrat (100) [160]. Cependant, plus de résultats sont disponibles sur les BatQs InAs/InP(100), tels que la dépendance en température de la largeur homogène jusqu'à 80K mesurée par micro-PL [161] et sa mesure à température ambiante [162]. Enfin, la spectroscopie de saturation d'absorption en continu a été réalisée dans des systèmes à état solide comme des nanocristaux de CdSe [163], et également sur des structures semiconductrices comme des BQs InGaAs/GaAs auto-assemblées, mais uniquement à 9,8 K [164]. Ainsi, le couplage électronique n'a pas été étudié.

Pour résumer, les études de la largeur homogène des bâtonnets quantiques InAs/InP se limitent de 5K à 80 K et à température ambiante, et aucune étude en température ni à température ambiante n'a été réalisée sur les BQs InAs/InP. De plus, parmi toutes les études effectuées sur les BQs crûes sur substrat GaAs, aucune ne permet de mettre en évidence la présence du couplage électronique. Côté technique expérimentale, la spectroscopie de saturation d'absorption n'a été appliquée que sur une plage de température limitée (5 K - 90 K) et à température ambiante pour les BQs sur GaAs, et cette technique en continu est encore plus limitée (9,8 K). Enfin, il n'y a, à notre connaissance, pas eu de comparaison directe entre les boîtes et les bâtonnets quantiques.

3.3 Montage expérimental

A mon arrivée, la technique de spectroscopie de saturation n'était pas développée au laboratoire et la table optique avait été débarrassée pour accueillir la source laser (OPO) que j'ai utilisée. J'ai ainsi mis au point l'ensemble du dispositif expérimental, entièrement automatisé, permettant de mesurer la largeur homogène d'un ensemble inhomogène de la température ambiante (et possiblement plus), jusqu'à des températures cryogéniques. Pour ce faire, j'ai caractérisé, configuré et optimisé chaque élément constituant le montage final, illustré à la Figure 3.6. J'ai également entièrement automatisé le montage, du contrôle du dispositif de sonde à l'acquisition grâce à Labview, et le traitement des données avec un programme écrit en Python. Le logigramme du programme Labview est présenté en Annexe 4. Dans cette partie du chapitre 2, je présenterai ce travail fastidieux mais enrichissant, qui m'a permis d'obtenir tous les résultats exposés dans les parties suivantes.

Avant de rentrer dans le détail de chaque élément constituant le montage, voici comment il se compose de façon globale : le faisceau de sonde, après avoir été mis en forme à notre convenance (partie 3.3.2), et le faisceau de pompe sont alignés sur l'échantillon dans le cryostat à l'aide d'un relai d'image (partie 3.3.2). La sonde est finalement récoltée par une photodiode balancée puis le signal de transmission différentielle ΔT , très faible ($\sim 2\%$ pour les PQs et $< 0,2\%$ pour les BatQs et BQs), est nécessairement analysé à l'aide d'une détection synchrone (partie 3.3.4). Par ailleurs, la polarisation de l'ensemble du système est contrôlée par plusieurs lames demi-onde et un polariseur.

Afin d'éviter les variations de température trop importantes, qui peuvent dérégler les optiques et le laser de sonde, la pièce est climatisée sous flux constant, pour être maintenue entre 21 et 22°C. Cette légère variation qui s'effectue d'un jour à l'autre, correspondant à un laps de temps grand par

rapport à la durée d'une acquisition (environ 2h pour balayer toute la plage de longueur d'onde avec une bonne résolution), ne perturbe donc pas la mesure.

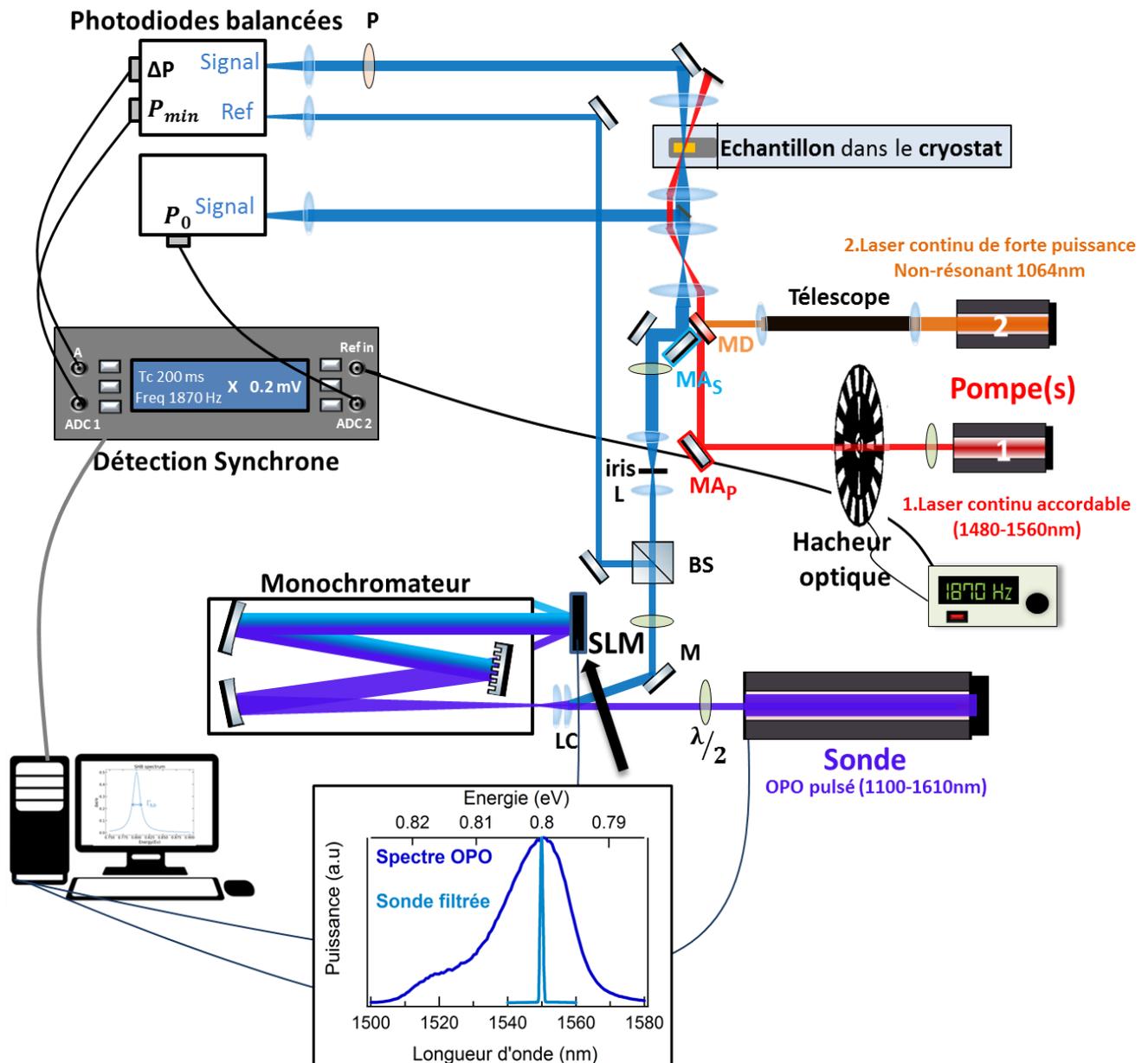


Figure 3.6 : Schéma du montage expérimental. $\lambda/2$: lame demi-onde, P : polariseur, L : lentille, LC : lentille cylindrique, M : miroir, MD : miroir dichroïque, MA_P : miroir d'alignement de la pompe, MA_S : miroir d'alignement de la sonde, SLM : modulateur spatial de lumière, P_0 : puissance du faisceau incident, P_{min} : puissance de la sonde sans saturation par la pompe, ΔP : puissance différentielle.

3.3.1 Lasers de pompe et de sonde

Comme expliqué précédemment, il faut deux lasers pour effectuer la spectroscopie de saturation : le laser de pompe qui va saturer l'absorption de l'échantillon autour de sa longueur

d'onde et le laser de sonde qui détecte ce trou dans le spectre d'absorption. Plusieurs critères sont à prendre en compte dans le choix de ces deux sources.

Premièrement, les lasers doivent être de largeur spectrale faible devant la largeur homogène, pour ne pas la surestimer. Deuxièmement, le laser de pompe doit être d'intensité suffisante pour saturer l'échantillon. Pour connaître l'intensité de saturation, intensité pour laquelle l'absorption homogène d'un système en résonance avec l'excitation est réduite d'un facteur 2, nous utilisons l'équation (3.11) :

$$I_s = \frac{nc\varepsilon_0\hbar^2}{2d^2T_1T_2}$$

Pour nos échantillons, nous estimons qu'à température ambiante, l'intensité de saturation devrait être autour de 420 W/cm², avec les valeurs suivantes considérées : $T_1=1720$ ps pour des BQs InAs/InP (311)B [165], $T_2=260$ fs pour des BQs InAs/GaAs [133], $d=50$ D (Debye) [166]–[168]. Cette valeur est révisée à 550 W/cm² avec notre valeur extrapolée pour T_2 (partie 3.6.3). Comme elle sera plus faible à basse température (T_2 bien plus grand), une puissance de 100 W/cm² est suffisante, car S doit être de préférence bien inférieur à 1, typiquement autour de 0,1-0,2. Troisièmement, le laser de sonde doit être accordable et de faible intensité devant la pompe.

Ainsi, le laser de pompe principal est un laser continu, accordable de 1480 à 1560 nm et pouvant atteindre un maximum de puissance de 15 mW. Cependant, les pertes au cours du trajet du faisceau font que la puissance est au maximum de 7 mW (pour les plus hautes longueurs d'onde) en arrivant sur l'échantillon, ce qui correspond à 611 W/cm² (voir partie 3.3.2 pour le calcul du waist du faisceau). A 1480 nm, le maximum est de 5 mW (437 W/cm²), satisfaisant la deuxième condition. Sa largeur spectrale est de moins de 300 KHz. Un deuxième laser de pompe est présent, initialement prévu pour créer l'inversion de population dans la structure, et ainsi voir les effets de la saturation du gain par le laser de pompe résonant, ce qui est une analogie directe au laser bi-fréquence (impact de la présence d'une deuxième fréquence sur le gain). Ce laser, appelé dans la suite pompe non-résonante (PNR) car émettant à 1064 nm, est un laser fibré Ytterbium. Ces caractéristiques principales sont indiquées dans le Tableau 3.1. Il suit le même chemin jusqu'à l'échantillon que le laser résonant, à partir du miroir dichroïque.

Le laser de sonde est quant à lui un oscillateur paramétrique optique (OPO) dont seulement le signal est utilisé (le complémentaire ou idler est bloqué), accordable de 1100 à 1610 nm. Il est pompé par un laser titane:saphir produisant des pulses de 100 fs avec un taux de répétition de 82 MHz à 830

mn. Le faisceau de l'OPO est très large spectralement, autour de 30 nm. C'est pourquoi, dans notre montage, la sonde ne se réduit pas uniquement à un laser : il s'agit d'un système composé de l'OPO, du monochromateur et du modulateur spatial de lumière, abrégé en SLM (pour Spatial Light Modulator), mettant en forme le faisceau de sonde.

Caractéristiques	Sonde (laser seul)	Pompe résonante	Pompe non-résonante
Type de Laser	OPO	Diode	Fibré Ytterbium
Régime	Pulsé à 82 MHz	Continu	Continu
Puissance maximale sur l'échantillon (mW)	1	7	1200
Plage spectrale (nm)	1100-1610	1480-1560	1064
Largeur spectrale	~30 nm	<300 KHz	0,1 nm
Waist (mm)	0,6	0,6	2,5
Polarisation	Linéaire horizontale	Linéaire verticale	Linéaire verticale

Tableau 3.1 : Caractéristiques des lasers de pompe et de sonde.

3.3.2 Contrôle et mise en forme de la sonde

Pour obtenir un faisceau de sonde circulaire et fin spectralement à partir du faisceau très large et légèrement elliptique de l'OPO et par conséquent, de sélectionner très précisément chaque longueur d'onde sondée, le faisceau du laser, préalablement diffracté par le monochromateur, est mis en forme spectralement et spatialement par le modulateur spatial de lumière (SLM). Ce système a été choisi pour contrôler finement l'impulsion et également pour pouvoir mettre en place des spectroscopies pulsées (pompe-sonde, FWM) avec détection cohérente, qui n'ont finalement pu être mises en œuvre faute de temps.

Le SLM se compose de deux éléments (Figure 3.7) : son corps qui permet la communication avec l'ordinateur et la programmation du dispositif, et son écran formé notamment de cristaux liquides sur une base réfléchive de silicium, qui met en forme le faisceau. La mise en forme s'effectue en appliquant des tensions V différentes sur les électrodes de chaque pixel. En l'absence de champ électrique ($V=0$), les cristaux liquides sont alignés avec leur axe long parallèle aux électrodes, désigné par l'axe x sur la Figure 3.7.

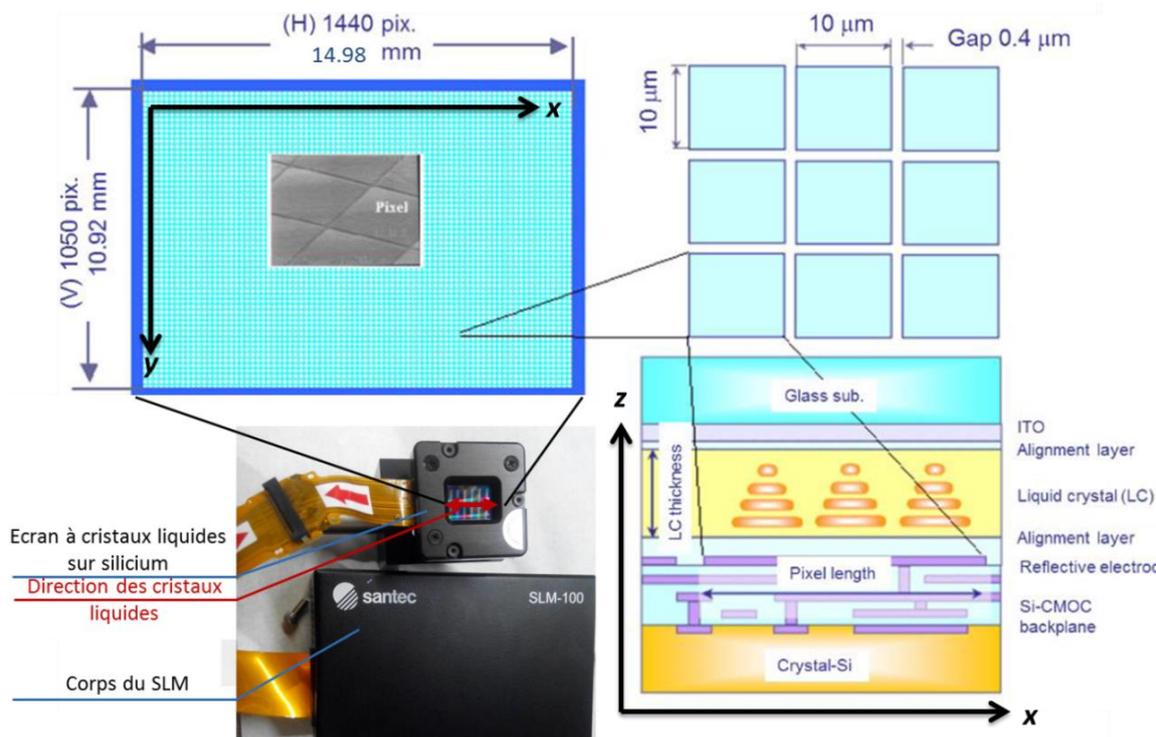


Figure 3.7 : Description des composants du SLM et de la composition de ses pixels.

Lorsqu'une tension est appliquée aux électrodes, un champ électrique suivant z est généré. Les cristaux liquides basculent alors plus ou moins suivant cette direction en fonction de la valeur de la tension, causant un changement d'indice de réfraction pour la lumière polarisée selon x par rapport à la polarisation selon y . Le déphasage est proportionnel à cette biréfringence induite, et suit cette équation :

$$\Delta\varphi = 2\pi L\Delta n/\lambda \quad (3.31)$$

où Δn est la biréfringence et L l'épaisseur de la couche de cristaux liquides. Le changement de phase est ainsi modulé par la tension appliquée. Sa valeur maximale possible donnée par le fabricant est supérieure à 2π . Pour des raisons pratiques, notamment une dépendance linéaire bien plus simple à étalonner et à appliquer, le déphasage est contrôlé par le niveau/la nuance de gris sur 10 bits « imprimé » aux pixels. Celui-ci est lié à la tension par une relation définie par le fabricant. Dans notre cas, le faisceau incident est polarisé selon x uniquement et l'image envoyée à l'écran du SLM sert à modifier le front $\varphi_r(x, y)$ de l'onde réfléchie.

Les avantages du SLM pour la mise en forme spatiale et spectrale du faisceau incluent :

- une très bonne résolution du contrôle de la phase, notamment spatialement car sa résolution est de 1440 par 1050 pixels, dont la taille est de $10\ \mu\text{m}$ ($10,4\ \mu\text{m}$ de pas) ;

- une grande rapidité car aucun mouvement n'est mécanique, son temps de réponse est typiquement de 100 ms ;
- des fluctuations de phase ultra-basses et une multitude de possibilités ;
- une résolution de 10 bits soit 1024 niveaux de phase.

Le faisceau de sonde sortant de l'OPO, représenté en bleu foncé sur la Figure 3.6, est mis en forme (faisceau bleu clair) à l'aide d'un système composé du SLM positionné à la sortie d'un monochromateur Czerny-Turner. Le faisceau légèrement divergent ($440 \mu\text{rad}$) est injecté dans la fente d'entrée de $100 \mu\text{m}$ du monochromateur à l'aide de deux lentilles cylindriques identiques. Le monochromateur, grâce à son réseau de 600 traits/mm blazé dans le visible, permet d'étaler spatialement et spectralement le faisceau sur l'écran du SLM (voir la Figure 3.8). La dispersion du monochromateur, mesurée à $2,07 \text{ nm/mm}$, étale les 30 nm de largeur spectrale de l'OPO sur presque la totalité de l'écran du SLM, soit $14,98 \text{ mm}$. Avec des pixels de $10 \mu\text{m}$ ($10,4 \mu\text{m}$ de pas de pixel), la résolution spectrale calculée de l'ensemble est ainsi très bonne, de l'ordre de $0,02 \text{ nm}$. En réalité, il est difficile de descendre en dessous de $0,1 \text{ nm}$, notamment à cause de l'ouverture de la fente limitée à $100 \mu\text{m}$.

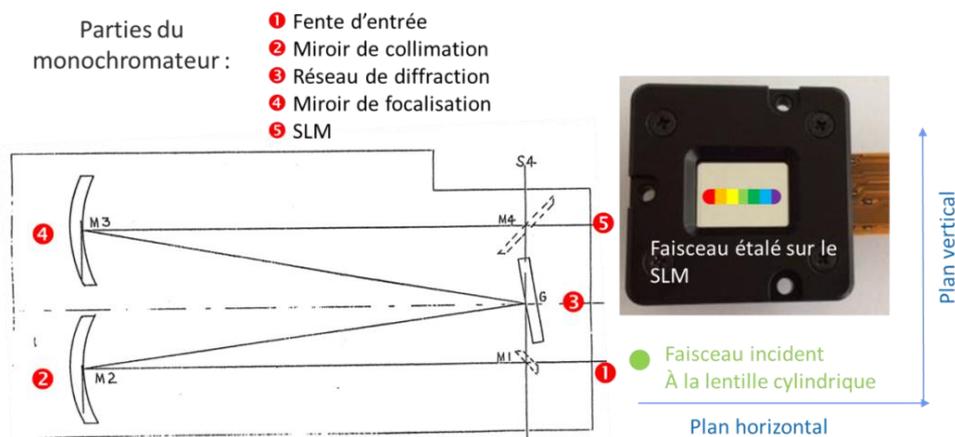


Figure 3.8 : Schéma simplifié du dispositif monochromateur-SLM, permettant d'étaler spectralement le faisceau de l'OPO sur l'écran à cristaux liquides.

Après modulation du front d'onde par le SLM, les différentes parties du spectre font le trajet en sens inverse dans le monochromateur et sortent via la fente d'entrée. Il est à noter que le faisceau de sonde est de plus faible intensité en sortie du monochromateur (transmission de 20% du signal d'entrée), car il y a des pertes au niveau des miroirs, du Bragg et du SLM, dont la réflectivité est tout de même supérieure à 80% (en fonction de la longueur d'onde). De plus, la fente de sortie de $100 \mu\text{m}$ filtre légèrement le faisceau spatialement.

3.3.2.1 Etalonnage du SLM

Le SLM est d'abord étalonné à l'aide d'un montage simple présenté en Figure 3.9(a), afin de connaître l'évolution du déphasage vu par les faisceaux en fonction du niveau de gris appliqué aux pixels [169], [170].

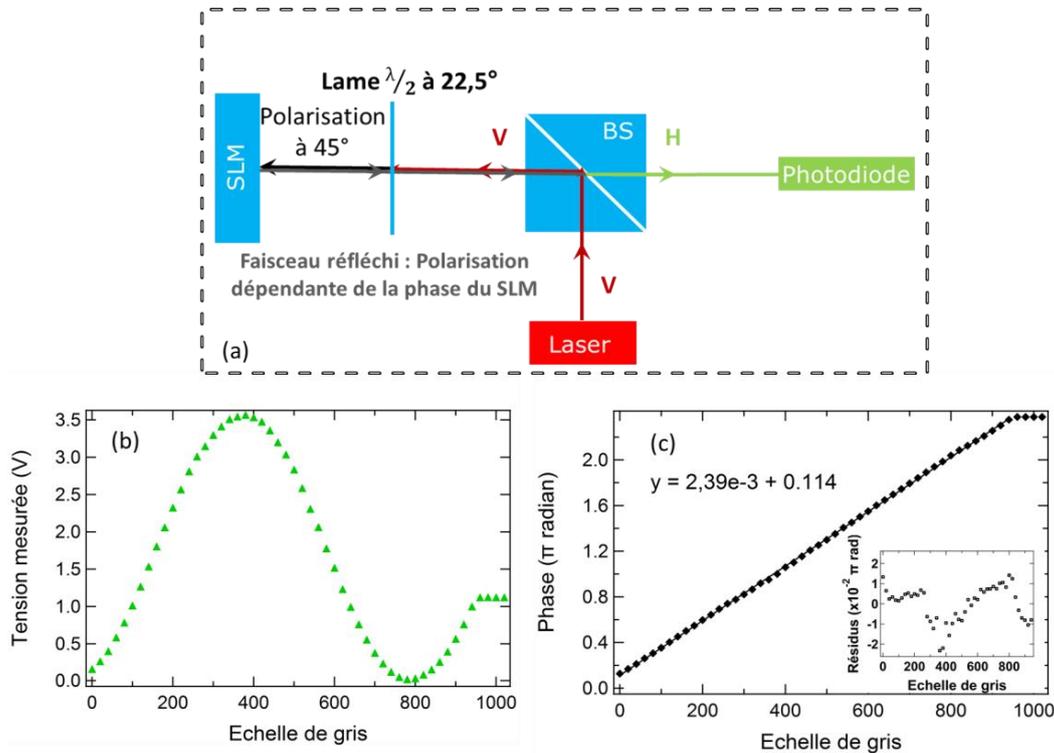


Figure 3.9 : (a) Montage pour l'étalonnage du SLM. BS (beam splitter) est un cube séparateur. H et V sont respectivement les polarisations horizontales et verticales. (b) Signal récolté par la photodiode en fonction du niveau de gris appliqué aux pixels du SLM. (c) Courbe d'étalonnage pour $\lambda_{pompe}=1550$ nm, obtenue en convertissant la tension mesurée en phase, et son ajustement linéaire. L'insert est la courbe de résidus de l'ajustement linéaire.

Le faisceau du laser continu utilisé pour cet étalonnage (il s'agit du Velocity), de polarisation verticale, est dévié perpendiculairement par le cube séparateur. Il arrive ensuite sur une lame demi-onde, positionnée à $22,5^\circ$, qui tourne sa polarisation à 45° par rapport à l'axe des cristaux liquides, puis entre en contact avec le SLM, dont le niveau de gris est uniforme (phase constante). Quel que soit le niveau de gris des pixels du SLM, le faisceau est réfléchi avec un angle nul car à phase constante le SLM se comporte comme un miroir plan. Le faisceau peut voir sa polarisation changer en fonction du déphasage perçu. Il repasse ensuite par la lame demi-onde et le cube séparateur. Enfin, la composante horizontale de la polarisation est récoltée par une photodiode InGaAs. A ce stade, tout dépend de la phase appliquée sur les pixels du SLM. En effet, si une phase de π radians est appliquée, le SLM agit sur la polarisation comme une lame demi-onde. La polarisation sera de 135° en arrivant sur la lame demi-onde à $22,5^\circ$, ce qui a pour effet de passer à une polarisation

horizontale lors de la traversée. Ainsi toute l'intensité du faisceau est recueillie par la photodiode et le maximum de signal est atteint. Par analogie, le minimum de signal est atteint pour une phase de 2π . Le signal converti par la photodiode est mesuré en incrémentant le niveau de gris de 20, de 0 à 1020.

La courbe obtenue (Figure 3.9(b)) est un début de sinusoïde, avec un maximum à 370 correspondant à π radians et un minimum à 790 correspondant à 2π radians. La conversion vers la phase en fonction du niveau de gris $\varphi(g)$ s'effectue avec la relation suivante retrouvée à partir de la sphère de Poincaré :

$$\varphi(g) = \cos^{-1} \left(-2 \frac{V(g)}{V_{max}} + 1 \right) \quad (3.32)$$

Où $V(g)$ est la tension mesurée par la photodiode en fonction du niveau de gris et V_{max} la tension maximale. Ainsi, on obtient la courbe linéaire de la Figure 3.9(c) acquise pour $\lambda_{pompe}=1550$ nm, qui a pour coefficient directeur $2,39 \cdot 10^{-3} \pi$ radians/niveau de gris. Après un niveau de gris d'environ 950, la phase ne change plus et a pour valeur maximale $2,4 \pi$ radians.

A présent que la relation entre la phase et l'échelle de gris est connue, il reste à vérifier si cette relation est valable pour toutes les longueurs d'onde et sur toute la surface de l'écran du SLM. Tout d'abord, l'homogénéité spatiale du SLM est étudiée. Pour ce faire, la relation entre la phase et l'échelle de gris est de nouveau mesurée, mais cette fois-ci sur quatre positions différentes du SLM, indiquées à la Figure 3.10(a). Les courbes ainsi obtenues (b) ne changent pas (ou très peu $<0,2\%$) pour différentes positions, indiquant que le SLM est suffisamment homogène pour utiliser un seul étalonnage pour tous les pixels [170], [171]. Quant à la dépendance à la longueur d'onde, plusieurs acquisitions sont faites de 1480 à 1560 nm sur la position 2 du SLM (c). La pente de chaque droite est différente, jusqu'à 5% d'écart sur la plage spectrale mesurée ; cet écart augmente pour des plages spectrales supérieures. Cependant, en prenant la courbe de référence à 1550 nm et en multipliant son coefficient directeur par un facteur $= 1550/\lambda$, nous retrouvons la pente des courbes acquises aux différents λ à 0,5% près, comme attendu par l'équation (3.31) dans le cas où Δn reste constant. Par conséquent, notre programme prend en compte cette correction pour les longueurs d'onde demandées, à partir de la valeur de référence mesurée à 1550 nm, ce qui évite l'étalonnage à toutes les λ . Le SLM est finalement étalonné et prêt à être utilisé dans notre montage.

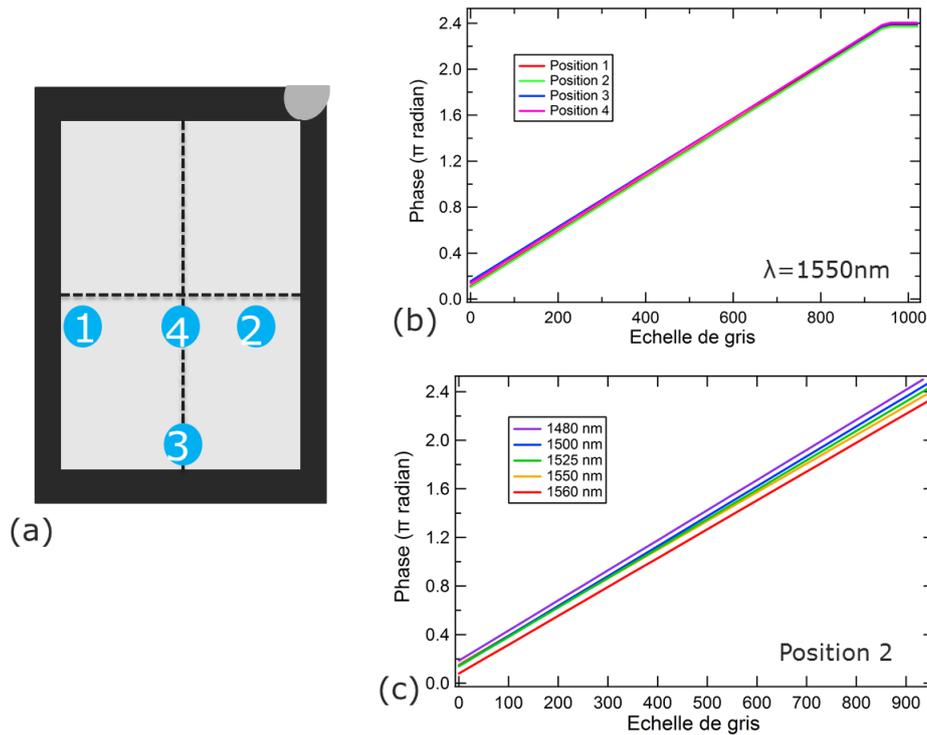


Figure 3.10 : (a) Schéma du SLM avec les positions indiquées pour les mesures d'étalonnage. La marque grise sur le bord est un repère. Courbes d'étalonnage pour (b) les quatre positions différentes (longueur d'onde du laser à 1550 nm) et pour (c) des longueurs d'onde différentes (position 2).

3.3.2.2 Mise en forme spectrale du faisceau

Comme expliqué précédemment le SLM est avant tout, dans notre montage, un filtre spectral, c'est-à-dire l'élément en combinaison avec le monochromateur, qui va sélectionner la longueur d'onde de l'OPO et sa largeur spectrale. Pour ce faire, un réseau de diffraction est « imprimé » sur l'écran du SLM. Ce réseau diffracte les longueurs d'onde indésirables de notre faisceau à des ordres plus grands que l'ordre 0. A cause de l'angle de diffraction, elles ne peuvent plus ressortir par la fente d'entrée du monochromateur. Le déphasage $\varphi(y)$ exprimé en radians, en fonction de la position verticale sur le SLM en pixels, imprimé uniquement pour les longueurs d'onde indésirables est :

$$\varphi(y) = -a \cos\left(\frac{2\pi(y - y_0)}{L}\right) \quad (3.33)$$

avec y_0 la position verticale du centre du faisceau sur le SLM, a l'amplitude de la modulation et L la période ou pas du réseau. Ce dernier est choisi pour obtenir un compromis entre une extinction maximale à l'ordre 0 des longueurs d'onde indésirables et un angle de réflexion suffisant pour les ordres supérieurs. Le pas du réseau est ainsi défini à 16 pixels. Quant à la recherche du coefficient

a , elle est d'abord effectuée par le calcul. L'intensité du faisceau non-diffracté est proportionnelle au carré de la fonction de Bessel à l'ordre 0, qui est :

$$J_0(a) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-1)^k}{k!} \int_0^{\infty} e^{ik} a^k da \left(\frac{a}{2}\right)^{2k}. \quad (3.34)$$

En utilisant le raisonnement inverse, nous pouvons retrouver l'amplitude de la phase sinusoïdale du réseau pour obtenir une intensité de faisceau nulle lorsqu'il est diffracté à l'ordre 0. Le résultat des calculs est résumé à la courbe de la Figure 3.11. La valeur minimale obtenue est atteinte pour une amplitude de 2,405.

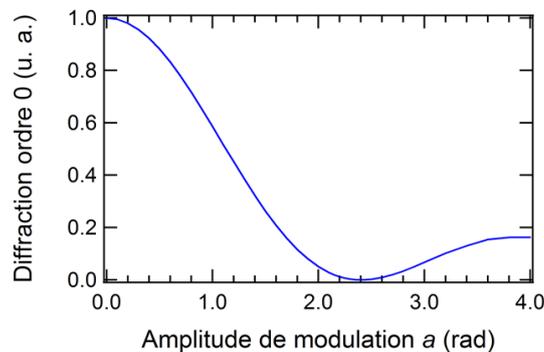


Figure 3.11 : Intensité calculée du signal diffracté à l'ordre 0 en fonction de l'amplitude de la modulation.

Afin de vérifier expérimentalement le fonctionnement du filtre spectral, le faisceau en sortie du dispositif est injecté dans un analyseur de spectre optique fibré. La Figure 3.12 montre plusieurs acquisitions effectuées pour différentes longueurs d'onde et résolutions (ou largeurs de raie) sélectionnées, avec en noir le spectre non filtré de l'OPO, correspondant au faisceau incident. Le filtre est fonctionnel, cependant deux signaux de largeur constante sont observés sur les bords du spectre, quels que soient les paramètres rentrés pour la phase, alors que ces longueurs d'onde sont censées être éteintes. Si on se rapporte au domaine spatial, cela correspond également aux bords du SLM, où il n'y a pas de cristaux liquides mais uniquement un miroir. Pour corriger simplement ce problème, les bords du SLM sont masqués avec du scotch noir, bloquant le faisceau incident sur cette partie. Le spectre avec et sans ce masque est présenté à la Figure 3.13(a).

Le filtre étant opérationnel, l'optimisation de ces paramètres y_0 et a peut commencer. Par défaut, y_0 est le centre vertical du SLM. Pour optimiser l'extinction des longueurs d'onde indésirables, nous essayons plusieurs valeurs pour a , et nous mesurons le spectre résultant à l'aide de l'analyseur de spectre optique. Les spectres obtenus sont représentés à la Figure 3.13(b). Ainsi, le meilleur taux d'extinction des longueurs d'onde indésirables est trouvé pour $a = 2,3$ et $2,35$, valeurs plutôt

proches du calcul. D’ailleurs, de $a = 2,3$ à $2,4$, l’extinction est très semblable. Ce signal résiduel est dû à la réflectivité de la face externe du SLM et des espaces entre chaque pixel. Nous avons mesuré que le taux d’extinction est de $333 : 1$, elles sont donc atténuées de 25 dB et considérées négligeables.

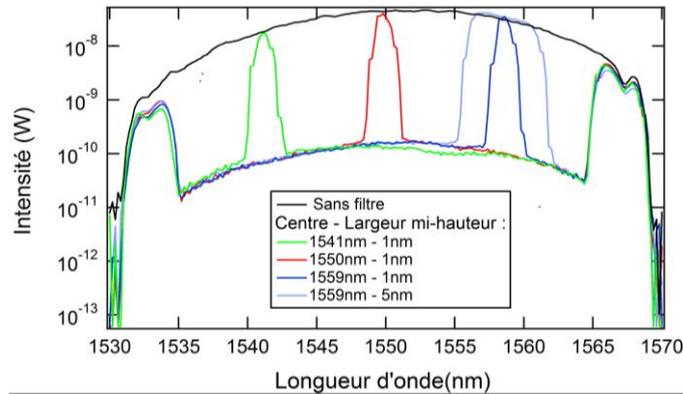


Figure 3.12 : Vérification de la capacité de filtre spectral du SLM, pour différentes longueurs d’onde sélectionnées et largeur à mi-hauteur (résolution), par rapport au spectre initial (en noir). Des ailes involontaires apparaissent au bord de chaque spectre.

La plage spectrale délimitée par le SLM est à présent de 28 nm avec le masque, soit +/- 14 nm à partir du centre du SLM. Une marge de sécurité est retenue à +/- 12 nm, car pour des résolutions de 1 nm, la longueur d’onde à -14nm du centre est très légèrement coupée (d’environ 0,1 nm).

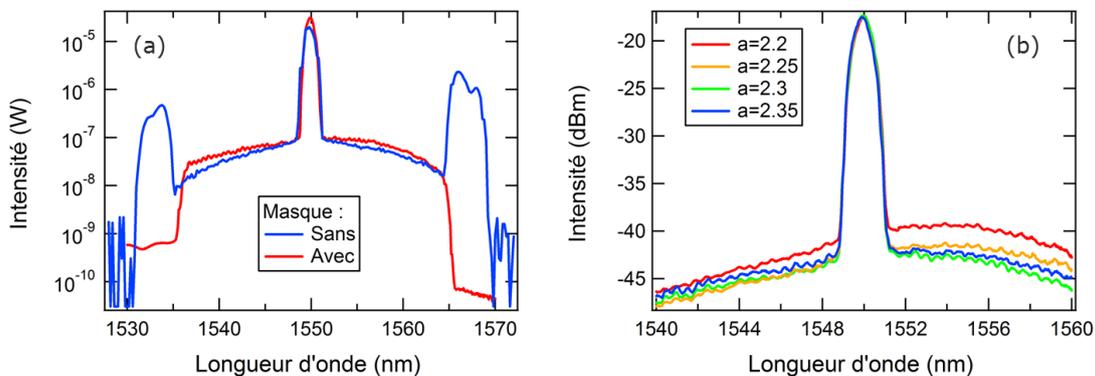


Figure 3.13 : Utilisation du SLM en tant que filtre spectral à 1550 nm pour une résolution de 1 nm. (a) Avec et sans le masque afin de supprimer les effets de bord du SLM. (b) Détermination de la meilleure amplitude de modulation pour le taux d’extinction de la partie indésirable.

3.3.2.3 Mise en forme spatiale du faisceau

En addition de son rôle de filtre spectral, le SLM permet de corriger, si besoin, la forme spatiale du faisceau après son aller-retour dans le monochromateur. Dans notre cas, le plan d’entrée est conjugué avec celui du SLM et avec le plan de sortie (après l’aller-retour), et donc les waists dans ces trois plans sont toujours les mêmes. En revanche, ce n’est pas le cas de la divergence, car le réseau de Bragg ne se trouve pas exactement à la distance focale des deux miroirs concaves.

Lorsque le faisceau est focalisé sur la fente d'entrée, il ressort du monochromateur avec sa divergence initiale. Cependant, si le faisceau en entrée est large, ce qui est le cas dans la direction verticale, il ressort avec une divergence bien différente. Le faisceau divergera alors plus dans la direction verticale (faisceau large sur l'entrée) que dans la direction horizontale (faisceau focalisé sur l'entrée) en sortant du monochromateur, entraînant une forme elliptique. Nous avons schématisé à la Figure 3.14 les faisceaux suivant les deux plans (vert = vertical, bleu = horizontal) en sortie du monochromateur, et nous avons également mesuré le profil du faisceau avec une caméra infrarouge Spiricon. Comme le montre la figure, l'ellipticité du faisceau est assez forte, avec un rapport de 3,08 entre les diamètres des deux axes.

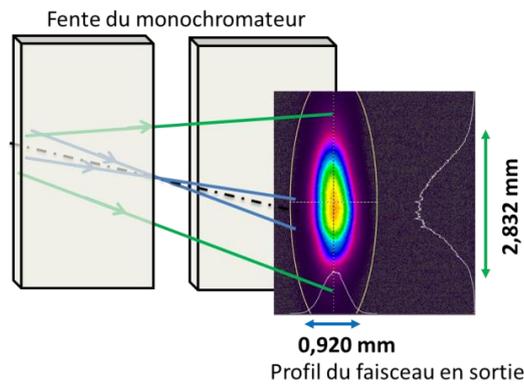


Figure 3.14 : Profil elliptoidal du faisceau de l'OPO enregistré par la caméra infrarouge à la sortie du monochromateur.

Afin de retrouver un faisceau parfaitement sphérique, le déphasage correspondant à une lentille est appliqué dans le plan vertical sur le SLM. Le retard de phase radial $\varphi(y)$ qu'engendre une lentille de focale f et de centre y_0 sur un faisceau incident est le suivant :

$$\varphi(y) = -\frac{\pi}{\lambda f} (y - y_0)^2 = -b(y - y_0)^2 \quad (3.35)$$

Pour connaître grossièrement la valeur du paramètre b à appliquer, le dispositif pour un aller-retour du faisceau est simulé avec Python. Il en ressort une distance focale de 40 cm, soit $b = 5,07$ rad/mm² à 1550 nm. Nous affinons ensuite b à la même longueur d'onde par dichotomie en observant la réponse de la forme du faisceau sur la caméra infrarouge. Finalement, nous trouvons une valeur de b semblable à celle calculée, soit $b = 5,12$ rad/mm² à 1550 nm. Le paramètre y_0 est ajusté de manière à ce que le centre du faisceau ne se déplace pas avec l'ajout de la lentille. Nous trouvons à l'aide de la caméra que le faisceau est positionné plus bas que le centre du SLM, sur la 760^{ème} rangée de pixels, d'où $y_0 = 760$. Pour simplifier l'expression totale de la phase imprimée, nous prenons cette valeur de y_0 pour la phase du réseau de diffraction et de la lentille. La Figure

3.15 montre la forme du faisceau à l'aide de la caméra (vignettes du haut) et d'une carte infrarouge (photos du bas) pour différentes configurations du SLM : un déphasage équivalant à (a) un miroir plan, où la forme est elliptique, (b) une lentille (équation (3.35)), qui corrige la forme pour obtenir un spot bien circulaire, et enfin (c) la configuration finale où le réseau est également appliqué (somme des expressions (3.35) et (3.33)). Nous observons ainsi des spots bien ronds, dont le faisceau central qui correspond aux longueurs d'ondes sélectionnées, et des spots satellites, correspondant à de la diffraction d'ordre 1. Ceux-ci s'écartent progressivement et sont ensuite bloqués par un diaphragme.

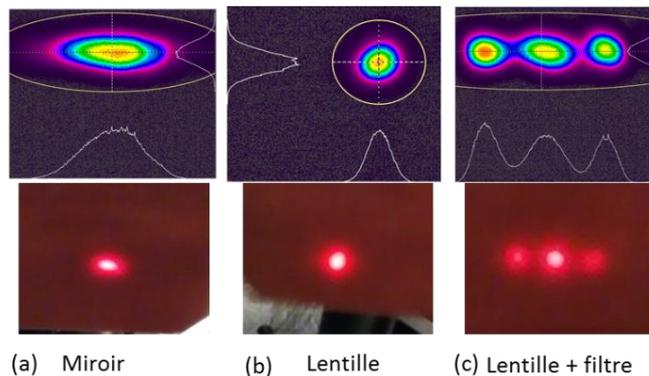


Figure 3.15 : Faisceau en sortie du système de sonde observé avec la caméra infrarouge et une carte infrarouge pour différentes configurations du SLM : (a) simple miroir (phase constante), (b) lentille et (c) lentille plus filtre. L'utilisation d'un périscope pour adapter la hauteur du faisceau à l'entrée du monochromateur inverse les directions x et y .

3.3.3 Contrôle des profils de mode de la pompe et de la sonde sur l'échantillon

L'échantillon est monté dans un cryostat à l'aide d'un support métallique qui vient maintenir par compression ses extrémités, pour permettre les mesures en transmission. Le choix du cryostat est ici primordial, car l'espace de travail est très restreint : 8 cm, il faut donc gérer son encombrement. Ainsi, le cryostat utilisé est le modèle MicrostatHe2 d'Oxford, dont l'épaisseur de la tête est de 4,5 cm. Le cryostat est monté sur un système de trois platines de translations suffisamment robustes (capacité de chargement verticale de 100 N), permettant son mouvement dans les trois directions pour le réglage et son immobilisation lors des mesures. Il est mis sous vide avec un groupe de pompage composé d'une pompe primaire et d'une pompe turbomoléculaire, descendant jusqu'à $5 \cdot 10^{-6}$ mbar. Dans les expériences, nous l'utiliserons uniquement de 77 K à température ambiante, notamment à cause de la longueur d'onde de la pompe résonante limitée à 1480 nm, qui finit par devenir non-résonante en dessous de 77 K.

3.3.3.1 Alignement de la pompe et de la sonde sur l'échantillon

Afin d'aligner plus facilement les deux faisceaux de pompe et le faisceau de sonde sur l'échantillon à l'intérieur du cryostat, nous effectuons un « pré-alignement » à l'aide d'un relais d'image comportant un jeu de lentilles identiques. Le montage est présenté à la Figure 3.16.

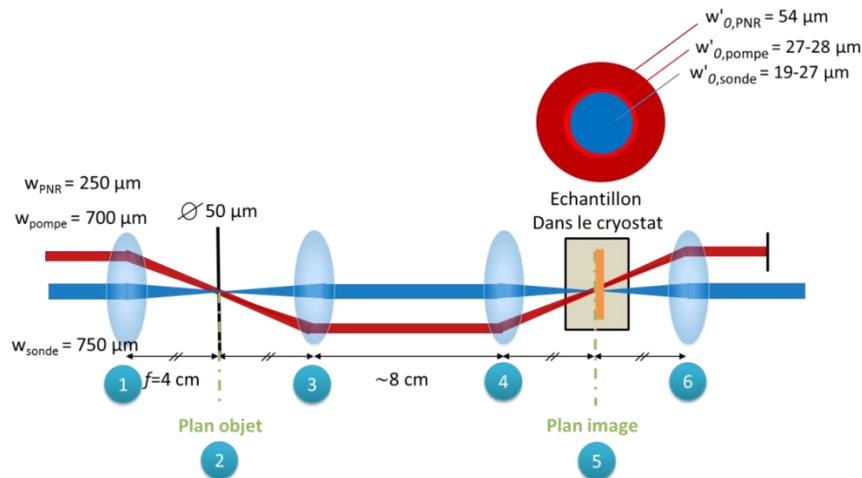


Figure 3.16 : Montage permettant l'alignement de la pompe et la sonde sur l'échantillon par relai d'image avec un grandissement de 1, et leur waist sur l'échantillon.

Ce système, qui pourrait être qualifié de $4f$ si la distance entre la lentille (numérotée 3 sur la figure) et la lentille (4) était strictement égale à $2f$ (ce n'est pas le cas ici), permet un alignement plus aisé du faisceau de pompe et de sonde sur l'échantillon, contournant le problème lié à l'alignement difficile sur un échantillon dans un cryostat. En effet, il sert de relai : le pré-alignement est effectué avec une lentille asphérique de deux pouces (1) focalisant les faisceaux de pompe et de sonde spatialement séparés sur un iris de $50\ \mu\text{m}$ de diamètre (2), servant de plan objet. Pour aligner ce dispositif, un diaphragme plus gros, de $600\ \mu\text{m}$ de diamètre, est tout d'abord grossièrement positionné à la distance de travail de la lentille et de manière à laisser passer le maximum de puissance des faisceaux, mesuré à l'aide de la caméra infrarouge et d'un puissance-mètre. Puis, la platine de translation de la lentille (1) nous permet de positionner son foyer image sur l'iris (2). Les miroirs (MA_S et MA_P sur la Figure 3.6 représentant le montage expérimental) acheminant les faisceaux sur la lentille (1) sont également ajustés. Pour affiner l'alignement, les deux dernières étapes sont répétées avec des diaphragmes de plus en plus fins, jusqu'à $50\ \mu\text{m}$ de diamètre. Les diaphragmes, aimantés, sont montés sur un support magnétique permettant de changer d'iris facilement et rapidement, en conservant l'alignement. Les faisceaux sont donc focalisés et superposés sur le diaphragme, qui sert de plan objet (2). Ce pré-alignement est ensuite transféré par relai d'image avec deux lentilles identiques (3 et 4) à la précédente, dont la distance focale est de 4 cm, sur l'échantillon dans le cryostat (5), qui est ainsi le plan image. Une fois le pré-alignement

réalisé, le diaphragme est retiré lors des mesures, pour éviter la diffraction, la diffusion de la pompe, et l'endommagement éventuel du diaphragme. Une dernière lentille (6) est placée pour collimater les faisceaux après l'échantillon (5). L'alignement fin est finalement effectué grâce au système de détection : les miroirs MA_S et MA_P (et MD pour la PNR, qui dans un premier temps aligne grossièrement le faisceau sur le faisceau de la pompe résonante) sont finement ajustés pour récupérer le maximum de signal de spectral hole burning, impliquant une superposition optimale des faisceaux.

3.3.3.2 Taille des spots de la pompe et de la sonde sur l'échantillon

A présent, nous calculons la taille des faisceaux focalisés sur l'échantillon, notre caméra infrarouge ne pouvant pas mesurer des diamètres autour de 50 μm ou inférieurs. Il est à noter que la résolution des lentilles est limitée par le phénomène de diffraction. Les faisceaux de pompe et de sonde de puissance P ont un profil gaussien, dont le profil transverse de l'intensité optique peut être décrit par une fonction gaussienne suivant r la distance à l'axe optique [172] :

$$I(r, z) = \frac{P}{\pi w(z)^2 / 2} e^{-2 \frac{r^2}{w(z)^2}} \quad (3.36)$$

où $w(z)$ est le rayon du cercle d'intensité $I_{r=0}/e^2$, variant suivant la direction de propagation z tel que :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z/z_R)^2} \quad (3.37)$$

où w_0 est le plus petit rayon possible et est appelé waist, et z_R est la longueur de Rayleigh, définie comme ceci :

$$z_R = \pi w_0^2 / \lambda. \quad (3.38)$$

La formule classique en optique gaussienne pour calculer le waist image w_0' :

$$w_0' = w_0 \frac{1}{\sqrt{\left(1 - \frac{s}{f}\right)^2 + \left(\frac{z_R}{f}\right)^2}} \quad (3.39)$$

où s est la distance du waist initial à la lentille de focale f . Lorsque les faisceaux gaussiens sont collimatés, la formule devient beaucoup plus simple car on peut considérer que $s = f$:

$$w_0' = \frac{\lambda f}{\pi w} \quad (3.40)$$

où w est le rayon du faisceau incident. Nos faisceaux, en arrivant sur la première lentille, sont censés être collimatés, notamment l'OPO grâce au système monochromateur-SLM. Pour la pompe résonante, qui est une diode laser, la divergence est un peu plus marquée. De ce fait, nous appliquons la formule complète (3.39), à partir des mesures faites sur le faisceau avant la lentille : $w_0 = 0,6 \text{ mm}$, $w = 0,7 \text{ mm}$, et $s = 50 \text{ cm}$. Pour la sonde et la PNR collimatées, nous utiliserons la formule simplifiée (3.40) où il est simplement nécessaire de mesurer la taille du faisceau juste avant la première lentille de focalisation. Pour assurer que le spot de sonde se superpose au spot de pompe, il est légèrement plus petit, avec un waist de 19 à 27 μm (de 1100 à 1610 nm respectivement) contre 27 à 28 μm pour la pompe (voir Figure 3.16).

Le waist initial du laser non-résonant était bien trop grand ($w_0 = 2,5 \text{ mm}$) donc trop petit en champ proche (5,4 μm). C'est pourquoi, à l'aide d'un télescope constitué de deux lentilles convergentes de distance focale $f_1=750 \text{ mm}$ et $f_2=75 \text{ mm}$, il a été réduit d'un facteur 10. En réécrivant l'équation dans cette configuration avec deux lentilles convergentes associées, on obtient :

$$w_0' = w_0 \frac{f_2}{f_1} \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{(d - f_1 - f_2)^2 z_R^2}{f_1^4}}} \quad (3.41)$$

avec d la distance entre les deux lentilles. Comme ici $d \sim f_1 + f_2$, le calcul peut se simplifier à l'équation donnée par l'optique géométrique :

$$w_0' = w_0 f_2 / f_1 \quad (3.42)$$

où on obtient bien un grossissement de 1/10.

Le faisceau de la PNR arrive ainsi collimaté sur la première lentille et son waist focalisé est de 54 μm . Nous avons noté à la Figure 3.16 les valeurs des w et w_0' pour les trois faisceaux. Toutefois, ces valeurs seront revues dans la partie 3.5.2, suite à un problème lié au déplacement du spot de sonde sur l'échantillon.

3.3.4 Détection et traitement des données

Le faisceau de sonde est finalement récupéré par une photodiode balancée InGaAs Nirvana 2017. Ce type de photodiode permet de s'affranchir des fluctuations de puissance de l'OPO. Pour ce

faire, deux entrées sont disponibles sur la photodiode : le signal, entrée sur laquelle le faisceau après l'échantillon est focalisé, et la référence. Sur cette dernière est envoyée une partie du faisceau sortant du dispositif de sonde, séparée du faisceau se dirigeant vers les lentilles asphériques par un cube séparateur de polarisation. La photodiode va ainsi avoir deux signaux voyant les mêmes fluctuations induites par le laser, dont un seul passe par l'échantillon. Ces fluctuations sont alors électroniquement soustraites et ainsi annulées sur le signal électronique sortant de la photodiode.

Une seconde photodiode est utilisée pour mesurer la puissance incidente sur l'échantillon P_0 , cette fois sans référence car le signal est assez puissant et donc peu sensible aux relativement faibles fluctuations du laser. 3% du faisceau incident sur l'échantillon est réfléchi par une lame de verre vers la photodiode, puis est focalisé sur l'entrée signal. Dans le but de détecter la très faible variation de la transmission ΔT (en moyenne, autour de 2% pour les puits quantiques et moins de 0,2% pour les bâtonnets et boîtes quantiques), une détection synchrone (signal recovery modèle 7265 DSP) est utilisée pour mesurer la puissance différentielle ΔP .

3.3.4.1 Modulation de la pompe

La solution pour mesurer efficacement, rapidement et précisément ΔT avec la détection synchrone est d'appliquer la technique de simple modulation. Elle consiste à moduler l'intensité de la pompe à une certaine fréquence puis à détecter à cette fréquence. Pour moduler la pompe, nous utilisons donc un hacheur optique, dont les hélices coupent la pompe à une fréquence de 1870 Hz comme on peut le voir sur la partie haute de la Figure 3.17. Cette fréquence est choisie pour plusieurs raisons :

- afin d'éviter l'acquisition de la modulation mécanique indésirable générée par la pompe turbomoléculaire mettant le cryostat sous vide,
- au-dessus de la bande passante de l'asservissement de la photodiode,
- bien inférieure aux phénomènes de relaxation électronique,
- pour réduire la modulation périodique de la température. En effet, au niveau thermique, le pompage induit une onde thermique de longueur d'onde 500 μm et décroissant exponentiellement sur une longueur 80 μm [173]. La modulation périodique de la température peut induire une réponse en transmission différentielle. Pour une puissance donnée du laser, l'amplitude de cette modulation sera d'autant plus faible que la fréquence est élevée.

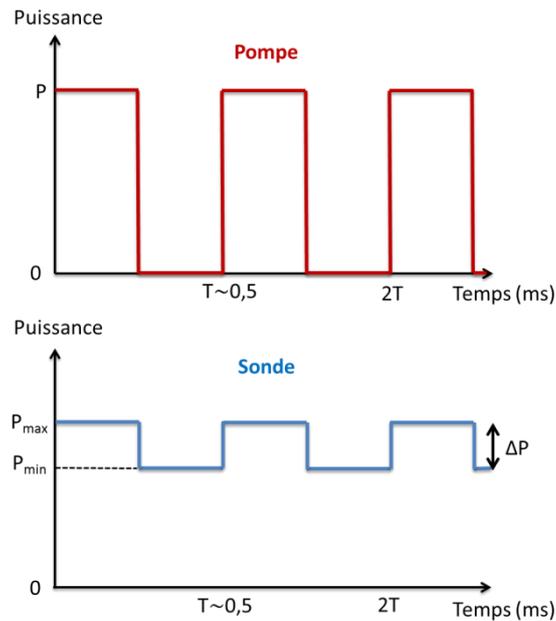


Figure 3.17 : Modulation de la pompe et impact sur la sonde : mesure de ΔP .

Le hacheur optique est relié à la détection synchrone, pour qu'elle détecte à sa fréquence de modulation. La sonde voit la modification de l'absorption apportée par la pompe modulée (partie basse de la Figure 3.17). En ne détectant qu'à cette fréquence, la détection synchrone mesure la variation de la transmission.

3.3.4.2 Signaux récoltés par la détection synchrone

La détection synchrone détecte également sur ses canaux auxiliaires analogique vers digital (ADC) de faible résolution (1 mV), P_0 la puissance incidente sur l'entrée ADC₂ et P_{min} sur ADC₁. P_{min} est la puissance minimale perçue lorsqu'il n'y a pas de saturation de l'absorption par la pompe. Il est à noter que mesurer la puissance maximale P_{max} au lieu de P_{min} ne change pas la valeur, la variation de puissance étant trop faible et le canal ADC trop peu sensible. En réalité, la détection synchrone enregistre le signal amplifié et converti en tension par les photodiodes. Le gain des entrées est différent : pour $\Delta V = G_{\Delta V} \Delta P$, le gain $G_{\Delta V}$ est de 24 mV/ μ W, alors que pour $V_{min} = G_{V_{min}} P_{min}$, il est de 8 mV/ μ W (identique à G_{V_0}). Pour mesurer les gains $G_{V_{min}}$ et G_{V_0} , nous avons mesuré la puissance de la sonde à 1550 nm à l'entrée de la photodiode avec un puissance-mètre ayant une résolution de 1 nW et une incertitude de mesure de $\pm 5\%$ (Thorlabs référence S132C), puis comparé à la valeur affichée sur la détection synchrone. Après une moyenne sur une série de mesures, nous avons ainsi déduit les gains. Pour $G_{\Delta V}$, nous avons mis le hacheur optique à la place de l'échantillon et uniquement sur la sonde ; la pompe étant éteinte. Cela permet d'avoir une modulation carrée de 100% : la puissance de la sonde directement mesurée par le puissance-mètre à

l'entrée de la photodiode peut être comparée à l'amplitude mesurée sur la détection synchrone. Ces valeurs mesurées sont valables uniquement à 1550 nm, car le gain varie en fonction de la longueur d'onde. Or, le rapport des deux gains est constant, ce qui permet de ne pas tenir compte de la longueur d'onde dans les conversions lors du traitement des données avec Python. La transmission différentielle peut ainsi être calculée :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\Delta P/P_0}{P_{min}/P_0} = \frac{\Delta V}{V_{min}} \frac{G_{V_{min}}(\lambda)}{G_{\Delta V}(\lambda)}. \quad (3.43)$$

P_0 n'intervient pas dans le calcul de la transmission différentielle, mais est mesuré pour obtenir le spectre de transmission de l'échantillon au cours de la même acquisition.

La tension différentielle ΔV est lue sur le canal X de la détection synchrone, qui est la composante du signal $X = R \cos \theta$ d'amplitude R et de phase θ . L'intérêt d'afficher X plutôt que R est de distinguer, grâce au signe de X , les deux régimes possibles lors du SHB : la photo-absorption, qui est la diminution de la transmission avec le pompage, et le photo-blanchiment, qui est par opposition l'augmentation de la transmission avec le pompage. L'origine des phases est fixée par la pompe : un signal positif, en phase avec la pompe, correspond au photo-blanchiment alors qu'un signal négatif, en opposition de phase avec la pompe, provient de la photo-absorption. En théorie, nous devrions observer, dans les conditions standards (un faisceau de pompe et de sonde), un signal de photo-blanchiment.

3.3.4.3 Diffusion de la pompe dans l'échantillon et photoluminescence

Lors du réglage la détection synchrone, un signal est observé malgré l'absence de la sonde, alors que la pompe n'est pas récoltée, car bloquée après l'échantillon. C'est un bruit récurrent : il s'agit de la diffusion de la pompe dans l'échantillon et sur sa surface, ainsi que la photoluminescence de l'échantillon générée par la pompe. Pour supprimer ce signal parasite, le miroir qui réfléchit le faisceau sur la première lentille asphérique (MA_P sur le montage expérimental présenté à la Figure 3.6) est translaté. Cette action permet de décaler sa position sur la lentille et donc par rapport au faisceau de sonde. Le signal récolté par la photodiode est ensuite lu en amplitude (R) sur la détection synchrone.

La Figure 3.18 montre le rapport du signal $R(x)$ sur le signal R maximal en fonction de la position x de la platine de translation du miroir MA_P . Le maximum atteint pour $x = 0,25$ cm correspond à une superposition des deux faisceaux sur la première lentille, le faisceau de pompe n'est pas dévié et est

totallement récolté. On observe qu'à partir de $x = 0,75$ cm (distance de 0,5 cm par rapport au faisceau de sonde), le rapport est très faible et ne diminue plus aussi drastiquement. La position choisie est $x = 0,95$ cm, soit une distance de 0,7 cm, afin de minimiser au maximum la diffusion de la pompe tout en évitant de sortir de la lentille. Dans le but de réduire presque totalement ce bruit, un polariseur est placé devant la photodiode. Il atténue de 30 dB la polarisation verticale de la pompe par rapport à la polarisation horizontale de la sonde. C'est pourquoi il est important de garder la configuration croisée pour la polarisation.

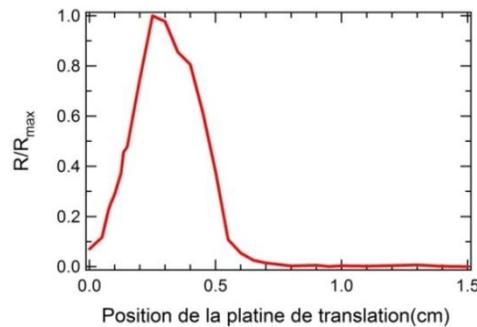


Figure 3.18 : Mesure de l'amplitude du signal diffusé par la pompe (R) sur la voie de sonde et de la photoluminescence en fonction de la translation du miroir MA_P .

3.3.4.4 Dernier réglage de la détection synchrone : la constante de temps

Un paramètre non négligeable à régler sur la détection synchrone est la constante de temps. Celle-ci permet notamment de diminuer le bruit et de détecter des signaux encore plus faibles, en intégrant plus longtemps l'acquisition. Cependant, il faut un compromis entre le bruit et la durée du scan. De ce fait, pour plusieurs constantes de temps, le bruit (N pour noise, exprimé en $\mu\text{V}/\text{Hz}^{1/2}$) sur X en condition de SHB est mesuré. Il est calculé par la détection synchrone à partir de Y , qui au mieux est égal à 0 (signal en phase). Les fluctuations de Y causées par le bruit engendrent un N plus grand. Une fois les mesures effectuées, il faut multiplier N par $\sqrt{1/T_C}$ pour obtenir le bruit en μV sur X . Ainsi, nous obtenons la courbe présentée à la Figure 3.19.

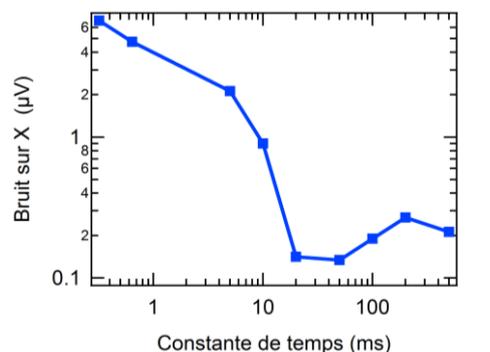


Figure 3.19 : Evolution du bruit sur X en fonction de la constante de temps de la détection synchrone.

Le bruit sur X diminue de plus d'une décade entre 0,32 ms et 20 ms. A partir de 20 ms cependant, le bruit évolue très peu, et reste faible. Cet effet, surprenant aux premiers abords car le bruit est encore censé diminuer, vient probablement d'un signal de faible amplitude non rejeté par la détection synchrone. En tout cas, il est confirmé expérimentalement jusqu'à des durées bien plus longues. En effet, nous avons effectué un scan durant deux jours en paramétrant une constante de temps de 200 s, dans une zone où le signal est faible. Nous avons finalement obtenu un scan identique en matière de niveau de bruit à celui obtenu avec une constante de temps de 200 ms ; donc le bruit ne diminue pas. De ce fait, au niveau de la détection synchrone uniquement, des constantes de temps supérieures ou égales à 20 ms suffisent. Nous basculerons plutôt à 200 ms, pour laisser le temps aux équipements de se stabiliser, notamment le SLM dont la constante de temps est spécifiée à 100 ms. Le réglage des équipements étant terminé, le montage est à présent prêt à être testé.

3.4 Echantillons étudiés

3.4.1 Echantillon de référence pour l'étalonnage : les PQs

Afin d'étalonner puis de valider le montage expérimental, un échantillon de référence est d'abord analysé par spectroscopie de saturation d'absorption. Cet échantillon de référence (voir Figure 3.20(a)) est un empilement de 12 puits quantiques InGaAs de 6 nm d'épaisseur encapsulés chacun dans 10 nm de $Q_{1,18}$ sur substrat InP (100).

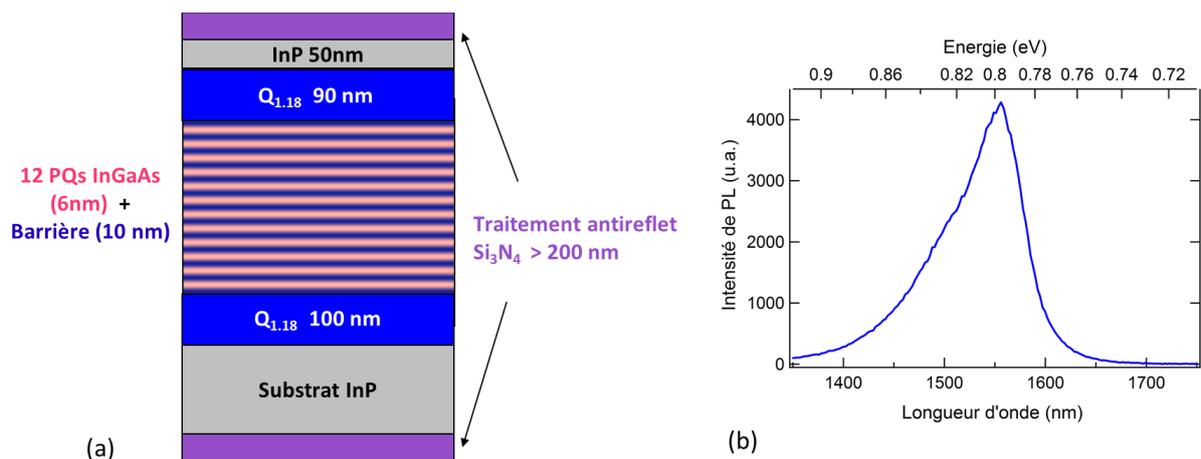


Figure 3.20 : (a) Empilement de l'échantillon de référence 6230. (b) Spectre de PL à température ambiante de cet échantillon.

Son spectre de photoluminescence est présenté en Figure 3.20(b). L'émission est centrée à 1556 nm et a une demi-largeur à mi-hauteur (côté basse énergie) de 30,5 nm (15,6 meV). Nous observons sur le spectre de PL un épaulement autour de 1500 nm, correspondant aux trous légers. Néanmoins,

nous n'arrivons pas à distinguer clairement les deux pics correspondant aux trous lourds et aux trous légers ; ces deux pics seront au contraire bien plus visibles sur les spectres de transmission.

La transmission de l'échantillon est également mesurée, car elle apporte des informations complémentaires à l'émission : son absorption. Sur ce spectre (voir Figure 3.21), les différents creux correspondent à l'absorption de la lumière blanche incidente non-polarisée par des éléments présents dans l'échantillon.

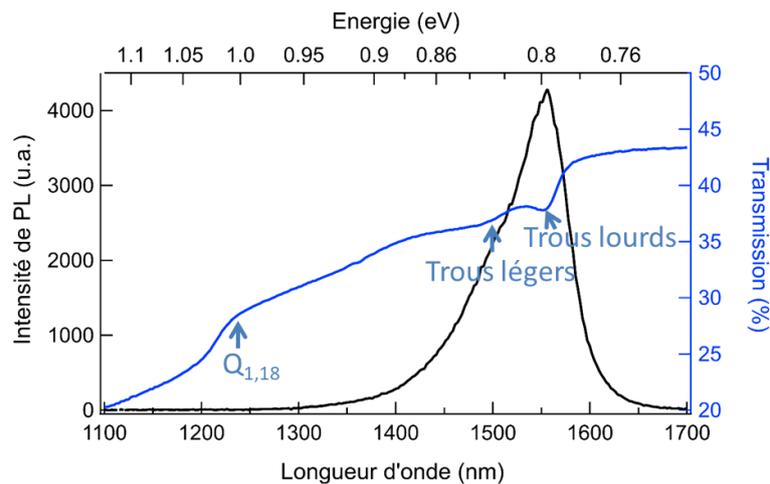


Figure 3.21 : Spectre de transmission (en bleu) superposé à la PL (en noir) de l'échantillon 6230 sans les couches d'antireflet.

Il y en a notamment trois que l'on distingue très bien : le seuil d'absorption du $Q_{1,18}$ autour de 1230 nm, l'absorption de la transition E_1LH_1 (entre premier niveau confiné de trous légers et premier niveau confiné d'électrons), autour de 1500 nm (0,827 eV) et l'absorption plus marquée E_1HH_1 (entre premier niveau confiné de trous lourds et premier niveau confiné d'électrons), autour de 1555 nm (0,797 eV). Ce spectre servira de référence pour les mesures de spectroscopie de saturation d'absorption. D'ailleurs, en préparation de cette partie, nous déduisons également ici la valeur maximale de $\Delta T/T$ de nos PQs : sur le spectre, la transmission de l'échantillon correspondant à la zone des PQs passe de $T = 0,378$ à $T = 0,425$. En saturant complètement les PQs, nous devrions ainsi obtenir $\Delta T/T = 0,11$.

Ce type de nanostructure, largement étudié, constitue une référence très bien documentée, même en spectroscopie de saturation [174]. Le nombre de puits est assez important, pour assurer un signal de transmission différentielle suffisamment fort.

3.4.2 Echantillon à bâtonnets et boîtes quantiques

Les échantillons étudiés à bâtonnets et à boîtes quantiques sont réalisés tous les deux dans les mêmes conditions de croissance, qui ont été sélectionnées dans la partie précédente (1 sccm – 2

ML). Leur seule différence est l'orientation du substrat d'InP : (100) pour former les BatQs et (311)B pour les BQs. La densité des BQs avec ces paramètres est autour de $9,6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ et celle des BatQs est d'environ $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Les échantillons se composent d'un empilement de 4 fois 5 plans. Un schéma de l'empilement est présenté à la Figure 3.22(a).

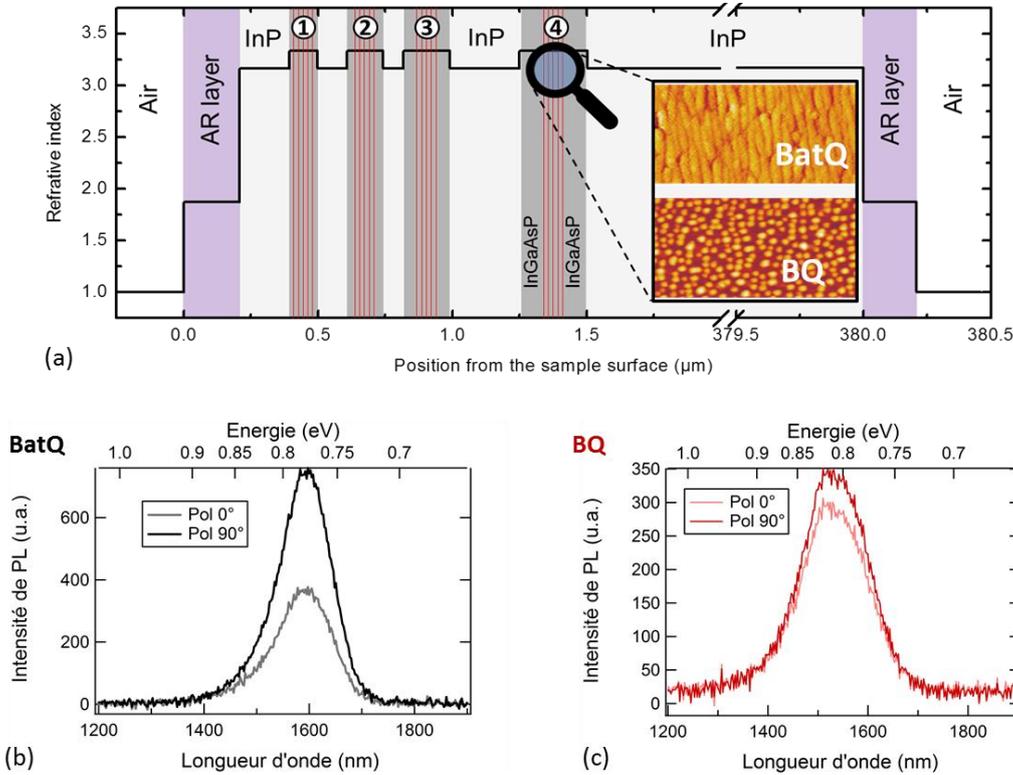


Figure 3.22 : (a) Empilement des échantillons 6354-1 (BatQ) et 6364-2 (BQ) pour la spectroscopie de saturation d'absorption, en fonction de l'indice de réfraction. Spectres de photoluminescence pour différentes polarisations du faisceau de pompe des (b) BatQs et (c) BQs.

Chaque plan est encapsulé dans une couche barrière de $\text{Q}_{1,18}$ de 15 nm d'épaisseur. Les groupes de plans sont répartis et séparés par différentes épaisseurs de $\text{Q}_{1,18}$ et d'InP calculées pour assurer une absorption optimale et égale de chaque groupe de plans, soit 25%, afin d'obtenir suffisamment de signal pour l'absorption/transmission différentielle. L'absorption de la PNR à $1,064 \mu\text{m}$ a ainsi été modélisée (sans prendre en compte les couches antireflets) et la conception permet d'avoir la même proportion de PNR absorbée dans chaque ensemble. La simulation donne entre 24,2% et 25,6% de la pompe absorbée alors qu'on vise 25% pour tous les ensembles. Comme la pompe est déjà très absorbée par les 3 premiers ensembles, le dernier doit être épais et donc décalé par rapport à la position $\lambda/2$.

La double encapsulation [132] réalisée induit une hauteur maximale pour toutes les nanostructures de 2,2 nm, permettant une émission contrôlée entre 1500 et 1600 nm, en fonction du type de la

nanostructure. Comme pour l'échantillon à puits quantiques, les deux faces sont recouvertes d'un traitement antireflet Si_3N_4 qui s'est avéré nécessaire pour éviter les interférences dues à l'interface air-échantillon (voir 3.5.1 pour plus de détails). Ce traitement n'était toutefois initialement pas présent lors des premières mesures présentées dans cette partie.

La photoluminescence est de nouveau mesurée sur les empilements dont les résultats sont en Figure 3.22(b) et (c). L'émission des BatQs est centrée autour de 1590 nm et sa largeur à mi-hauteur est de 160 nm (78,5 meV). La PL en fonction de la polarisation révèle une structure fortement polarisée, où le pompage polarisé dans la direction parallèle aux bâtonnets est favorable, avec un rapport de 0,54 de l'intensité de PL intégrée mesurée entre les deux polarisations de pompage. Quant à la structure à BQs qui est peu dépendante de la polarisation, la PL révèle une même émission de forme gaussienne centrée à 1519 nm et large de 156 nm (84 meV) à température ambiante. La PL de ces deux échantillons est réalisée avec un laser Nd :YAG émettant à 1064 nm avec une puissance de 20 mW.

La transmission des échantillons (non polarisée) est également mesurée avant l'application du traitement antireflet. La Figure 3.23 montre les résultats obtenus. Dans les deux cas, les spectres ne révèlent pas de manière évidente des transitions aussi marquées que dans le cas des puits quantiques. Cela peut s'expliquer par le fait notamment que les largeurs inhomogènes attendues sont plus importantes que pour les puits quantiques, que l'absorbance de l'échantillon est moindre, et que l'empilement des couches avec des indices optiques différents provoque un effet de filtrage.

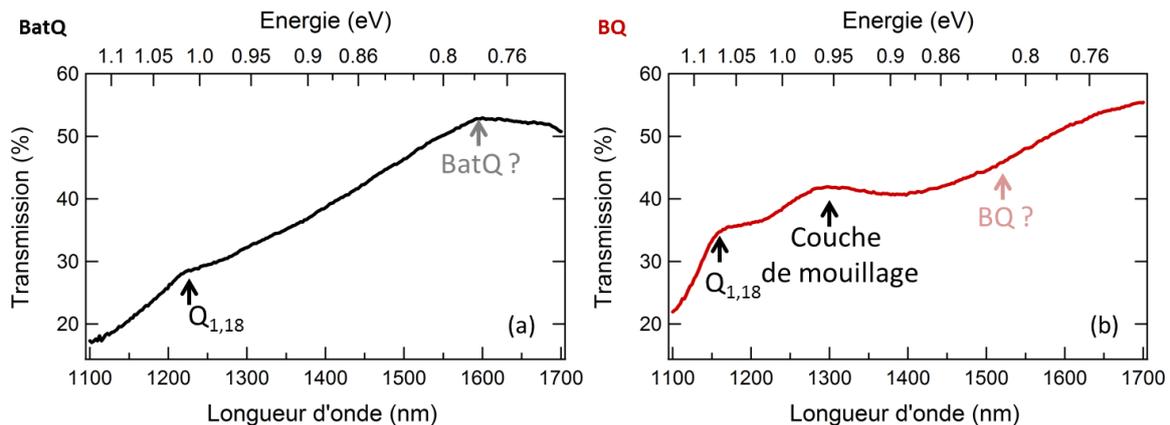


Figure 3.23 : Spectres de transmission des échantillons (a) 6354-1 (BatQ) et (b) 6364-2 (BQ). Les annotations plus claires, avec un point d'interrogation, sont placées en se référant à la PL des échantillons.

Le spectre des BatQs ne révèle que peu d'informations : nous observons uniquement le seuil d'absorption de la couche barrière autour de 1220 nm, qui est d'ailleurs difficile à identifier précisément. Ce seuil semble plus visible sur le spectre des BQs, à 1150 nm, et où on repère

également, mais avec plus de difficulté, la couche de mouillage vers 1290 nm. Cependant, contrairement au spectre de transmission de notre structure de référence à puits quantiques, il est ici impossible de voir un creux correspondant à l'absorption des nanostructures, d'où la prédiction d'une transmission différentielle bien plus faible pour les BQs et les BatQs.

3.5 Spectroscopie de saturation d'absorption de la structure à puits quantiques

3.5.1 Interférences

L'échantillon à puits quantiques est utilisé pour étalonner, puis valider le montage expérimental. Les premiers scans effectués avec une résolution inférieure à 1 nm (Figure 3.24(a)) révèlent des interférences très nettes et conséquentes : le taux de modulation moyen est de 24,5%. La période des interférences est de 1 nm autour de 1550 nm, soit 125 GHz.

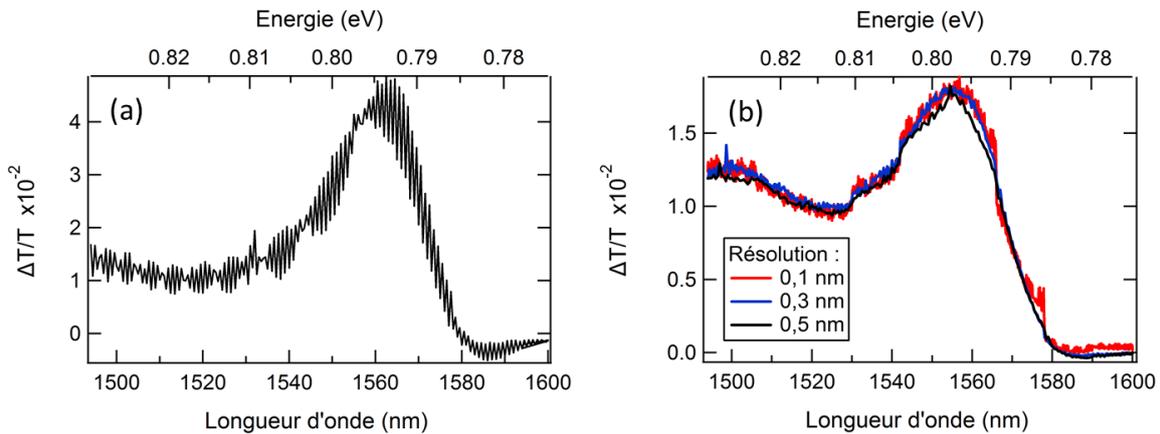


Figure 3.24 : Vérification de la présence d'interférences (a) avant traitement antireflet pour une résolution r de 0,5 nm et (b) après traitement pour $r=0,5$ nm (courbe noire), $r=0,3$ nm (courbe bleue) et $r=0,1$ nm (courbe rouge).

Pour connaître leur origine, nous calculons la longueur L de la cavité dans laquelle elles se forment :

$$L = \frac{c}{2n\Delta\nu}. \quad (3.44)$$

Pour un indice de réfraction du verre $n = 1,5$, $L = 800 \mu\text{m}$, épaisseur trop petite pour correspondre aux fenêtres du cryostat, et pour l'indice de réfraction de l'InP, $L = 380 \mu\text{m}$, du même ordre de grandeur que l'échantillon. Elles sont donc dues aux interfaces air-semiconducteur. Pour résoudre ce problème, nous avons effectué un traitement antireflet monocouche de Si_3N_4 d'épaisseur $e_{\text{Si}_3\text{N}_4} \sim 200 \text{ nm}$, sur les deux faces des trois échantillons. Ce matériau est choisi car son indice de

réfraction à 1,55 μm remplit la condition suivante : $n_{\text{Si}_3\text{N}_4} \sim \sqrt{n_{\text{InP}}}$; de plus l'épaisseur de la couche de Si_3N_4 déposée remplit la deuxième condition étant $e_{\text{Si}_3\text{N}_4} = \lambda / (4 n_{\text{Si}_3\text{N}_4})$. Ces deux conditions sont nécessaires pour que le traitement antireflet soit efficace.

Effectivement, ce traitement antireflet supprime presque totalement ces interférences comme on peut le voir à la Figure 3.24(b) pour les résolutions de 0,5 nm et 0,3 nm. Par ailleurs, de nouvelles interférences apparaissent de manière bien visible pour $r = 0,1$ nm la meilleure résolution. Elles ont une période plus faible : 0,31 nm, soit 39 GHz, ce qui correspond à une épaisseur de verre de 2,5 mm. Cette fois, elles peuvent être liées aux fenêtres du cryostat. Néanmoins, elles restent bien moins importantes, avec un taux maximal de modulation de 4%. Le problème d'interférences est donc résolu.

3.5.2 Résolution du problème de « marches »

Egalement lors des premiers scans, une deuxième source de dégradation du spectre est présente, et est illustrée par la Figure 3.25(a).

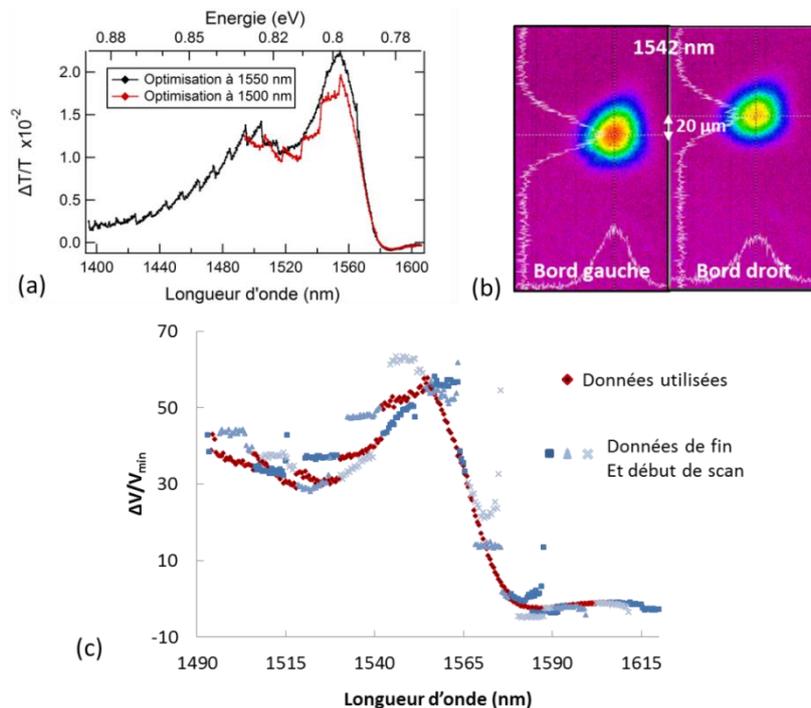


Figure 3.25 : (a) Spectres obtenus pour des optimisations du signal à 1500 nm (rouge) et 1550 nm (noir). (b) Images du faisceau de sonde après son passage dans le monochromateur, sur le bord gauche et le bord droit du SLM, pour la même longueur d'onde sélectionnée. (c) Spectre de SHB pour une optimisation à 1500 nm, où la plage spectrale gardée est affichée en rouge, et les plages spectrales scannées mais supprimées lors du traitement sont affichées en bleu. Différentes formes et nuances de bleu se succèdent pour discerner les scans consécutifs.

Des « marches », d'ailleurs bien plus visibles sans les interférences, apparaissent lorsque la plage de longueur d'onde parcourue est supérieure à 80 nm, avec un alignement optimisé à la longueur d'onde centrale. Il s'avère en fait que le faisceau se déplace spatialement lorsque le réseau tourne. Cet effet spatio-temporel se retrouve dans la littérature, notamment dans la référence [170]. Les spots de pompe et de sonde étant de taille équivalente, même un léger décalage entraîne un désalignement des faisceaux sur l'échantillon. En effet en regardant le faisceau de sonde incident sur l'échantillon avec la caméra infrarouge, pour 1542 nm, là où la marche est la plus prononcée, le faisceau choisi à cette longueur d'onde se déplace de 20 μm lorsqu'il est sélectionné par le bord droit ou par le bord gauche (plus une rotation du réseau) du SLM (Figure 3.25(b)). Lors du traitement des données, seule une plage spectrale restreinte de 10 à 12 nm par « balayage » du SLM est conservée pour des raisons de puissance de l'OPO, mais à l'acquisition toute la plage (26 nm) est mesurée. Ainsi à la Figure 3.25(c), toutes les données mesurées sont affichées sur le spectre pour des plages de 10 nm. On remarque que les données censées coïncider (fin et début de scan suivant) sont au final très différentes, créant les marches sur le spectre traité.

Ainsi, pour résoudre le problème sur toute la plage de longueur d'onde, deux solutions sont retenues : diminuer la taille du faisceau de sonde sur l'échantillon et filtrer spatialement le faisceau avant son alignement sur l'échantillon. On peut aisément combiner ces deux solutions (la première appliquée seule est insuffisante) en utilisant un iris de 100 μm de diamètre placé entre deux lentilles formant le télescope utilisé pour la première solution, présentant un grandissement de 2. Il est réalisé avec une lentille convergente de focale $f_1=10$ cm qui focalise le faisceau sur l'iris et une deuxième lentille placée à 20 cm, de focale $f_2=20$ cm, qui collimate le faisceau. En réalité, le faisceau en sortie du dispositif est bien plus gros car il est diffracté par l'iris. Le diamètre du faisceau est mesuré avec la caméra infrarouge avant la lentille et est égal à 3,9 mm. Par conséquent, une fois sur l'échantillon, le spot de sonde se superpose parfaitement au spot de pompe et est en général trois fois plus petit, avec un waist inférieur à 11 μm pour toute la gamme de longueur d'onde. Ce nouveau système diminue la puissance de la sonde sur l'échantillon, qui devient inférieure à 30 μW .

Le problème est résolu pour le déplacement du faisceau sur l'échantillon, mais qu'en est-il suivant la direction de propagation ? En effet, nous avons choisi des lentilles asphériques pour corriger les aberrations sphériques, mais celles-ci ne sont pas achromatiques : leur distance focale, dépendante de n l'indice de réfraction de leur matériau, varie en fonction de la longueur d'onde. Or durant les scans, la sonde balaie des plages de longueurs d'onde très larges, et il est impossible de réaligner

son faisceau en cours d'acquisition. Ainsi, nous allons vérifier si l'alignement reste convenable pour toutes les longueurs d'onde. La variation de focale en fonction de la longueur d'onde est donnée par le constructeur. Nous reportons sa valeur relative, en prenant pour référence 1500 nm, longueur d'onde où l'alignement est systématiquement optimisé, dans le Tableau 3.2. On voit que la focale est réduite au maximum de 388 μm à la longueur d'onde de 1100 nm. Le waist du faisceau de sonde a été calculé pour les longueurs d'onde extrêmes de notre plage de mesure et varie entre 7 et 11 μm .

L'effet principal de la variation de focale est de reculer ou avancer la position du waist du faisceau de sonde. En conséquence, le faisceau de sonde sera plus gros lorsqu'il se superpose au faisceau de pompe. Pour s'assurer que le spot de sonde soit toujours le plus petit des deux, le rayon des faisceaux sur l'échantillon est calculé en prenant en compte la variation de la distance focale. Pour la sonde, dont le spot est petit donc beaucoup plus divergent, le problème se pose plutôt aux basses longueurs d'onde. Cependant, même désaligné avec un rayon de 20 μm , le spot ne devient jamais plus gros que le faisceau de pompe (27 μm).

	Sonde		Pompe		PNR
Plage spectrale (nm)	1100	1610	1480	1560	1064
Waist incident w (μm)	1950		700		250
Waist focalisé w_0' (μm)	7	11	27	28	54
Variation de focale (mm)	-0,388	0,103	0,019	0,056	
z_R (mm)	0,140	0,236	1,547	1,579	
Waist sur l'échantillon (μm)	20	12	27	28	

Tableau 3.2 : Caractéristiques des faisceaux et vérification de la chromaticité de la lentille, pour référence à 1500 nm.

Pour conclure, la sonde est dorénavant toujours centrée sur le faisceau de pompe et son waist est plus petit, sur toute la plage spectrale. Le montage est donc maintenant parfaitement opérationnel et peut être testé avec un échantillon de référence.

3.5.3 Validation du montage expérimental

Nous analyserons, pour étalonner et vérifier le montage, la réponse de l'échantillon de référence à puits quantiques en puissance et en température. Les résultats auxquels nous nous comparons en matière d'absorption différentielle et de saturation d'absorption sur un empilement de

50 puits quantiques InGaAs/InAlAs/InP à température ambiante sont issus d'une référence des années 80 [174] où la saturation de l'absorption des puits quantiques a été étudiée dans le contexte des modulateurs à électroabsorption. La comparaison stricte des valeurs avec la littérature n'est pas adéquate car de nombreux paramètres impactant l'absorption changent : nombre de puits, épaisseurs et matériau barrière. La considération de l'ordre de grandeur et de l'évolution est plus pertinente.

3.5.3.1 A température ambiante

A température ambiante (Figure 3.26), nous obtenons un spectre différentiel semblable à la référence [174] mais sur une plage spectrale bien plus grande, avec le pic d'excitons de trous lourds à 1555 nm (0,797 eV), et de trous légers à 1501 nm (0,826 eV). On remarque cependant que les pics sont beaucoup plus marqués sur notre échantillon et leur largeur plus petite. Comme notre échantillon contient 12 puits au lieu de 50, et que l'épitaxie est mieux maîtrisée maintenant, il semble normal que la largeur des pics excitoniques soit plus faible. Nous effectuons alors plusieurs études, pour observer la dépendance de ces deux pics à la longueur d'onde de la pompe et à sa puissance.

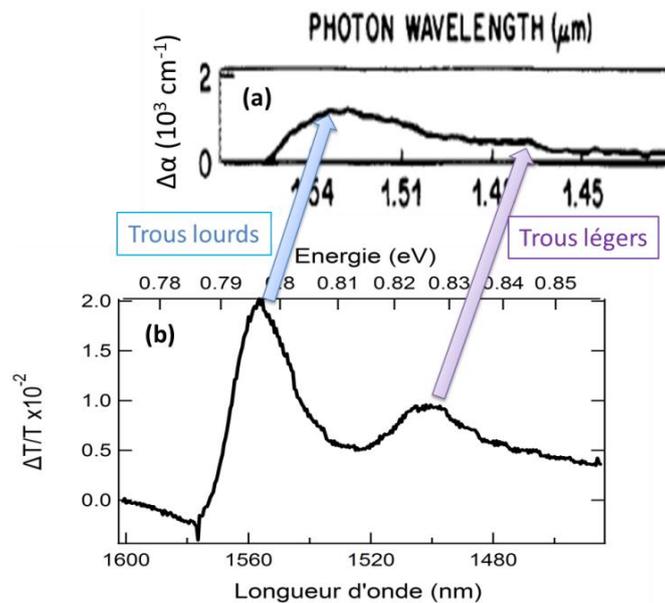


Figure 3.26 : Spectres d'absorption saturée obtenus sur les puits quantiques (a) InGaAs/InAlAs de l'article de référence [174](pompage à 1520 nm, 19 kW/cm²) et (b) InGaAs/InP de notre échantillon (pompage à 1480 nm, 437 W/cm²).

Grâce à la première, nous observons que la forme du spectre ne dépend aucunement de la longueur d'onde de la pompe, de 1480 à 1560 nm. Seule l'intensité des pics varie. Les spectres acquis à 1500 et 1550 nm sont présentés à la Figure 3.27(a). Avec l'étude en puissance, dont les spectres acquis de 0,25 à 7 mW sont présentés à la Figure 3.27(b), nous pouvons vérifier la dépendance en puissance de la largeur à mi-hauteur et de l'intensité de transmission différentielle. D'abord, nous étudions

l'évolution de la largeur à mi-hauteur. Pour plus de visibilité, nous avons représenté, à la Figure 3.27(c), les spectres acquis à $P = 0,25$ et 7 mW dont l'intensité des deux pics d'excitons de trous lourds est normalisée ($\times 3,2$ pour $P = 0,5$ mW) afin qu'ils correspondent. Nous remarquons que la largeur à mi-hauteur des pics augmente. Pour la mesurer le plus précisément possible, nous devons ajuster les spectres avec quatre gaussiennes : deux gaussiennes correspondent évidemment aux deux pics de trous légers et de trous lourds ; alors que la troisième permet d'ajuster le reste de l'absorption côté haute énergie, et la quatrième est nécessaire pour ajuster le creux que l'on trouve à 1576 nm. Ce creux, présentant un ΔT négatif, est dû au décalage thermique de l'absorption, induit par le pompage. A l'aide de l'ajustement multiple par quatre gaussiennes du spectre à $P = 0,25$ mW, nous trouvons une largeur à mi-hauteur de $10,5 \pm 0,3$ meV. Avec la puissance, nous remarquons qu'elle augmente jusqu'à $12,5 \pm 0,7$ meV pour $P = 7$ mW.

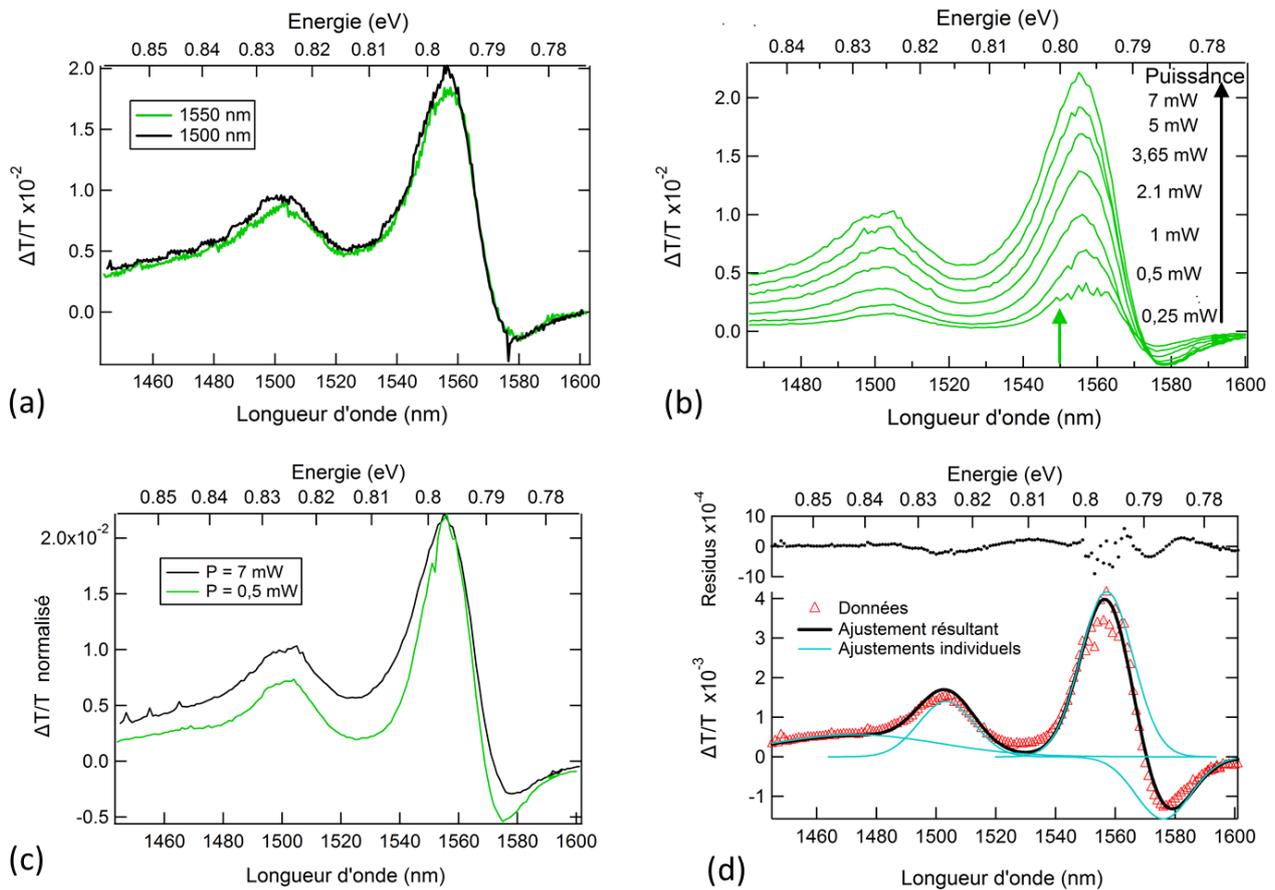


Figure 3.27 : Spectres de transmission différentielle de l'échantillon à PQs (a) pour deux longueurs d'onde de pompe : 1500 nm (courbe noire) et 1550 nm (courbe verte), pour $P=5$ mW. (b) Spectres effectués à 1550 nm pour différentes puissance de pompe. (c) Spectres normalisés ($\times 3,2$ pour $P=0,5$ mW) permettant de visualiser l'évolution de la largeur à mi-hauteur en fonction de la puissance de la pompe émettant à 1550 nm. (d) Ajustement multiple gaussien permettant de mesurer la largeur à mi-hauteur du pic d'excitons de trous lourds.

La largeur à mi-hauteur de l'absorption d'un empilement de 20 puits quantiques InGaAs/InP a été mesurée à 14 meV [175]. Nous mesurons une largeur à mi-hauteur de $10,5 \pm 0,3$ meV (à plus basse puissance) pour notre empilement de 12 puits quantiques InGaAs/InP, plutôt proche de la valeur rapportée précédemment. La différence peut se trouver dans les variations d'épaisseur des plans : avec un plus grand nombre de plans, il est plus difficile d'obtenir des plans identiques, d'où des énergies légèrement différentes résultant en un élargissement spectral. Ainsi avec 12 plans, nous ne pouvons pas dire avec certitude que notre largeur à mi-hauteur correspond à la largeur homogène, mais nous pouvons affirmer que $\gamma_{PQ} < 10,5$ meV [176]. D'ailleurs d'après la référence [176], une fois l'élargissement inhomogène déconvolué de la largeur à mi-hauteur, elle peut-être jusqu'à 1,6 fois plus faible. Notre valeur est également comparable à d'autres structures avec des matériaux différents, dont le spectre d'absorption a pour largeur à mi-hauteur une valeur comprise entre 8 et 13 meV [177]–[180].

Concernant l'intensité de $\Delta T/T$ du pic d'exciton de trous lourds pour les faibles saturations, à partir des équations (3.13) et (3.29), nous obtenons, comme approximation de sa valeur :

$$\frac{\Delta T}{T} = -\Delta\alpha L = -\alpha_0 L \left(\frac{1}{1+S} - 1 \right),$$

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\alpha_0 L S}{1+S}. \quad (3.45)$$

La transmission différentielle doit donc passer d'une évolution linéaire avec la puissance : $\alpha_0 L S$ pour $S \ll 1$, à une phase quasi-constante $\frac{\Delta T}{T} = \alpha_0 L$ pour $S \gg 1$ (approximation de la valeur non valable dans ce cas, voir partie 3.1.5). Ces deux asymptotes se croisent lorsque $S = 1$, soit $I = I_s$.

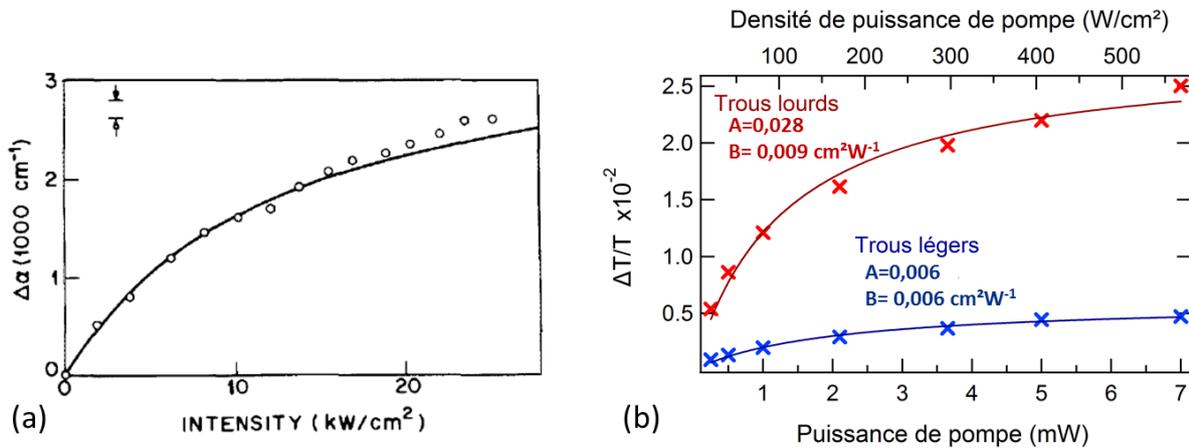


Figure 3.28 : Etude de l'impact de la puissance de la pompe sur l'intensité de transmission différentielle avec (a) les mesures de l'article de référence [174] et (b) nos mesures qui différencient les trous lourds (croix rouges) et les trous légers (croix bleues). Les courbes en traits pleins sont les ajustements avec l'équation (3.45).

L'ajustement de la transmission différentielle (des deux pics) par la relation (3.45) est réalisé à la Figure 3.28, avec en (a) le spectre de référence [174] et en (b) nos mesures. Premièrement, les deux courbes sont très semblables au niveau de la forme.

Deuxièmement, grâce à l'ajustement, nous pouvons extraire les deux coefficients $A = \alpha_0 L$ et $B = 1/I_s$.

- A permet de retrouver l'absorption de nos puits quantiques, et est égal à $0,028 \pm 0,002$.

La longueur de la zone active est $L = 6 \times 12 = 72$ nm, d'où $\alpha_0 = 3900$ cm⁻¹. Pour des puits InGaAs/InP, l'absorption est normalement bien plus grande, autour de 8500-9000 cm⁻¹ [175] pour une largeur à mi-hauteur plus grande que la nôtre de 1/3 (14 meV). Or, d'après le spectre de transmission de la partie 3.4.1, lorsque les PQs sont totalement saturés ($S \gg 1$), nous devrions obtenir $\Delta T/T = \alpha_0 L = 0,11$, d'où $\alpha_0 = 15000$ cm⁻¹. Ceci peut être expliqué par la saturation incomplète de notre absorption. En effet, il est très probable que nous saturons la partie excitonique, mais pas la partie bande à bande. Dans l'article de référence [174] en effet, en utilisant une intensité quasiment deux fois supérieure à leur intensité de saturation mesurée ($I_s = 10$ kW/cm²), les auteurs ne saturent qu'un tiers de l'absorption (voir Figure 3.29). Il y a donc deux intensités de saturation, une pour les excitons (contribuant à ~1/3 du coefficient d'absorption) et une pour les paires électrons trous (côté haute énergie), qui est plus importante. Les ordres de grandeurs sont donc bons puisque les 3900 cm⁻¹ mesurés en absorption saturée sont proches de $\frac{1}{3} \times 15000 = 5000$ cm⁻¹.

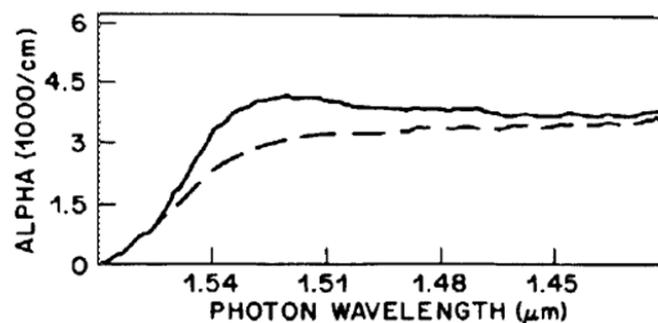


Figure 3.29 : Spectre d'absorption des PQs InGaAs de la référence [174]. Les lignes continue et pointillée correspondent respectivement à une intensité de pompe de 0 kW/cm² (absorption classique) et 19 kW/cm² (saturation incomplète de l'absorption).

- B permet de retrouver l'intensité ou la puissance de saturation.

Les ajustements ne permettent pas d'obtenir une valeur de B très précise : elle est de $0,0093 \pm 0,0015$ cm²/W, ce qui donne $I_s = 107 \pm 17$ W/cm² (et 162 ± 25 W/cm² pour les trous légers). Cette intensité est bien inférieure à celle mesurée dans l'article de référence où $I_s = 10$ kW/cm².

Cependant, dans d'autres références [177] et [179], la spectroscopie de saturation de l'absorption de puits multiples GaAs/GaAlAs montre des intensités de saturation et de coefficient d'absorption plus proches des nôtres, de 200 à 500 W/cm². Si le plus grand élargissement des pics de la référence [174] peut jouer sur la valeur de I_S , la principale explication serait une focalisation des faisceaux de pompe et de sonde moins bonne que celle des lentilles asphériques que nous utilisons.

On retrouve bien la dépendance de la largeur et de l'intensité de transmission différentielle prédite par la théorie avec des valeurs comparables à la littérature. Ces mesures démontrent que notre montage expérimental est bien « étalonné » et valide à température ambiante. Afin d'être complètement opérationnel pour les BQs et BatQs, nous allons vérifier si le montage est toujours valide à plus basse température, jusqu'à 77K, limitation technique de notre montage.

3.5.3.2 En fonction de la température et couplage aux phonons

Décalage spectral dû à la température

Nous avons donc procédé à la mesure par spectroscopie de saturation d'absorption de la valeur haute de la largeur homogène (due à l'empilement de PQs) et de l'absorption des puits quantiques InGaAs/InP de la température ambiante jusqu'à 77K. L'ensemble des spectres est présenté à la Figure 3.30. A partir de 110K et jusqu'à 77K, l'intensité récoltée est très faible car le centre de la distribution de trous lourds est bien plus faible que 1480 nm (entre 1440 et 1450 nm), la limite basse de la pompe résonante. Par conséquent, pour obtenir un spectre à 77K, la pompe non-résonante est utilisée (spectre violet en pointillés).

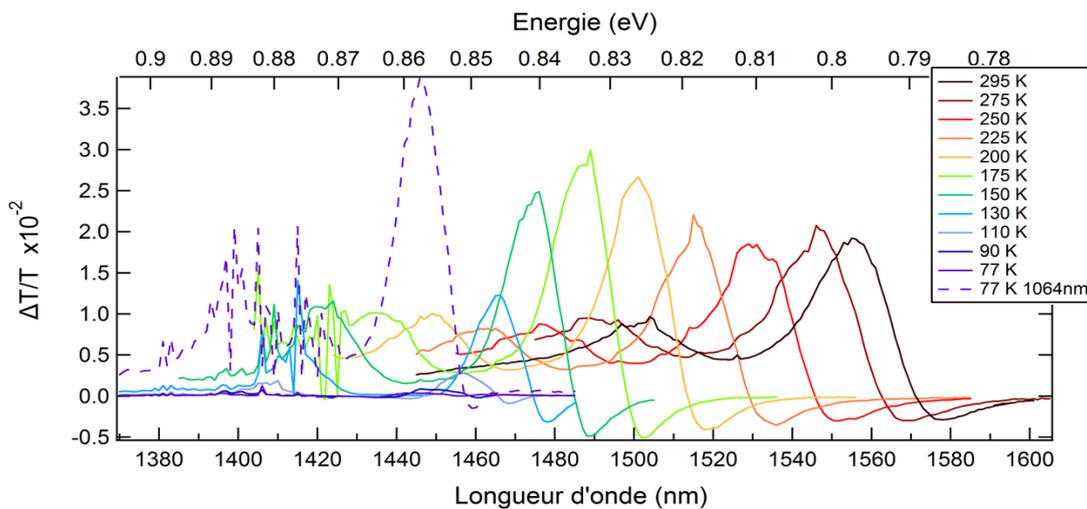


Figure 3.30 : Ensemble des spectres de transmission différentielle en température pour les puits quantiques. Les courbes en trait plein sont réalisées à 1480 nm et en pointillés à 1064 nm.

En effet les deux pics, de trous lourds et trous légers, se déplacent vers les hautes énergies lorsque la température diminue, et leur énergie suit l'équation de Varshni [181] :

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (3.46)$$

avec α et β des constantes liées au matériau et à la structure de l'échantillon. Nous avons représenté à la Figure 3.31 l'évolution de l'énergie des excitons de trous lourds (en orange) et de trous légers (en bleu) avec la température. Après un ajustement des données avec l'équation de Varshni, nous obtenons $\alpha = 4 \cdot 10^{-4}$ eV/K, $\beta = 226$ K, et $E_g(0) = 0,864$ eV pour les trous lourds, et presque les mêmes coefficients pour les trous légers ($\alpha = 4,2 \cdot 10^{-4}$ eV/K et $\beta = 215$ K), mais avec une énergie à $T = 0$ K plus haute : $E_g(0) = 0,897$ eV. Les constantes α et β retrouvées sont quasiment identiques à celles rapportées pour le même type de structure [182].

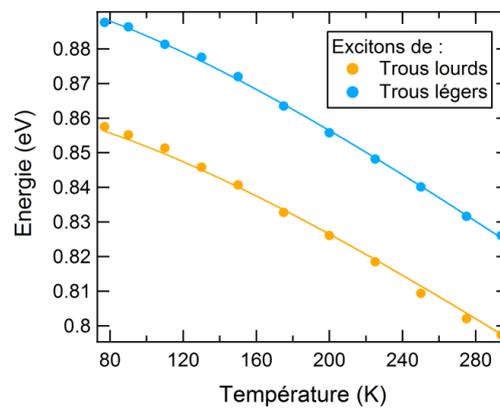


Figure 3.31 : Evolution de l'énergie du pic excitonique de trous lourds (en orange) et de trous légers (en bleu) en fonction de la température, et leur ajustement avec l'équation de Varshni.

Largeur homogène

Nous observons également sur les spectres une forte croissance de la largeur à mi-hauteur, et donc de la largeur homogène, lorsque la température augmente. Nous avons représenté cette évolution à la Figure 3.32(a) avec la demi-largeur à mi-hauteur du pic de trous lourds, afin de comparer nos résultats à la littérature. Nous extrayons la demi-largeur à mi-hauteur comme expliqué précédemment en 3.5.3.1, avec un ajustement de quatre gaussiennes des spectres acquis à faible puissance de pompe (ou corrigé par un facteur sur la saturation), de 77 K à 295 K. Pour les spectres mesurés avec la PNR à 4,2 mW, les largeurs sont corrigées par un facteur sur la saturation, mesuré à température ambiante puis adapté en fonction de la température. Nous constatons que la demi-largeur à mi-hauteur varie peu de 77 K à 130 K où sa valeur est autour de 2,1 meV, puis augmente plutôt linéairement pour atteindre 5,25 meV à température ambiante.

D'après la littérature, dans les nanostructures 2D telles que les puits quantiques, l'élargissement homogène suit cette loi [183], [184] :

$$\gamma(T) = \gamma_0 + aT + \frac{b}{e^{\hbar\omega_{LO}/k_B T} - 1} \quad (3.47)$$

avec γ_0 la largeur homogène à température nulle, a et b des constantes propres à l'échantillon, et $\hbar\omega_{LO}$ l'énergie des phonons optiques longitudinaux dans le matériau. Pour l'InP, $\hbar\omega_{LO} \sim 42,8$ meV, pour le GaAs, $\hbar\omega_{LO} \sim 36,8$ meV et pour l'InAs, $\hbar\omega_{LO} \sim 30,5$ meV [184]. Le terme aT représente la contribution des phonons acoustiques, d'énergies bien plus faibles que $k_B T$, et le dernier terme le couplage aux phonons optiques, proportionnel à la distribution de Bose-Einstein pour le nombre d'occupation de ceux-ci. Pour notre gamme de température, elle peut se simplifier à [178], [185] :

$$\gamma(T) = \frac{b}{e^{\hbar\omega_{LO}/k_B T} - 1} \quad (3.48)$$

car la contribution des phonons acoustiques est bien moins importante que celle des phonons optiques. Néanmoins cette équation ne fonctionne pas pour ajuster nos données car il existe un offset conséquent présent à 0 K pour des puits quantiques multiples (mais proche de 0 pour un seul plan [176], [178]), et correspondant à l'élargissement inhomogène dû à la variation de leur épaisseur ou de la composition de l'alliage InGaAs utilisé. Cet élargissement supplémentaire est intégré à l'équation précédente dans les références [177], [179], [180] :

$$\gamma(T) = \gamma_{offset} + \frac{b}{e^{\hbar\omega_{LO}/k_B T} - 1}. \quad (3.49)$$

Afin de comparer nos résultats aux références citées précédemment, dont une série de valeurs [177] est représentée à la Figure 3.32(b), nous ajustons les valeurs de demi-largeur à mi-hauteur obtenues en fonction de la température avec l'équation (3.49).

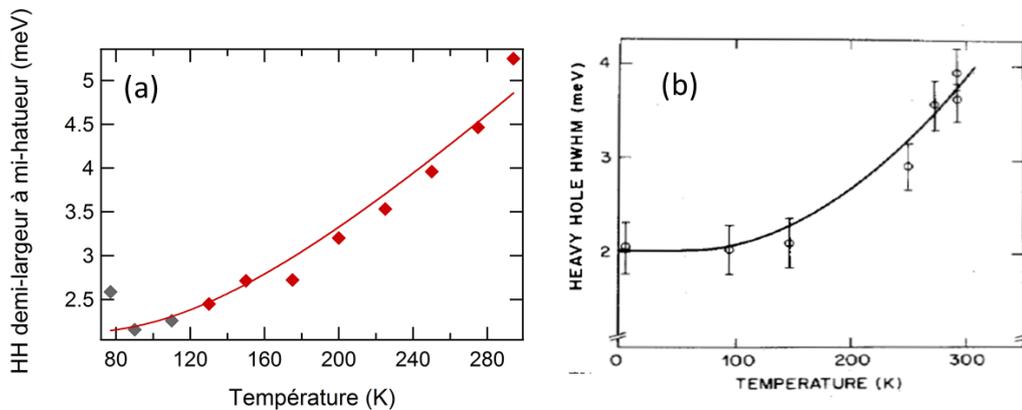


Figure 3.32 : (a) Evolution de la demi-largeur à mi-hauteur du pic gaussien de trous lourds en fonction de la température. Les points grisés sont les points où il est difficile d'obtenir une valeur avec la pompe à 1480 nm. (b) Etude sur des puits quantiques GaAs/GaAlAs, et qui provient de [177].

La mesure de γ_{offset} est compliquée car comme expliqué en 3.3.3, d'une part nous ne descendons pas en dessous de 77 K et d'autre part, notre pompe résonante n'est pas suffisamment accordable pour être en résonance avec la transition. Les points à plus basse température sont donc pris avec la pompe non résonante. Nos coefficients d'ajustement concordent avec la littérature et notre γ_{offset} est compris dans l'intervalle de valeurs rapporté : pour $\hbar\omega_{LO} = 36$ meV [177], [183], nous obtenons $b = 8,6$ meV et $\gamma_{offset} = 2,1$ meV. Par conséquent, nous trouvons également des largeurs proches, avec un écart de 20% comparé aux structures GaAs/GaAlAs [177], [179] ainsi qu'une évolution semblable, également par rapport à la référence [180] (structure InGaAs/InAlAs), dans la gamme de température disponible : une largeur augmentant peu jusqu'à 150 K mais qui est doublée entre 77K et la température ambiante.

Pour conclure, nos différentes études sont en accord avec la théorie et les valeurs expérimentales rapportées dans la littérature pour les puits quantiques. Par conséquent, notre montage expérimental donne des résultats cohérents avec la littérature de 77K à température ambiante. Il est donc prêt à recevoir les échantillons à BatQs et BQs.

3.6 Spectroscopie et comparaison des structures à BQs et à BatQs

Pour la spectroscopie de saturation des BQs et BatQs, nous commençons cette fois par la température la plus basse que nos équipements permettent, c'est-à-dire 77K, car nous avons vu précédemment que le couplage aux phonons est amplifié par la température. Ainsi à basse température, la mesure est physiquement plus simple à interpréter. Les BatQs présentant une forte anisotropie optique, il est important de préciser que toutes les mesures suivantes, si rien n'est mentionné, sont faites avec la pompe polarisée parallèlement aux bâtonnets, et la sonde croisée.

3.6.1 A basse température

La largeur homogène des nanostructures est d'abord explorée en les refroidissant jusqu'à 77K. A cette température très basse, comme montré à la Figure 3.33, le spectre de transmission différentielle en pompage résonant des BatQs (a) et des BQs (b) consiste en un pic très fin (largeur à mi-hauteur < 1 meV), centré sur la longueur d'onde de pompe, et qui est la signature d'un comportement inhomogène en spectroscopie non-linéaire d'absorption. Le spectre de transmission différentielle en excitation non-résonante de ces deux échantillons a également été mesuré avec le laser émettant 131 W/cm² à 1064 nm, et correspond à l'absorption inhomogène. Les deux spectres

de transmission différentielle en pompage résonant et non-résonant sont superposés sur la Figure 3.33(c) pour les BatQs et (d) pour les BQs. L'absorption inhomogène large de 55 meV des BatQs est centrée à 1472,5 nm (0,842 eV) tandis que l'absorption toute aussi large des boîtes est centrée à 1417 nm (0,875 eV). Ainsi pour cette dernière, le pompage résonant à 1480 nm (limite basse de la plage spectrale du laser) excite la population de boîtes du côté basse énergie du spectre et mène à une réponse plus faible qu'anticipée par rapport à la valeur de l'absorption des BQs InAs/InP de la littérature [175]. Le deuxième pic observé sur le spectre de transmission différentielle en excitation non-résonante à plus haute énergie (102 meV pour les bâtonnets et 92 meV pour les boîtes) correspond à la couche de mouillage.

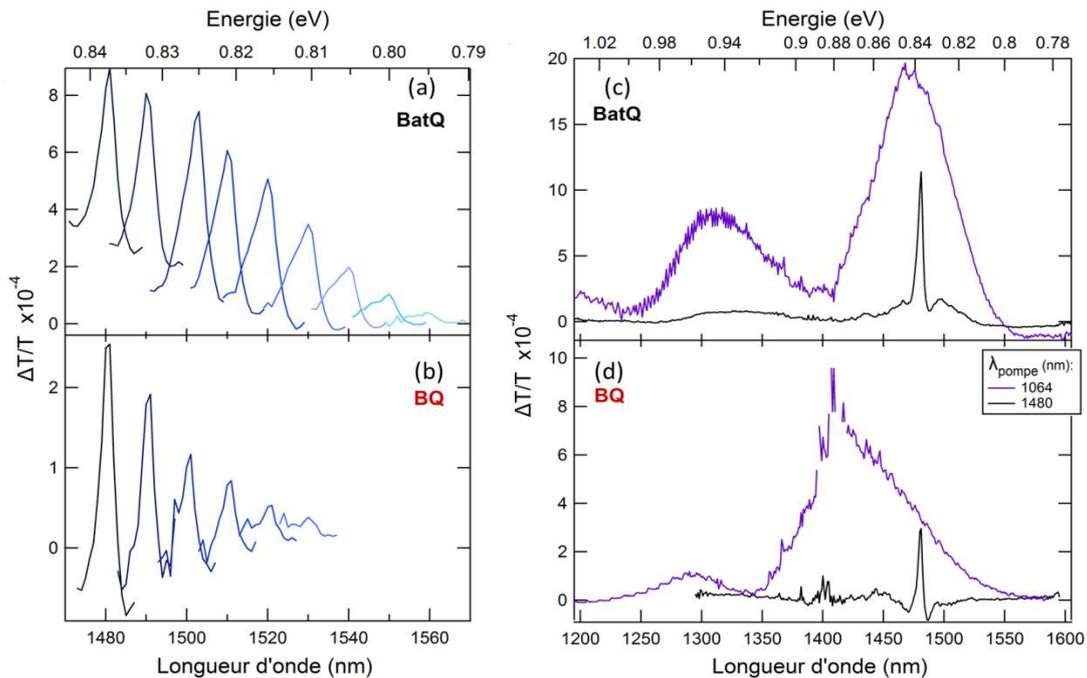


Figure 3.33 : (a) Transmission différentielle des BatQs à 77K pour plusieurs λ_{pompe} variant de 1480 nm à 1560 nm tous les 10 nm. Chaque pic correspond à un λ_{pompe} différent et est centré dessus. (b) Idem pour les BQs, mais avec λ_{pompe} de 1480 nm à 1530 nm. (c) Spectres de transmission différentielle des BatQs pour $\lambda_{pompe}=1064$ nm (courbe violette) et $\lambda_{pompe}=1480$ nm (courbe noire) pour des intensités de pompes similaires à 77K. (d) Idem pour les BQs. Le bruit visible sur les spectres autour de 1400 nm est causé par la forte absorption de la vapeur d'eau.

Deux choses inattendues apparaissant sur les spectres réalisés en pompage résonant méritent d'être détaillées. Premièrement, on observe sur le spectre des BatQs que le pic fin attendu se superpose à un signal de fond beaucoup plus large spectralement, dont l'intensité maximale correspond à 10% du pic de SHB, mais dont l'intensité intégrée représente 52% du signal total. Il est probablement dû au couplage électronique, encore relativement faible à cette température, entre des bâtonnets résonants et non-résonants à la pompe : une portion des porteurs générés s'échappent vers les bâtonnets environnants quelle que soit leur énergie. Pour nos structures à forte densité, le couplage électronique est principalement causé par la couche de mouillage car l'énergie de confinement est

autour de 100 meV (plus faible que dans les structures à base de GaAs), avec du couplage direct entre les nanostructures possible mais très faible. Les mesures pour les deux nanostructures sont effectuées à la même température, impliquant la même redistribution thermique ; par conséquent nous comparons directement la redistribution des porteurs par effet tunnel. Celle-ci est très sensible à la densité surfacique, et donc, à la distance entre les nanostructures. En effet, tandis que chaque échantillon comporte de fortes densités, les BatQs sont plus proches les uns des autres, étant allongés dans une direction. La distance moyenne entre les BatQs est d'environ 5 nm alors qu'elle est de 30 nm pour les BQs. L'utilisation d'une pompe continue pour la spectroscopie de saturation d'absorption rend possible l'observation du couplage électronique.

Deuxièmement, et cette fois pour les BQs également, un creux de plus faible intensité apparaît à côté du pic excitonique $E_{pic} = 0,8373$ eV à plus basse énergie, $E_{creux} = 0,8339$ eV. Un deuxième creux de plus haute énergie est présent uniquement pour les BQs. Ces ΔT négatifs signifient une transmission réduite lorsque l'on sature avec la pompe. On s'attend à observer cela par exemple, si la création d'excitons dans les nanostructures donne accès à des niveaux d'énergie plus élevés auxquels le système pourra accéder par absorption d'un photon de la sonde. On parle alors d'absorption photo-induite.

3.6.1.1 Etude de l'intensité intégrée en fonction de l'intensité d'excitation

Pour élucider l'origine de cette absorption photo-induite, un agrandissement du spectre de SHB autour du pic excitonique est présenté sur la Figure 3.34(a) pour les BatQs et (b) pour les BQs avec $\lambda_{pompe} = 1480$ nm. D'après la littérature, les courbes de SHB peuvent être ajustées soit par une lorentzienne, soit par une gaussienne. Dans notre cas, au moins trois signaux s'entremêlent en comptant l'absorption saturée en raison du couplage électronique pour les BatQs et le deuxième creux pour les BQs. Un simple ajustement n'étant pas pertinent, le spectre doit être décomposé par des ajustements multiples. Nous trouvons que pour les BQs, trois distributions lorentziennes ajustent bien l'intégralité du spectre alors que trois distributions gaussiennes en sont incapables. Pour les BatQs, le couplage électronique est ajusté avec une gaussienne pour les puissances supérieures à 1 mW, car sa forme est déjà celle de la distribution inhomogène, et avec simplement une ligne de base pour des puissances inférieures car la redistribution sur toute la population n'est pas assurée. Notons que la sensibilité du dispositif expérimental développé s'avère importante ici, car les amplitudes des pics négatifs pour les BQs sont inférieures à 10^{-4} . Heureusement, le bruit est inférieur d'un ordre de grandeur, ce qui nous permet de mesurer assez finement les aires des différents pics.

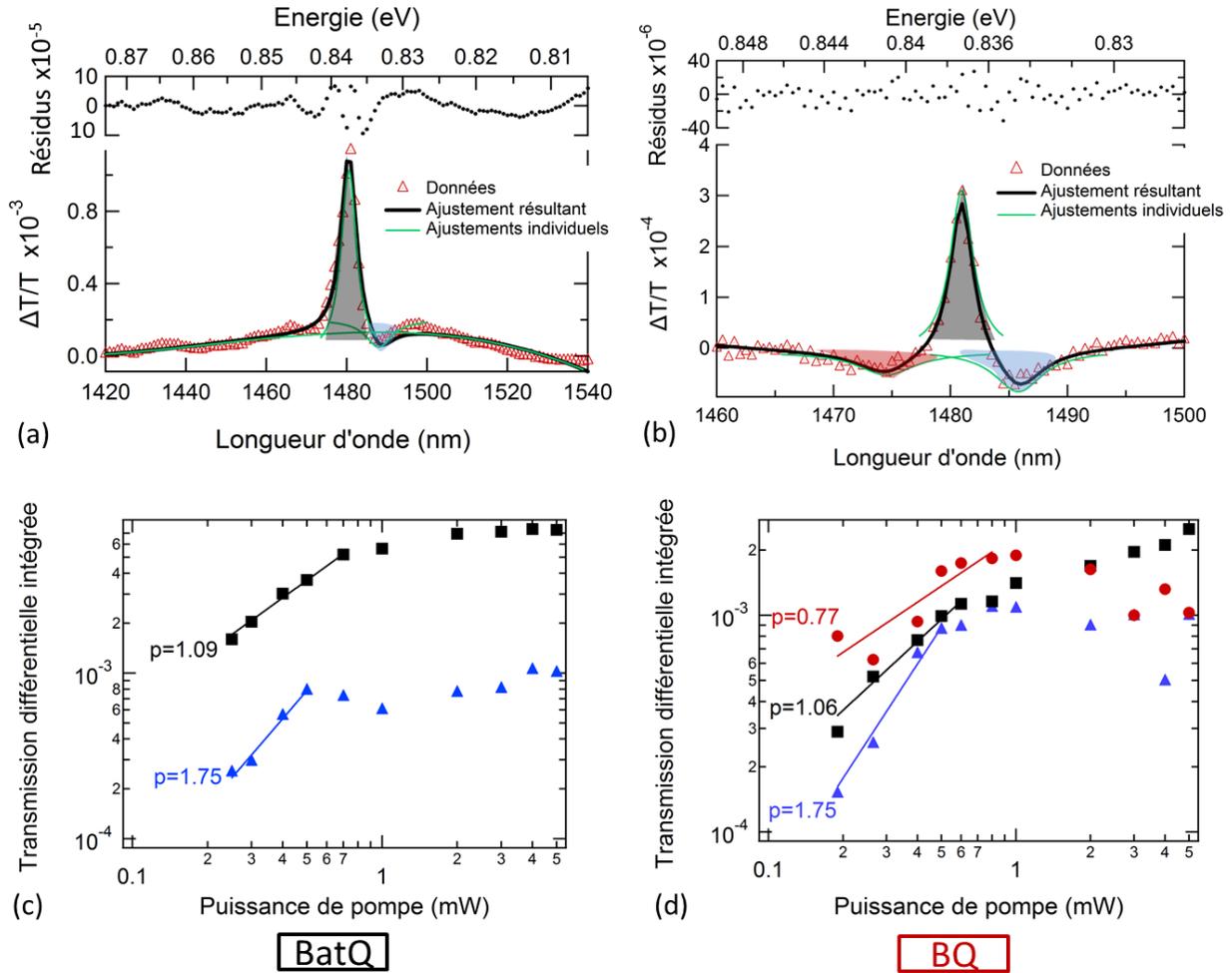


Figure 3.34 : Spectres de SHB à 77K pour une faible puissance d'excitation des (a) BatQs et (b) BQs. Les surfaces colorées sont les réponses de : en gris l'exciton, en bleu le biexciton et rouge le potentiel trion. (c) et (d) sont les réponses en puissance avec les couleurs correspondantes. p désigne le degré de l'ajustement polynomial.

Nous mesurons l'écart spectral entre le pic excitonique et le creux côté basse énergie – surface bleue sur la figure : il est de 3,4 meV pour les deux nanostructures. Par analogie avec les études en micro-PL, nous attribuons ce creux au biexciton. En effet, ce résultat est comparable avec les mesures déjà effectuées sur les BatQs, dans les références [186] (3 meV) et [187] (3,5 meV). C'est également cohérent avec la littérature pour des BQs InAs/InP, car l'énergie de liaison a été calculée à 3,6 meV [188] et mesurée entre 3,5 et 4 meV [189], et entre 0,4 et 3,4 meV en fonction de leur taille [190]. Le biexciton est une quasi-particule formée de deux excitons d'énergie E_{XX} , dont l'énergie de liaison est $E_b = 2E_X - E_{XX}$. Le biexciton se forme à partir d'un exciton d'énergie E_X créé par la pompe, et d'un photon d'énergie plus faible provenant de la sonde : la différence d'énergie est égale à l'énergie de liaison.

Une autre interprétation possible serait que les creux observés soient dus à des effets cohérents comme par exemple un dédoublement par effet Autler-Townes provenant du couplage non

perturbatif entre les niveaux excitoniques et le champ électromagnétique. Pour tester cette hypothèse, nous réalisons une étude de l'évolution en puissance de ces spectres de transmission différentielle. Pour ce faire, le signal de SHB est acquis pour différentes puissances de pompe dispersées sur plus d'une décade, de 0,2 mW à 5 mW et ajusté avec trois pics comme décrit précédemment. Nous n'observons aucune modification de l'énergie de ces pics, alors qu'une dépendance en racine de la puissance est attendue, ce qui nous permet de rejeter cette hypothèse.

L'intensité intégrée mesurée à partir de ces ajustements pour toute la gamme de puissance est tracée sur la Figure 3.34(c) pour les BatQs et (d) pour les BQs. Ces courbes sont ensuite elles-mêmes ajustées par une fonction polynomiale simple :

$$y(x) = ax^p \quad (3.50)$$

avec p l'ordre du polynôme. L'ajustement est possible pour les basses puissances jusqu'à la saturation de l'intensité intégrée par la puissance, qui est ici autour de 0,6 mW, soit 52 W/cm² pour les deux nanostructures.

Nous observons alors pour le pic excitonique des deux nanostructures une dépendance en puissance linéaire : $p = 1,09$ et $p = 1,06$ pour les BatQs et les BQs respectivement. En ce qui concerne le creux du biexciton, une dépendance surlinéaire ($p = 1,75$) pour les deux nanostructures est mesurée. Cette dépendance est surprenante, car l'état initial de la transition est celui où la BQ contient déjà un exciton. Aussi, si la section efficace permettant de créer un biexciton reste constante, on s'attend à ce que l'absorption du faisceau de sonde soit proportionnelle au nombre de BQs peuplées d'un exciton, lequel est directement visible sur le pic principal de SHB. Plusieurs mécanismes ont été envisagés pour expliquer cette observation, sans donner d'explication convaincante. On peut par exemple penser à de l'absorption à deux photons permettant de créer directement un biexciton dans une BQ vide, mais le signal serait également proportionnel à l'intensité de la pompe. L'explication tient peut-être à la distribution inhomogène des BQs qui fait que l'énergie E_{XX} pour une population de BQs correspond en fait à l'énergie E_X pour d'autres BQs.

Néanmoins, en se rappelant que la sonde et la pompe sont polarisées perpendiculairement, l'observation du biexciton ne devrait pas être possible, puisque les règles de sélection optique dans les nanostructures semiconductrices zinc-blende impliquent l'absorption de deux photons co-polarisés linéairement [191]–[193] pour obtenir un biexciton. Cependant, dans la référence [152], le creux du biexciton est également observé sous SHB avec des faisceaux polarisés orthogonalement sur des BQs InAs/GaAs, pour des longs pulses. Cette observation possible est expliquée par le

processus de relaxation du spin : avec les excitons X basculant leur spin, l'état excitonique Y se peuple, permettant l'absorption Y-XX (Figure 3.35) [153]. A 90K, des temps de relaxation de 90 ps ont été mesurés, qui doivent être comparés aux temps de vie de l'exciton qui est de l'ordre de la nanoseconde. Par conséquent, la relaxation du spin dans nos échantillons a tout à fait le temps de se produire pendant la durée de vie des excitons, rendant l'observation du biexciton possible.

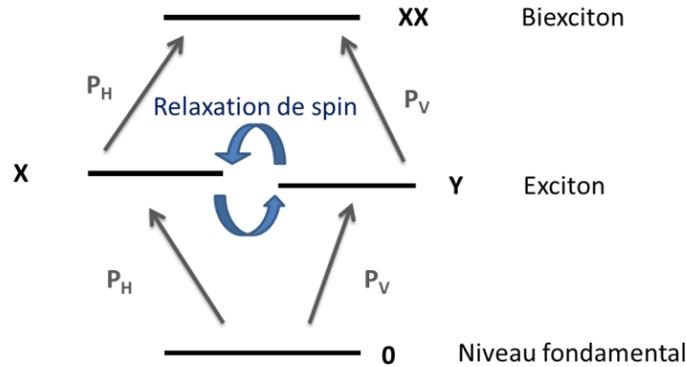


Figure 3.35 : Schéma du système exciton-biexciton pour des polarisations rectilignes (H pour horizontale et V pour verticale). Celles-ci sont définies arbitrairement dans ce diagramme.

Enfin, pour les BQs seulement, un deuxième creux est observé de l'autre côté du pic excitonique, à plus haute énergie. L'étude de la dépendance en puissance révèle une dépendance presque linéaire ($p = 0,77$). Nous ne sommes pas certains de la nature de ce creux, mais il pourrait s'agir du trion (exciton chargé positivement ou négativement) généré par la fuite vers d'autres BQs d'un des porteurs – électron ou trou – liés ensemble pour former l'exciton. La charge restant dans la BQ peut se lier ensuite aux excitons et forme une résonance pour la sonde à une longueur d'onde différente de celle de la pompe.

3.6.1.2 Largeur homogène à 77K

A 77K, la dispersion excitons-phonons acoustiques est prédominante dans nos structures. En effet à cette température, il est impossible de discerner la raie à zéro phonon des bandes latérales des phonons acoustiques, démontrant que le couplage aux phonons est déjà trop fort et est inclus dans nos valeurs de largeur homogène. Habituellement au-dessus de 50K-100K, les bandes latérales du pic principal le cachent et finissent par dominer la forme du spectre, indiquant la contribution de la décohérence assistée par phonons (Figure 3.5). Par exemple, les températures rapportées pour des BatQs InAs/InP (001) sont au-dessus de 60K–80 K [161] et pour des BQs InAs et InGaAs/GaAs, autour de 80K [151] et 100K [68]. Par conséquent dans nos structures à 77K, le déphasage est principalement causé par la recombinaison de l'exciton accompagnée par l'émission ou l'absorption d'un phonon.

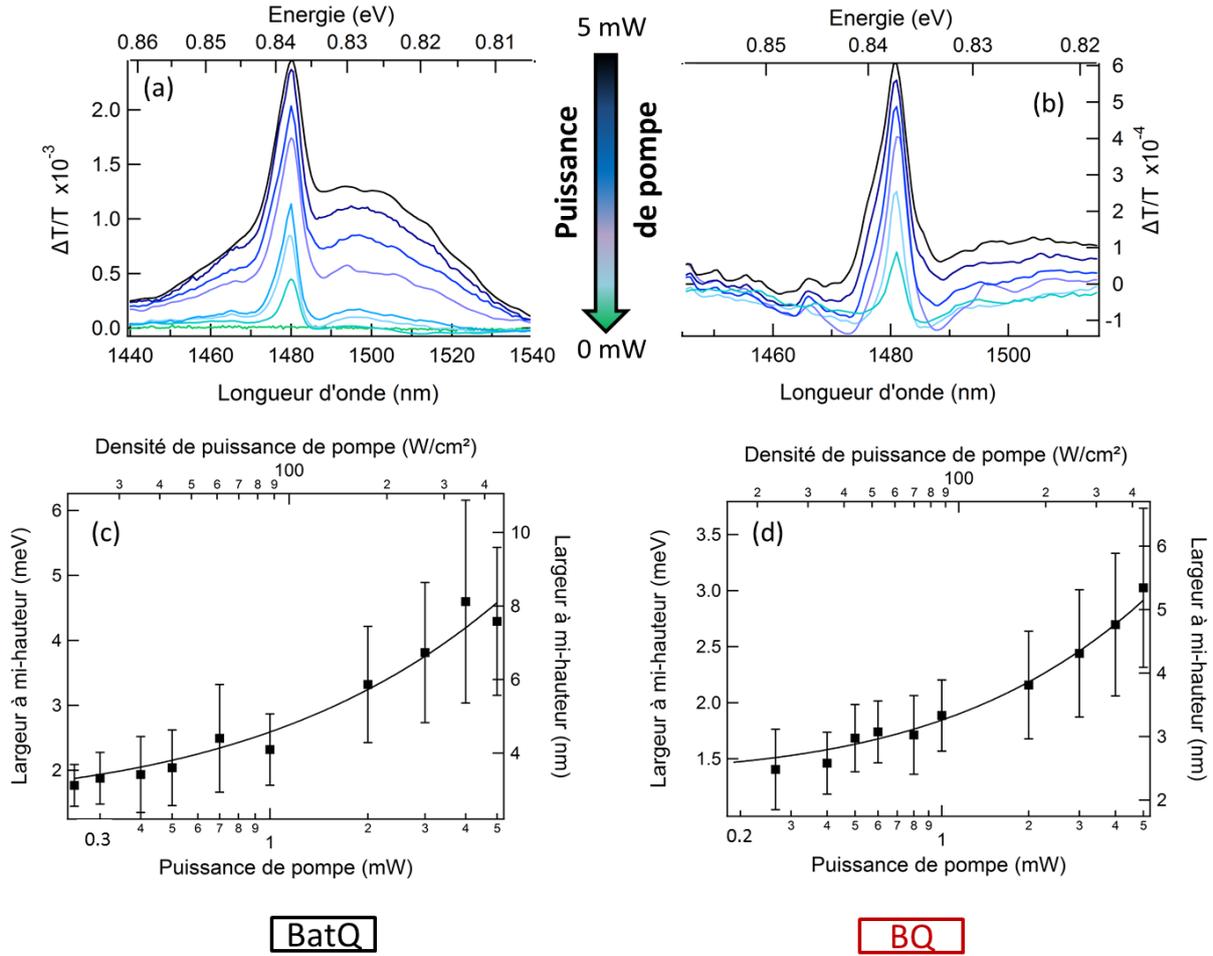


Figure 3.36 : Spectres de SHB des (a) BatQs et (b) BQs à 77K pour une résolution de 0,5 nm et $\lambda_{pompe}=1480$ nm pour différentes puissances de pompe, de 0,2 mW à 5mW. Evolution de la largeur à mi-hauteur du pic de SHB (obtenue avec l'ajustement lorentzien) en fonction de la puissance et de l'intensité de pompe pour (c) les BatQs et (d) les BQs. Les barres d'erreur représentent l'incertitude sur l'ajustement.

Pour mesurer la largeur homogène à travers la largeur à mi-hauteur du pic, les courbes sont ajustées de la même façon que précédemment. Pour moins d'incertitude, nous effectuons une étude en puissance (de 0,2 à 5 mW) permettant d'extraire γ . Nous mesurons chaque largeur à mi-hauteur (avec l'ajustement multiple) des spectres acquis à différentes intensités de pompe et à des résolutions pour la sonde adéquates ($r = 0,25$ nm et $r = 0,5$ nm) comparées à la largeur de SHB. Pour les deux nanostructures, le premier signal de SHB est observé à partir de 13 W/cm² mais est trop faible pour extraire une largeur précise. Comme indiqué à la Figure 3.36(c) et (d), où les spectres de SHB pour différentes puissance de pompe sont également présentés en (a) et (b), la largeur à mi-hauteur du pic excitonique s'élargit en racine carrée en fonction de l'intensité de pompage, comme escompté ($\Gamma_{shb} = \gamma + \gamma_s = \gamma(1 + \sqrt{1 + S})$, équation (3.24)). De plus, pour les BatQs, l'intensité du couplage électronique croît avec le pompage. A partir de l'ajustement des données avec l'équation (3.24), nous obtenons à 77K :

- pour les BatQs : $\gamma_{fit} = 0,86 \pm 0,06$ meV et $I_S = 36$ W/cm²,
- pour les BQs : $\gamma_{fit} = 0,68 \pm 0,02$ meV et $I_S = 49$ W/cm².

Ces valeurs de la largeur homogène (ailes de phonons comprises) sont comparables à la littérature pour les BQs InAs et InGaAs/GaAs, qui sont entre 0,37 et 1,5 meV [68], [151], [158] et 0,7 meV pour les BatQs InAs/InP [161]. La largeur homogène des BQs est 1,3 fois plus petite, impliquant un couplage photonique plus faible. Ceci peut être dû au fait que les BQs sont plus petites dans la direction (110), amenant à un confinement quantique plus fort : les interactions avec l'environnement sont réduites, notamment le couplage aux phonons acoustiques grâce à la séparation plus importante des états d'énergie (rendant inaccessible les états plus hauts), mais pas le couplage aux phonons optiques, dominant à plus haute température (>77K) [194]. De plus, il peut y avoir un effet de la symétrie de la nanostructure [66].

Nous souhaitons comparer les valeurs de I_S mesurées aux valeurs données par l'équation (3.11). Pour cela, nous prenons le T_2 mesuré pour les deux échantillons à partir de $T_2 = 2\hbar/\gamma_{fit}$, $T_1 = 1750$ pour les BatQs [195] et $T_1 \sim 1150$ ps pour les BQs [196], et $d=50$ D (Debye) [166]–[168]. Nous trouvons $I_S = 73$ W/cm² pour les bâtonnets et $I_S = 86$ W/cm² pour les boites. Les valeurs sont bien du même ordre de grandeur que celles mesurées.

Les BQs sont donc indéniablement moins couplées photoniquement et électroniquement que les BatQs à 77 K, faisant d'elles un meilleur candidat pour l'émission bi-fréquence.

3.6.1.3 Impact de la polarisation des faisceaux

L'effet de la polarisation des faisceaux sur le SHB a été étudié pour les BQs et les BatQs. Ces derniers présentant une émission spontanée et un gain anisotropes du fait de leur forme allongée (voir Figure 3.22), les résultats présentés seront uniquement ceux obtenus pour les BatQs. Les principales combinaisons possibles de polarisations linéaires ont été étudiées et sont présentées à la Figure 3.37. Le polariseur placé devant la photodiode est toujours orienté pour laisser passer la sonde. Quel que soit le faisceau polarisé suivant les BatQs, sonde ou pompe, le signal obtenu sera le même (non présenté sur la figure). Le signal est 1,44 fois plus faible lorsque la pompe et la sonde sont parallèles entre elles mais perpendiculaires aux nanostructures. Le maximum de signal, deux fois plus fort que la configuration standard, est obtenu sans conteste et de manière prévisible lorsque toutes les polarisations sont parallèles. Cependant, le spectre est très bruité à cause de la diffusion de la pompe dans l'échantillon, montrant qu'il est préférable d'utiliser une polarisation croisée pour atténuer ce signal parasite. Un effet similaire mais bien moindre au niveau des différences de

l'intensité (au maximum un facteur de 1,3) est observé dans les BQs. Nous avons également réalisé une étude à température ambiante, qui apporte exactement les mêmes changements d'intensité sans modifier de la forme du spectre.

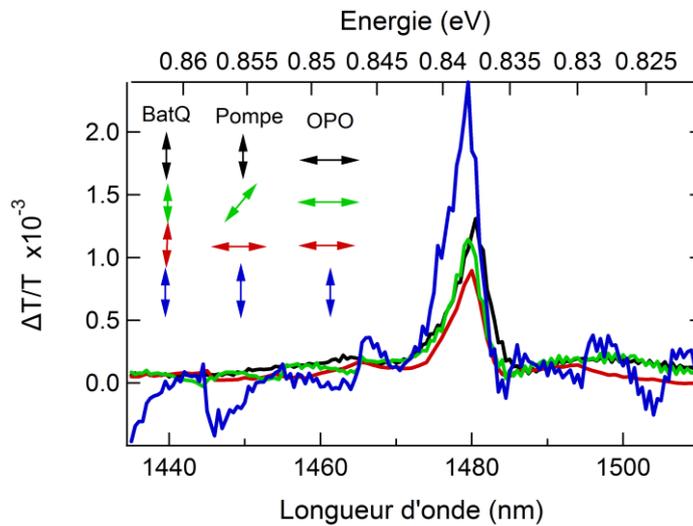


Figure 3.37 : Effet de la polarisation de la pompe et de la sonde sur l'échantillon à BatQs à 77K, avec $\lambda_{pompe}=1480$ nm et $P=1$ mW. Les différentes combinaisons de polarisations linéaires sont indiquées. Le léger décalage du pic bleu, 1 nm, est dû au dérèglement du réseau qui n'a pas été réétalonné entre chaque scan.

3.6.1.4 Utilisation simultanée des deux pompes

A l'origine, la pompe non-résonante était prévue pour créer l'inversion de population dans la structure et créer du gain, pour ensuite venir saturer ce gain avec la pompe résonante hachée à 1870 Hz, de la même manière que l'on sature l'absorption en conditions normales. Dans cette partie, nous expliquons pourquoi cette étude, réalisée sur l'échantillon à BQs, n'a pas fonctionné.

La pompe résonante, hachée, est fixée à sa puissance maximale de 5 mW (437 W/cm²) à 1480 nm, pour avoir le maximum de saturation. La PNR est alors continue. Pour créer du gain, il faut en général de fortes densités de puissance. En principe, en présence de la PNR seule, la sonde doit être amplifiée par la présence de gain. Avec la présence simultanée des deux pompes, la sonde devrait expérimenter un gain diminué, soit un $\Delta T/T$ négatif. Les spectres acquis dans ces conditions sont présentés à la Figure 3.38(a). Un léger offset est présent, dû à la diffusion de la PNR dans l'échantillon et de la PL. En pratique, nous observons que lorsque nous atteignons 6,5 mW, soit 141 W/cm², le $\Delta T/T$ est quasiment nul. Par ailleurs, le biexciton ainsi que le possible trion ne sont plus visibles : ils ne sont plus générés par le passage de la pompe résonante, mais le sont déjà par la PNR et ne sont donc pas affectés par la pompe à 1480 nm, d'où un $\Delta T/T$ nul. Les essais jusqu'à 1200 mW ($26,2$ kW/cm²) ne sont pas concluants. La Figure 3.38(b) montre l'évolution de l'intensité du pic en fonction de la puissance de la PNR.

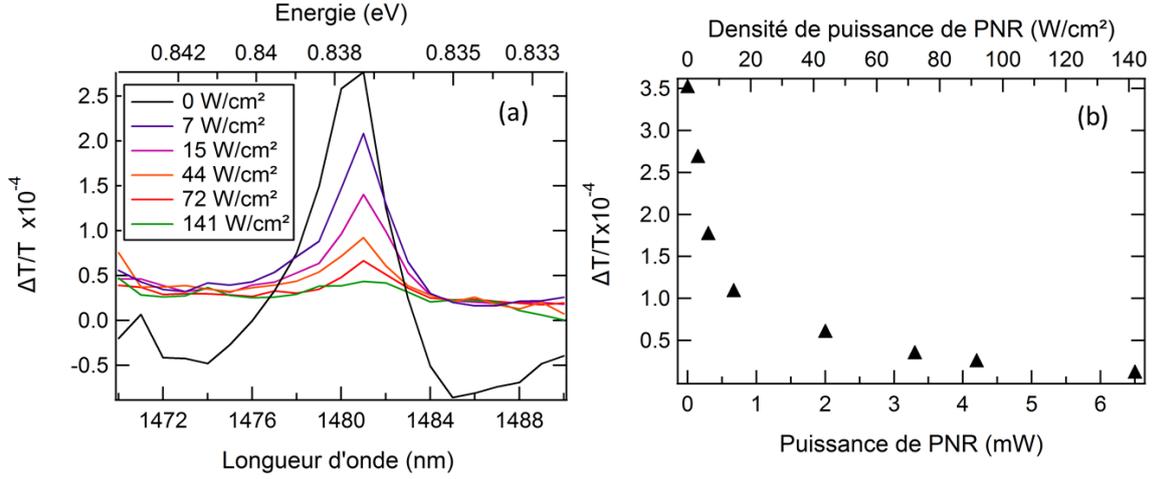


Figure 3.38 : Evolution du SHB lorsque les deux pompes sont présentes, en fonction de la puissance de la PNR, avec la pompe résonante fixée à 1480 nm et à 437 W/cm² : (a) spectres obtenus et (b) évolution de l'intensité du pic.

Il y a deux possibilités pour expliquer cet effet :

1. La PNR n'est pas assez puissante pour créer du gain dans la structure, et elle vient donc uniquement saturer l'absorption. La pompe hachée sature l'absorption restante, d'où la diminution du signal recueilli, jusqu'à ce qu'il devienne nul lorsque la PNR sature totalement l'absorption, mais ne devient jamais négatif.
2. La dynamique est plus rapide : en condition de gain, Paola Borri a montré que T_l peut être 100 à 1000 fois plus petit [197], ce qui augmente l'intensité de saturation.

Afin de vérifier dans quel cas nous nous trouvons, une autre configuration est imaginée : cette fois-ci c'est la PNR qui est fixée à 730 μ W, soit 16 W/cm² donc inférieure à l'intensité de saturation de l'absorption, et le laser résonant toujours haché, qui va varier en intensité. Les spectres acquis sont présentés à la Figure 3.39(a). L'équation (3.30) est reprise sous cette forme :

$$\frac{\Delta T(1480)}{T(1480)} = A \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + B \times P}} \right)$$

avec $A = \bar{\alpha}_0(\omega_p)L$, et $B = 1/P_s$. Le cas 1 correspondrait à une diminution de A qui tend vers 0 sans devenir négatif : il ne reste plus assez d'absorption à saturer et la PNR ne crée pas de gain. Le cas 2 en revanche correspondrait à une augmentation de I_s dans lequel intervient le temps de vie T_l . La Figure 3.39(b) montre cette fois-ci l'évolution de l'intensité du pic en fonction de la puissance de la pompe résonante avec et sans la PNR, et les ajustements associés. A partir de l'ajustement des données sans l'utilisation de la PNR (en noir sur la figure), nous extrayons $A = 5,7 \cdot 10^{-4}$ et $B = 1,53 \text{ mW}^{-1}$. Nous ajustons ensuite les données où la pompe non-résonante est présente, d'abord en

conservant la valeur de A (trait plein, B varie, cas 2), puis de B (pointillés, A varie, cas 1). Il est évident que le premier ajustement correspond bien mieux aux données. Ce qui veut dire que A , l'absorption, n'a pas changé (ou très peu) entre les deux cas. C'est donc l'intensité de saturation qui est différente : $B = 0,195 \text{ mW}^{-1}$ soit $P_s = 5,13 \text{ mW}$ et $I_s = 450 \text{ W/cm}^2$. La principale contribution de la PNR est d'augmenter I_s , donc d'accélérer la dynamique, ici d'un facteur 7,8.

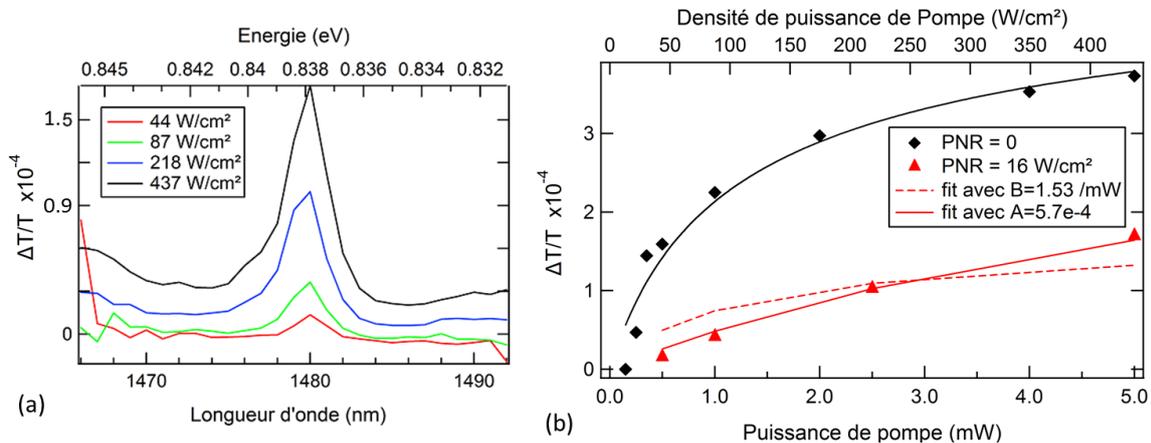


Figure 3.39 : (a) Evolution du SHB lorsque les deux pompes sont présentes, avec PNR fixée à 16 W/cm^2 , en fonction de la puissance de la pompe résonante à 1480 nm . (b) Evolution de l'intensité de la transmission différentielle en fonction de la puissance de la pompe résonante, sans la PNR (en noir) et avec (en rouge). Différents ajustements sont appliqués pour faire correspondre les paramètres A et B .

Pour conclure sur cette partie, la pompe résonante n'est donc pas assez puissante pour saturer le gain potentiellement généré par la PNR. Cette étude n'est donc pas possible dans les conditions expérimentales actuelles.

3.6.2 Elargissement homogène et inhomogène en température

Nous étudions à présent la dépendance en température des nanostructures. La spectroscopie de saturation d'absorption ainsi que des mesures de transmission différentielle en utilisant la PNR sont effectuées de 77 K jusqu'à atteindre la température ambiante, 295 K .

3.6.2.1 Absorption saturée en pompage non-résonant en température

Nous présentons les spectres obtenus avec la PNR à la Figure 3.40. Nous observons que la largeur spectrale de l'absorption inhomogène des deux types de nanostructures est constante en fonction de la température (autour de 55 meV), tandis que l'énergie du pic de la couche de mouillage et du pic excitonique (Figure 3.40(c)) obéissent comme prévu à la loi de Varshni [181] avec des coefficients similaires à ceux rapportée pour l'InAs [198], [199].

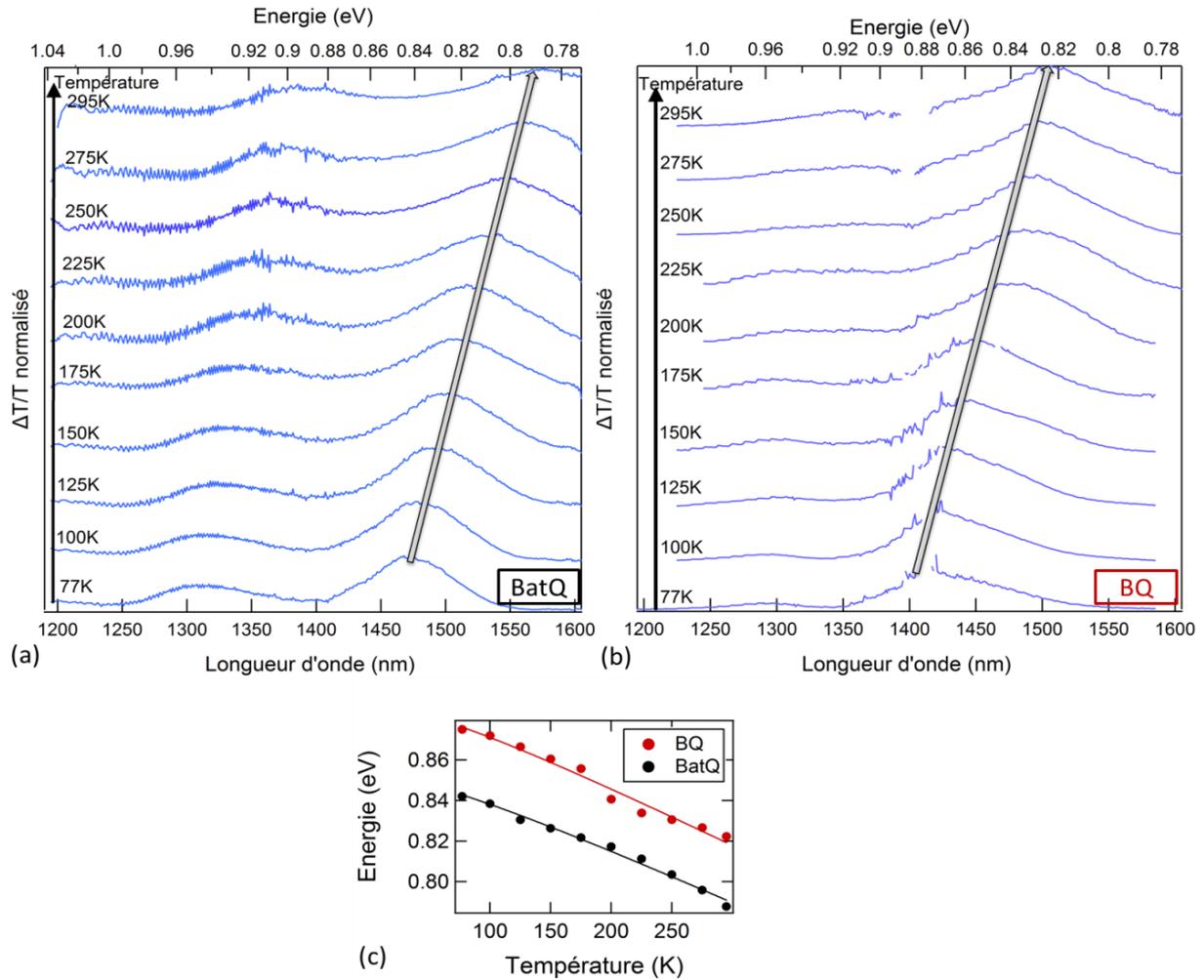


Figure 3.40 : Spectres de transmission différentielle réalisés par spectroscopie de saturation d'absorption avec le laser non-résonant $\lambda_{PNR}=1064$ nm, $I_{PNR}=130$ W/cm² pour (a) les BatQs et (b) les BQs. La flèche grise indique le décalage du pic excitonique vers les basses énergies avec l'augmentation de la température. (c) Evolution de l'énergie du pic des BQs (en rouge) et des BatQs (en noir) en fonction de la température, et leur ajustement avec l'équation de Varshni.

3.6.2.2 Elargissement homogène

Concernant la dépendance en température du Spectral Hole Burning, dont les résultats sont présentés à la Figure 3.41, la pompe est fixée à $\lambda_{pompe} = 1480$ nm et $I_{pompe} = 87$ W/cm² ; un bon compromis entre une saturation non-excessive et suffisamment de signal pour toute la gamme de température explorée.

Première constatation, le biexciton est de moins en moins visible lorsque la température augmente, et disparaît autour de 130K. Cet effet est principalement dû aux recombinaisons non-radiatives augmentant avec la température [200]. Deuxièmement, la largeur homogène des deux nanostructures augmente avec la température, ce qui était à anticiper à cause du couplage aux phonons optiques. Mais contrairement aux études antérieures effectuées avec une technique résolue

en temps ou sur nanostructure unique, le laser résonant excite également l'ensemble de la population de nanostructures à cause du fort couplage électronique. Au début de l'acquisition de la série de données, à basse température, ce couplage est seulement aperçu comme un fond, plus tard amplifié par l'accroissement de la température. Finalement, il recouvre complètement le pic résonant de SBH et se superpose parfaitement aux spectres de transmission différentielle acquis avec le laser non-résonant.

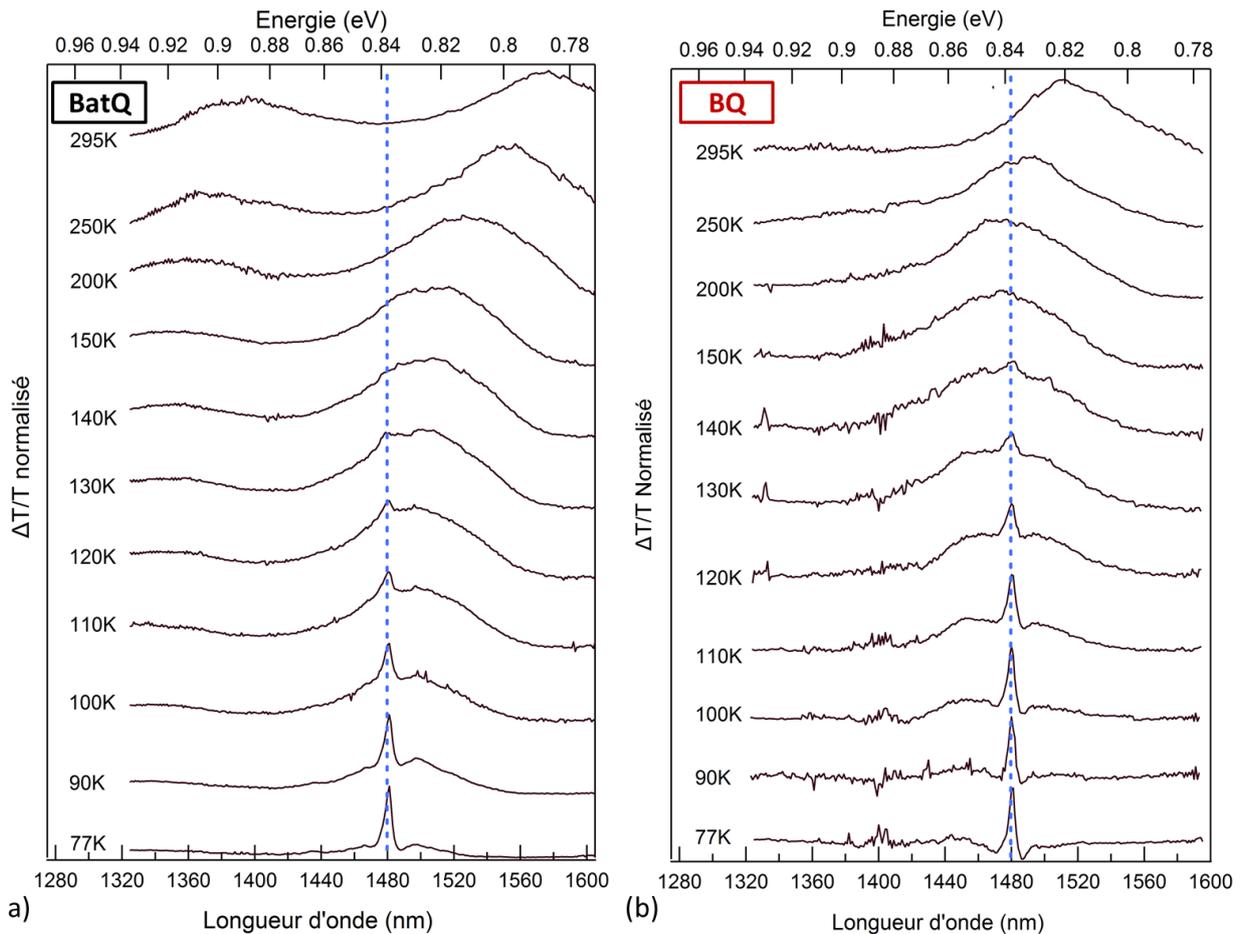


Figure 3.41 : Spectres de SHB des (a) BatQs et (b) BQs acquis de 77K à température ambiante pour $\lambda_{pompe} = 1480\text{nm}$ (ligne pointillée bleue) et $I = 87 \text{ W/cm}^2$, avec une résolution de 1 nm.

Plus en détails, pour les BatQs, la largeur homogène est mesurée de 77K à 120K, bien que l'incertitude de la mesure croisse à 110K et 120K (de +/- 15% à 100K, à +/-37% et +/- 46% à 110K et 120K respectivement) puisque le pic de SHB est de plus en plus noyé dans la partie inhomogène. A 130K, une très faible réponse homogène persiste mais est ultimement cachée par la partie inhomogène à partir de 140K. Pour les BQs cependant, la largeur homogène, qui est toujours plus petite, est encore visible pour des températures plus hautes. En effet, de 77K à 120K, le pic de SHB est clairement distinct et mesurable sans difficulté. A la température de 120 K, nous avons vérifié que le pic dû à l'excitation résonante des BQs reste lié à la longueur d'onde du laser de pompe en

faisant varier cette dernière, comme on peut le voir sur la Figure 3.42. Il est toujours possible de le mesurer à 130K et 140K mais avec une très grande incertitude : respectivement +/-70 % et +/-39%. Toutefois le pic n'est plus visible à partir de 150K.

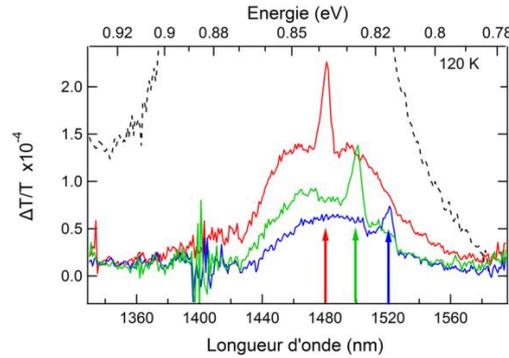


Figure 3.42 : Spectres de SHB des BQs réalisés à 120K pour différentes longueurs d'onde de pompe avec une intensité de 87 W/cm² : 1480 nm (rouge), 1500 nm (vert), 1520 nm (bleu). La courbe pointillée noire est acquise avec la PNR, à 1064 nm.

Pour aller plus loin, la Figure 3.43 montre le couplage électronique (a) dû aux porteurs s'échappant vers d'autres nanostructures et le couplage photonique (b) dû aux interactions phonon-exciton, présentés dans le Chapitre 1.

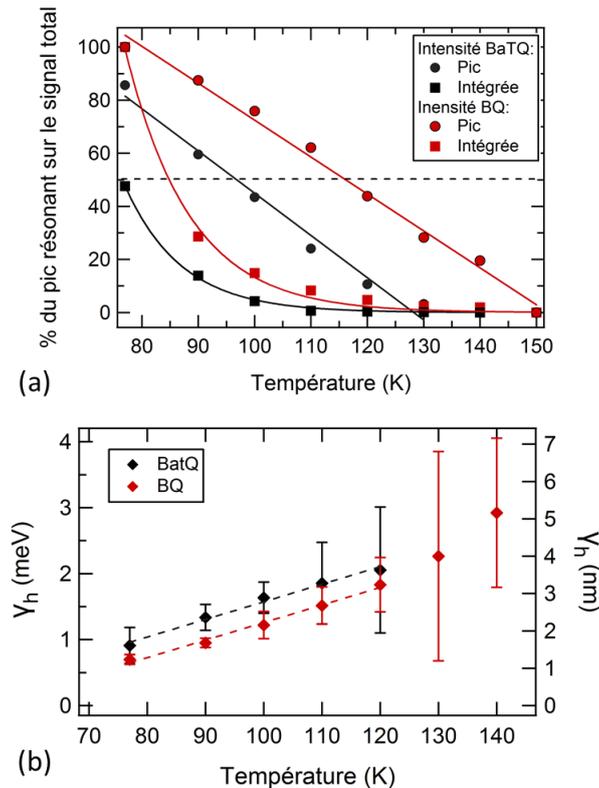


Figure 3.43 : (a) Dépendance en température du pourcentage du pic résonnant sur le signal total pour les BatQs (noir) et BQs (rouge). La ligne pointillée noire est un guide pour les yeux représentant les 50%. (b) Dépendance en température de la largeur homogène en meV et nm avec des barres d'erreur représentant l'incertitude de l'ajustement, pour les BatQs (noir) et BQs (rouge).

Ainsi en Figure 3.43(a), le pourcentage de l'intensité maximale (ronds) et intégrée (carrés) du pic de SHB comparé au signal total en fonction de la température est représenté. Dans les deux cas, on observe une décroissance linéaire de l'intensité du pic et exponentielle de l'intensité intégrée. Ces données seront analysées dans la prochaine partie dans le cadre d'un modèle de dynamique des porteurs.

Quant à la largeur homogène (Figure 3.43(b)), celle-ci est extraite avec un ajustement lorentzien tant que le couplage électronique le permet, puis une correction sur la saturation est appliquée pour les basses températures où $S \sim 1$; et des mesures à plus basse intensité à ces températures (pour retrouver $S \sim 0,1$) valident les corrections. Alors qu'à 77K la forme du pic résonant est clairement lorentzienne, c'est de moins en moins certain au fur et à mesure que la température croît, et à $T > 110K$ pour les BatQs et $T > 120K$ pour les BQs, cela devient discutable. Cet effet de transition d'un profil spectral lorentzien vers gaussien a déjà été expliqué dans la littérature par l'interaction élastique entre les porteurs et les phonons LO [201]. Néanmoins, les largeurs obtenues par les deux ajustements sont comprises dans l'intervalle d'incertitude de la valeur actuelle, donnée par l'ajustement lorentzien. A cause du fort couplage électronique, associé à la limitation technique à 77K, nous ne pouvons mesurer la largeur homogène des nanostructures que sur une plage de température réduite.

Nous constatons que la largeur homogène des BQs est toujours plus petite, et l'écart entre les deux largeurs homogènes semble constant. Nous observons également une dépendance plutôt linéaire de la largeur homogène. En effet, la dépendance de la largeur homogène en température est quasiment linéaire à des température où la dispersion phonon-exciton est dominante [66], [68], [143], [158], c'est-à-dire avec une impossibilité de discerner la raie à zéro phonon. Dans la référence [68], la dépendance linéaire est observée après 100 K et est égale à 0,02 meV/K. Nous l'avons mesurée dans la gamme de température 77-110K, où l'incertitude n'est pas trop grande : elle est de 0,0266 meV/K pour les BQs et les BatQs, mais et avec des offsets différents. Cela indique aussi qu'à température ambiante, la différence relative entre γ_{BatQ} et γ_{BQ} sera plus faible :

- à 77 K, nous mesurons $\gamma_{BatQ} = 1,3 \gamma_{BQ}$,
- à 295 K, nous extrapolons $\gamma_{BatQ} = 1,05 \gamma_{BQ}$ et des valeurs de $\gamma_{BQ} \sim 6,4$ meV.

Dans la littérature, à température ambiante pour des structures InAs/InP, γ_{BatQ} a été mesuré autour de 6 meV [162], et γ_{BQ} entre 3,5 et 6 meV pour des boîtes InAs et InGaAs/GaAs [66], [68], [133], [202]. Il est également rapporté qu'à température ambiante, γ converge vers des valeurs de quelques

meV (habituellement 3-10 meV), qui sont comparables à celles rapportée dans les structures de plus haute dimensionnalité. L'ordre de grandeur de la largeur homogène est connu, mais comme nous le voyons, elle peut avoir de fortes variations en fonction du type de nanostructures ; c'est pour cela que nous devons la mesurer sur nos BQs InAs/InP.

3.6.2.3 Couplage électronique : modèle de transfert entre les nanostructures

Pour quantifier le couplage électronique, nous proposons un modèle simple de transfert des porteurs entre les BQs résonantes et les BQs non-résonantes. Nous avons illustré ce modèle à la Figure 3.44. Dans un premier temps, la pompe résonante vient exciter les électrons des BQs résonantes vers leur premier état excité dont la population est notée N_0 . Ensuite, les électrons passent soit vers l'état excité de plus haute énergie – conçu comme un état faiblement localisé de la couche de mouillage et de population totale N_1 – en un temps τ'_c grâce à l'excitation thermique, soit ils se recombinent en un temps τ_r . Les porteurs capturés dans le niveau N_1 peuvent alors redescendre vers N_0 en un temps τ_c (temps de capture), ou fuir vers les BQs voisines non-résonantes en un temps de transfert τ_t , pour arriver dans l'état excité N_{b1} . Dans les BQs non-résonantes, le même cycle est observé entre N_{b1} et N_{b0} , et les temps sont les mêmes.

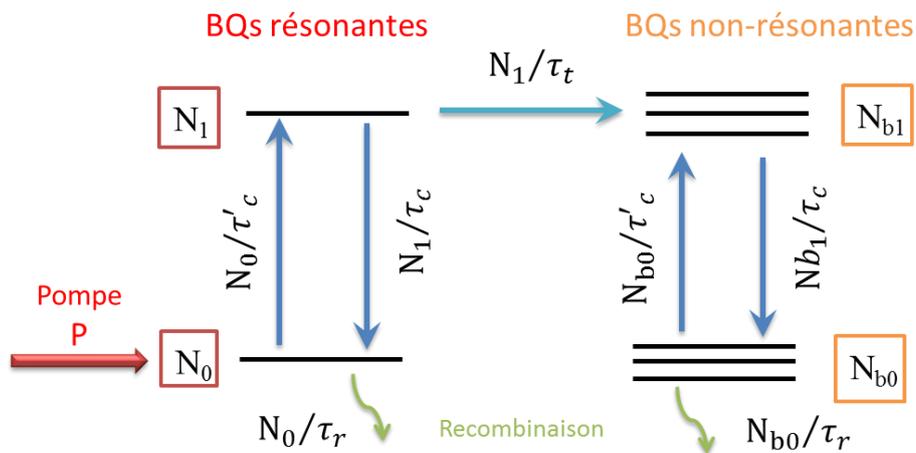


Figure 3.44 : Illustration du modèle de transfert des porteurs entre les BQs résonantes et non-résonantes.

Cependant, il n'y a pas de transfert de porteurs de N_{b1} vers N_1 . La justification physique pour négliger un retour τ'_t vers les BQs résonantes est liée premièrement à la différence de densité d'états : il y a environ 50 fois plus de BQs non-résonantes que de BQs résonantes (rapport entre les largeurs inhomogène et homogène), et deuxièmement, le retour vers les BQs résonantes va contribuer à un fond en dessous du pic résonant qui est déjà différentiable du pic lui-même.

Les équations d'évolution de ce modèle sont :

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{N_1}{\tau_c} - \frac{N_0}{\tau'_c} - \frac{N_0}{\tau_r} + P \quad (3.51)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -\frac{N_1}{\tau_c} + \frac{N_0}{\tau'_c} - \frac{N_1}{\tau_t} \quad (3.52)$$

$$\frac{dN_{b1}}{dt} = -\frac{N_{b1}}{\tau_c} + \frac{N_{b0}}{\tau'_c} + \frac{N_1}{\tau_t} \quad (3.53)$$

$$\frac{dN_{b0}}{dt} = \frac{N_{b1}}{\tau_c} - \frac{N_{b0}}{\tau'_c} - \frac{N_{b0}}{\tau_r} \quad (3.54)$$

En régime stationnaire, on peut voir en ajoutant les équations (3.53) et (3.54) que $\frac{N_1}{\tau_t} = \frac{N_{b0}}{\tau_r}$. Ceci est visible aussi graphiquement en regardant les flèches : ce qui rentre dans les BQs non-résonantes en ressort sous forme de lumière.

En raison du bilan détaillé, $\tau'_c = \tau_c \exp \frac{E_a}{k_B T}$ où E_a est la différence d'énergie entre les niveaux 0 et 1, appelée énergie d'activation. L'équation (3.52) donne ainsi :

$$N_0 = N_1 \left[1 + \frac{\tau_c}{\tau_t} \right] \exp \frac{E_a}{k_B T} \quad (3.55)$$

En combinant l'équation (3.55) au résultat des équations (3.53) + (3.54), on trouve :

$$N_0 = N_{b0} a \exp \frac{E_a}{k_B T} \quad (3.56)$$

où la constante a est donnée par $a = \frac{\tau_c + \tau_t}{\tau_r}$. Nous appliquons ce modèle à nos données, en traçant $y = \ln \frac{N_0}{N_{b0}}$ en fonction de $x = \frac{1}{T}$, que nous présentons à la Figure 3.45. $\frac{N_0}{N_{b0}}$ correspond au ratio de l'intensité intégrée (réponse homogène sur inhomogène) mesurée expérimentalement.

Nous obtenons, avec l'ajustement :

- pour les BatQs : $E_{a_BatQ} = 111 \pm 8$ meV et $a_{BatQ} = 2,0 \pm 0,7 \cdot 10^{-7}$.
- pour les BQs : $E_{a_BQ} = 65 \pm 5$ meV et $a_{BQ} = 870 \pm 300 \cdot 10^{-7}$.

La différence d'énergie d'activation provient du moindre confinement des porteurs dans les BQs. En effet, nous mesurons à partir des données de la Figure 3.40 une différence d'énergie de 102 meV entre le pic de la couche de mouillage et celui des BatQs, et de 92 meV dans le cas des BQs. Cependant, la différence entre les deux nanostructures est principalement liée au coefficient a qui est inférieur d'un facteur 400 pour les BatQs. Comme le temps de recombinaison τ_r et le temps de

capture τ_c sont du même ordre de grandeur pour les deux nanostructures [196], cela indique que le temps de transfert τ_t est de deux ordres de grandeur plus grand dans les BQs. Là encore, nous pensons que la plus grande taille des bâtonnets et leur plus grande proximité fait que le passage par effet tunnel de l'état excité d'un bâtonnet à son voisin est plus efficace que le même mécanisme pour les BQs.

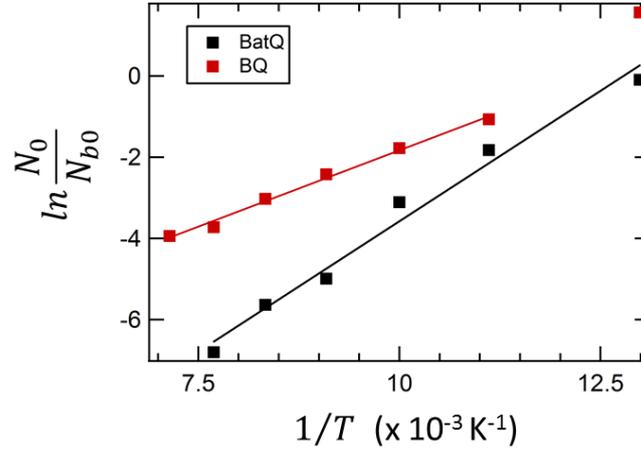


Figure 3.45 : Ajustements par l'équation (3.56) des résultats sur les BatQs (en noir) et les BQs (en rouge) obtenus en spectroscopie de saturation d'absorption résonante. Le point à 77K pour les BQs n'est pas pris en compte dans l'ajustement, car la valeur de N_{b0} est très faible et génère une forte incertitude. Les carrés correspondent aux données, et le trait plein à l'ajustement.

3.6.3 Mesures à température ambiante

A plus hautes températures, à 250K et à température ambiante (295K), la dépendance du SHB envers la longueur d'onde de la pompe a également été étudiée, car la largeur homogène à présent plus grande ($> 5,2$ meV par extrapolation) pourrait impacter la forme du spectre. Cependant à ces températures, la contribution du substrat est plus marquée. En effet, les porteurs libres présents dans le substrat [203]–[206] possèdent dorénavant une absorption certes faible, mais non négligeable impactant la forme du spectre de SHB. Pour que l'énergie et l'impulsion soient conservées lors du processus d'absorption, celui-ci doit faire intervenir l'électron, le photon incident ainsi qu'une troisième particule. Lorsque les phonons acoustiques jouent le rôle de la troisième particule, cela induit une dépendance en $\lambda^{1,5}$; les phonons optiques apportent une contribution en $\lambda^{2,5}$ [207], alors que celle des impuretés ionisées est proportionnelle à λ^3 ou $\lambda^{3,5}$ en fonction de leur concentration [208]. En général, il s'agit d'une combinaison des trois et l'absorption des porteurs libres α_{pl} est décrite comme ceci [204] :

$$\alpha_{pl} = A\lambda^{1,5} + B\lambda^{2,5} + C\lambda^{3,5} \quad (3.57)$$

où A , B et C sont des constantes dépendant de la température.

Dans notre cas, il est difficile d'utiliser cette équation pour ajuster nos données, car notre plage spectrale est réduite, aussi nous allons utiliser un ajustement phénoménologique en λ^p , avec p un chiffre compris entre 1,5 et 3,5 [204]. Malgré le dépôt de couches antireflet sur nos échantillons, nous mesurons une transmission de l'ordre de 70% seulement à 1550 nm, et nous attribuons les 30% restant à l'absorption du substrat, ce qui correspond un coefficient d'absorption de $0,02 \text{ cm}^{-1}$. Cette absorption a une réponse en transmission différentielle, que nous attribuons principalement à un chauffage du substrat provoqué par la pompe.

La transmission différentielle du substrat seul est mesurée à 250K et 295K en effectuant une acquisition sur un substrat vierge d'InP(311)B dopé n poli double face. Les spectres obtenus sont représentés à la Figure 3.46. Légèrement dépendante de la longueur d'onde de la pompe résonante au niveau de son intensité, la transmission différentielle s'avère être considérablement amplifiée par l'accroissement de la température (multipliée par 1,5 entre 250K et 295K). Apparaissant dans notre cas à 1370 nm et suivant une fonction $A\lambda^p$, avec p entre 2 et 3, l'absorption par porteurs libres sur de larges plages spectrales (jusqu'à $10 \mu\text{m}$) a déjà été bien étudiée dans l'InP [209]–[212]. La Figure 3.47(a) montre un exemple d'un spectre de SHB (en violet), avec la contribution du substrat associée (en bleu) et le résultat après soustraction de cette contribution (en rouge). Au niveau de sa forme, le spectre traité (contribution du substrat soustraite) se superpose dorénavant beaucoup mieux au spectre acquis sous excitation non-résonante à $\lambda_p = 1064 \text{ nm}$, également représenté sur la figure en pointillés gris. A cette longueur d'onde, on estime que 60% de la pompe est absorbée dans les barrières en $Q_{1,18}$ et 12% dans le substrat, contre respectivement 3% d'absorption dans les BQs et 30% dans le substrat à la longueur d'onde de 1500 nm ; aussi, la contribution du substrat est négligeable à $\lambda_p = 1064 \text{ nm}$.

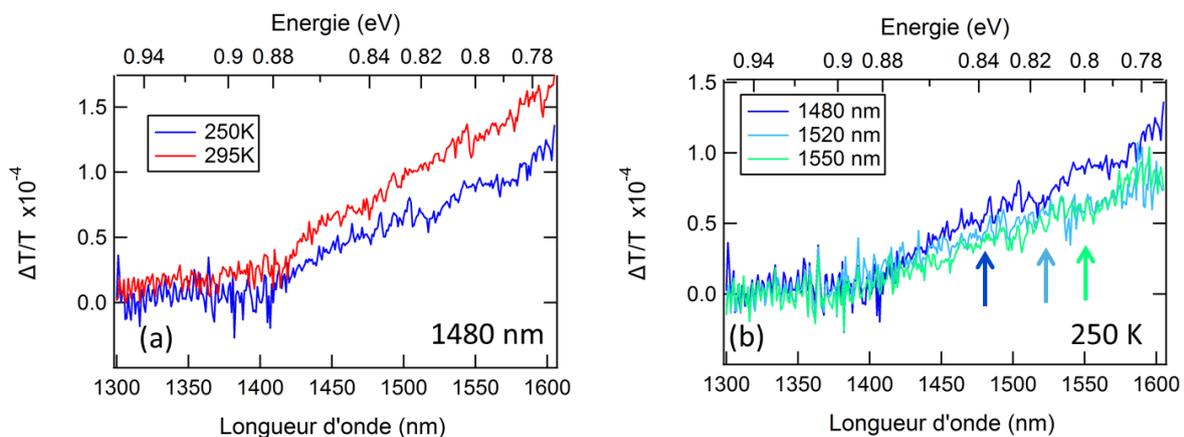


Figure 3.46 : Contribution en SHB des porteurs libres présents dans le substrat (a) pour 250K et 295K à $\lambda_{pompe}=1480 \text{ nm}$ et (b) pour $\lambda_{pompe}=1480 \text{ nm}$, 1520 nm et 1550 nm à 250K.

Après avoir soustrait la contribution du substrat avec l'absorption des porteurs libres, les spectres dont l'intensité est normalisée sont présentés en Figure 3.47(b) et (c). Pour les BQs, le pic excitonique est de même largeur que le pic observé sous excitation non-résonante (qui ne s'élargit pas en température), soit 55 meV, qui correspond parfaitement à la référence [175]. Contrairement aux spectres de PL à température ambiante (voir Figure 3.22), on observe toujours la couche de mouillage à 295K, qui se situe à 1400 nm (0,886 eV) pour les BatQs et à 1359 nm (0,912 eV) pour les BQs. Le pic des BatQs est quant à lui à 1588 nm (0,781 eV) et celui des BQs à 1507 nm (0,823 eV). On peut également remarquer un déplacement de Stokes (pic de plus faible énergie pour l'émission que l'absorption) de 12 nm (7 meV) pour les BQs et 2 nm (1 meV) pour les BatQs. Ces déplacements sont dus à la redistribution des porteurs vers les plus grosses nanostructures.

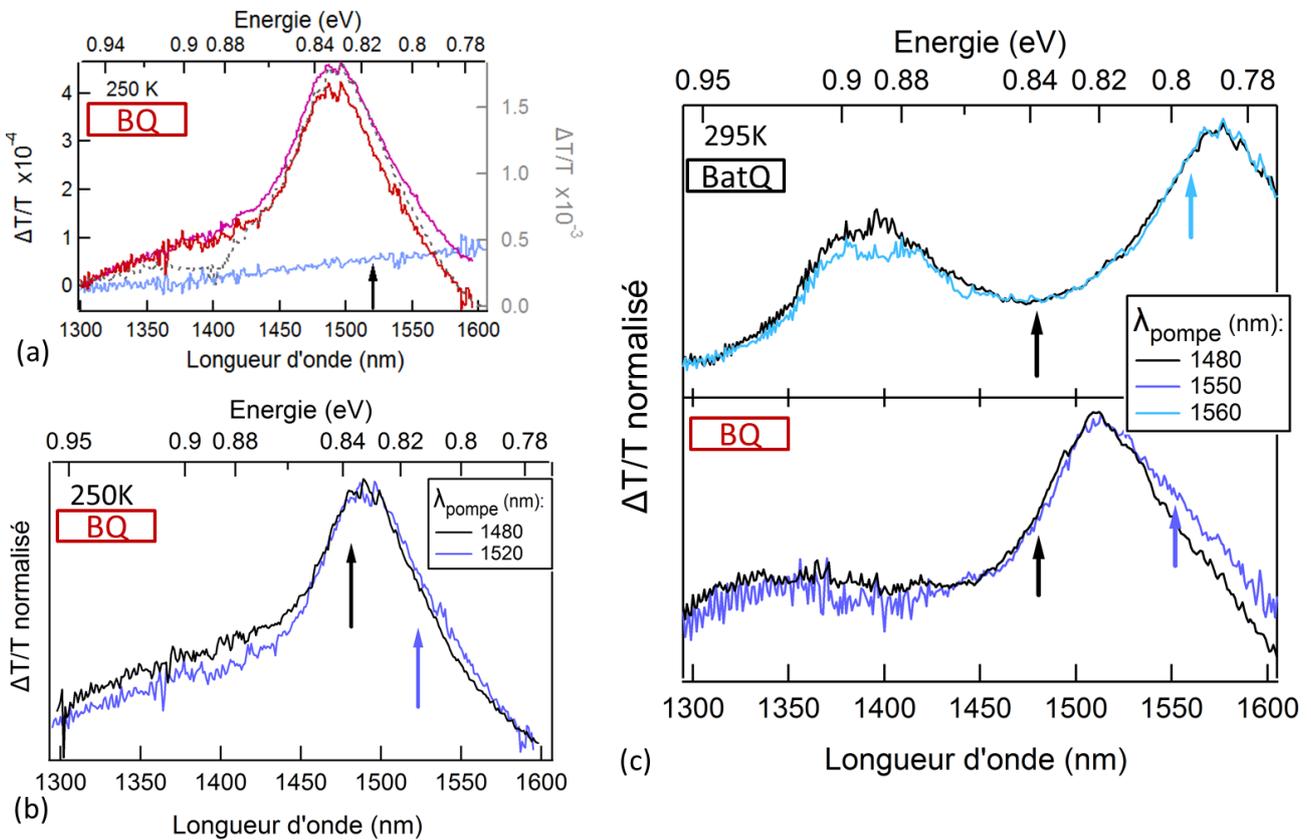


Figure 3.47 : (a) Spectres de transmission différentielle des BQs à 250K pour $\lambda_{pompe}=1520$ nm montrant la soustraction de l'absorption des porteurs libres dans le substrat. En violet, le spectre brut de l'échantillon, en pointillés gris le spectre sous excitation non-résonante, en bleu la contribution du substrat et en rouge le spectre traité, i. e. sans l'absorption des porteurs libres. (b) Spectres à 250K des BQs pour $\lambda_{pompe}=1480$ nm et 1520 nm. (c) Spectres des BatQs et BQs à température ambiante pour différentes longueurs d'onde de pompe.

Pour les nanostructures allongées, il n'y a pas de différence observée sur le pic excitonique lorsque l'on pompe à différentes longueurs d'onde à température ambiante. Seulement une petite baisse attendue du pic de la couche de mouillage se produit avec le pompage de plus faible énergie.

Cependant pour les boîtes, un léger effet de la longueur d'onde de la pompe est observé à 250K, et devient plus important à température ambiante. En effet, lorsque l'on pompe vers le bord du spectre inhomogène, une autre contribution apparaît, possiblement due à la largeur homogène : quelques porteurs restent dans leur boîte, d'où une valeur de transmission plus forte aux alentours de λ_{pompe} . Cette observation sur la distribution des porteurs peut aussi venir de leur température. En effet, dans le cas où la longueur d'onde de la pompe est à 1550 nm, il faut absorber plus de phonons pour que les porteurs diffusent d'une boîte à l'autre. On s'attend à ce que la température soit inférieure par rapport à $\lambda_{pompe}=1480$ nm et à ce que la population soit plus importante dans les grosses BQs.

Par conséquent, même si le couplage électronique est prédominant à température ambiante pour les deux échantillons, la structure à BQs reste la moins couplée, avec quelques porteurs restant dans leur boîte.

3.7 Conclusion sur le couplage électronique et photonique

En conclusion, nous avons sondé en fonction de la température le couplage électronique et photonique des BQs et des BatQs, crûs dans les mêmes conditions d'épitaxie (2MC - 1scm) et comportant le même empilement, mais d'orientation du substrat différente. La comparaison directe entre les deux structures est donc possible. Les études antérieures de la largeur homogène des BatQs et des BQs basées sur GaAs sur toute la plage de température ont été réalisées par FWM ou micro-PL, donc soit résolues en temps soit sur une seule nanostructure : les interactions d'ensemble n'ont pas été étudiées. C'est pourquoi nous avons employé la spectroscopie de saturation d'absorption en continu, afin de quantifier et/ou qualifier les deux types de couplage opérant dans nos nanostructures et ayant un impact sur l'oscillation bi-fréquence.

Pour le couplage électronique, on observe déjà une forte redistribution des porteurs à 77K dans les BatQs, alors que celle-ci commence à apparaître à 90K pour les BQs. En effet, le couplage est causé par la fuite de porteurs d'une nanostructure vers une autre, majoritairement à travers la couche de mouillage par effet tunnel, et est donc amplifié par le rapprochement des nanostructures. Également amplifié par la température (redistribution thermique et effet tunnel), il finit par recouvrir totalement la réponse homogène des BatQs à partir de 140K, et 10K plus tard pour les BQs. Cependant à température ambiante, les BQs démontrent un couplage électronique plus faible, avec une réponse différente du spectre d'absorption saturée en fonction de la longueur d'onde : une portion des porteurs résonants reste dans leur boîte. Les BQs restent donc sur toute la gamme de température les structures les moins couplées électroniquement. La différence de deux ordres de grandeur entre les

temps de transfert tend cependant à être gommée par le confinement plus faible des porteurs dans les BQs.

Quant au couplage photonique, quantifié par la largeur homogène et amplifié par les phonons, il correspond à l'écart spectral minimal au-delà duquel les deux fréquences seront moins couplées. A basse température, nous avons mesuré avec une faible incertitude la largeur homogène des deux types de nanostructures, comprenant d'ores et déjà le couplage aux phonons acoustiques :

$$\gamma_{BatQ} = 0,86 \pm 0,06 \text{ meV},$$

$$\gamma_{BQ} = 0,68 \pm 0,02 \text{ meV}.$$

Avec ces valeurs, nous voyons que les BQs sont indéniablement moins couplées à 77K, et les mesures en fonction de la température prouvent qu'elles le restent. Comme il devient impossible de mesurer γ à partir de 130-140K, un ajustement linéaire des valeurs permet d'extrapoler γ à température ambiante, et nous obtenons :

$$\gamma_{BatQ} \sim 6,7 \text{ meV},$$

$$\gamma_{BQ} \sim 6,4 \text{ meV}.$$

La différence relative est beaucoup plus faible qu'à basse température, mais les BQs ont tendance à rester légèrement moins couplées photoniquement. Le couplage semble malgré tout toujours très fort, même si ce qui se passe en régime de gain peut être différent, notamment parce que toute la dynamique de capture et de transfert des porteurs est accélérée.

Par rapport aux puits quantiques, dont la largeur homogène bien plus grande à basse température tend à converger vers des valeurs similaires à température ambiante, le couplage photonique n'est plus un critère de choix à prendre en compte à température ambiante. Cependant le couplage électronique plus faible dans les BQs, même à température ambiante, crée la différence avec les deux autres structures. Ainsi, notre choix de milieu actif se porte sur l'empilement de plans de boîtes quantiques. De plus, si l'extrapolation de la largeur homogène s'avère être juste, il faudrait séparer les deux fréquences d'au moins 6,4 meV pour réduire le couplage photonique. A présent, il est temps de se diriger vers l'oscillation laser, en ajoutant des miroirs au milieu actif à base de BQs pour créer la cavité.

Chapitre 4

Etude et caractérisation des VECSELS à PQs et à BQs

4.1 Description de l'architecture VECSEL	131
4.1.1 Cavité du VECSEL.....	131
4.1.2 Pompage du VECSEL.....	135
4.1.3 Contrôle des modes.....	137
4.1.4 Etat de l'art des VECSELS	143
4.2 Description des échantillons VECSELS.....	147
4.2.1 VECSEL à puits quantiques	147
4.2.2 VECSEL à boîtes quantiques	148
4.3 Description du montage expérimental.....	153
4.4 Caractérisations des échantillons VECSELS.....	155
4.4.1 Le VECSEL à puits quantiques	155
4.4.2 Le VECSEL à boîtes quantiques	157
4.5 Conclusion du chapitre	160

Au cours des deux derniers chapitres, nous nous sommes concentrés sur la zone active du laser. Nous avons vu que les BQs, plus inhomogènes que les PQs et moins couplées aussi bien photoniquement qu'électroniquement que les BatQs, présentaient un fort potentiel pour l'émission bi-fréquence. Il reste à présent à construire la cavité laser autour de l'empilement de plans de BQs. La cavité choisie pour la réalisation du laser bi-fréquence, que nous présenterons ici, est une architecture de type VECSEL (Vertical External Cavity Surface Emitting Lasers) en configuration plan-plan, car elle présente un certain nombre d'avantages pour l'émission, aussi bien multimode, monomode ou bi-fréquence, comme nous le détaillerons ensuite.

Cette architecture reposant sur une émission du milieu actif par la surface, par opposition aux lasers à émission par la tranche plus courants, provient de son précurseur, le VCSEL (Vertical-Cavity

Surface Emitting Laser) [213]–[215]. Le VCSEL propose en effet une émission de la zone active par la surface, réalisée avec une microcavité perpendiculaire au plan des couches. Avec cette architecture, ces lasers monolithiques et très compacts émettent un faisceau monomode transverse, circulaire et bien moins divergent que celui obtenu avec les lasers à émission par la tranche, dont la faible taille du mode conduit à un faisceau de sortie de forte divergence angulaire. Depuis peu, les VCSELs trouvent des applications pour des très gros marchés comme les mobiles et les lidars pour l'automobile.

Néanmoins les VCSELs souffrent d'une puissance généralement inférieure à 10 mW en régime monomode transverse. Par conséquent, de manière à combiner les avantages des VCSELs et des lasers en cavité étendue, c'est-à-dire une bonne qualité de faisceau et une puissance de sortie élevée, les premiers lasers VECSELs sont imaginés. Le concept d'un laser semiconducteur pompé optiquement avec une géométrie verticale a été suggéré très tôt, en 1966 par *Basov et al* [216]. Toutefois, il faudra attendre le début des 90 pour que ce concept soit reconnu et que les premiers dispositifs soient réalisés [217]. Le premier VECSEL opérant à température ambiante et produisant une grande puissance de sortie pour l'époque (0,5W) est réalisé par *Kuznetsov et al.*, quelques années plus tard en 1997, et est constitué de PQs InGaAs/GaAs [218].

En ce qui concerne le découpage de ce chapitre, nous commencerons par décrire en détail l'architecture VECSEL, de sa cavité et l'ensemble des éléments nécessaires à l'émission laser jusqu'au contrôle des modes de la cavité. Sa configuration permet de nombreux avantages impossibles à combiner dans d'autres types de structure, et ouvre les portes à de nombreuses applications. Nous développerons l'état de l'art des VECSELs, notamment la couverture spectrale et les puissances de sortie des VECSELs à base de PQs, et le positionnement des VECSELs à BQs. Dans un second temps, nous présenterons nos deux échantillons : le VECSEL à PQs qui est également la référence permettant l'étalonnage et la validation des divers montages, et le VECSEL à BQs, notre prototype. Enfin, nous les caractériserons.

4.1 Description de l'architecture VECSEL

4.1.1 Cavité du VECSEL

Généralement, la cavité des VECSELs est formée par un miroir plan de haute réflectivité : un réflecteur de Bragg plan (DBR – pour Distributed Bragg Reflector) épitaxié/fusionné au milieu actif, formant la puce 1/2-VCSEL, et un coupleur de sortie externe, également de haute réflectivité.

La Figure 4.1 schématise la structure VECSEL de base. Dans la partie suivante, nous détaillerons les éléments la constituant.

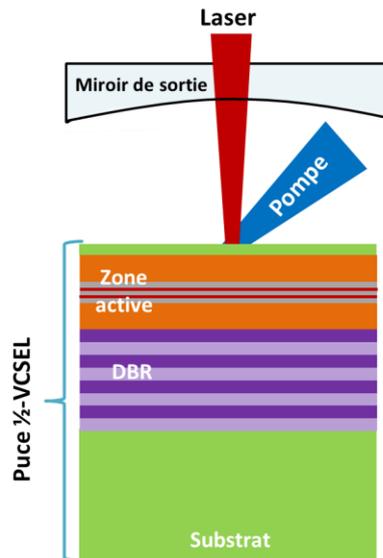


Figure 4.1 : Schéma d'un VECSEL ayant une cavité linéaire fermée par un miroir de sortie concave.

4.1.1.1 Réflecteur de Bragg distribué

Le réflecteur de Bragg distribué (ou réseau de Bragg), qui se trouve sous la zone active de la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL, consiste en un empilement de deux couches en alternance, l'une ayant un indice de réfraction faible, et l'autre un indice plus important. C'est un réflecteur de grande qualité, dans le sens où sa réflectivité est idéalement très proche de 100%. Comme les VECSELS sont sujets à de fortes puissances de pompage, un échauffement important se produit. Le design des DBR doit être fait avec attention : ceci comprend la sélection des matériaux et son architecture (nombre de couches, épaisseurs). Il existe différents types de DBR et de méthodes de croissance et d'intégration du DBR à la zone active :

- *La croissance monolithique* : La zone active et le DBR sont réalisés dans une même filière de matériaux, au cours de la même épitaxie (exemple : PQs sur substrat GaAs et DBR AlAs/GaAs, ou PQs sur InP et DBR InP/InGaAsP, ou PQs sur GaSb et DBR GaSb/AlGaAsSb).
- *La croissance métamorphique* : les PQs et le DBR ne sont pas réalisés dans une même filière de matériaux (paramètres de maille différents). Cette croissance ne peut donc pas s'effectuer sans l'introduction de dislocations, qui peuvent être majoritairement localisées sur quelques nanomètres [219], [220].

- *La fusion de plaques* : zone active et DBR sont crûs séparément sur des substrats différents, et sont ensuite « collés » via leurs interfaces épitaxiées, qui sont ensuite fusionnées à partir d'un traitement thermique et sous pression [22], [23], [221], [222].
- *Les miroirs hybrides diélectriques-métalliques* : dans ce cas le DBR est réalisé après la croissance de la zone active, par le dépôt de matériaux diélectriques, pouvant être dans certains cas complétés par une couche métallique [223].

4.1.1.2 Zone active

La zone active fournit le gain requis pour obtenir l'effet laser et, dans le cas du pompage optique, est aussi la section d'absorption de la pompe. Pour les VECSELS, elle est le plus souvent à base de PQs (même si les dispositifs à BQs se font de plus en plus nombreux), car les meilleures performances en matière de puissance (jusqu'à la centaine de Watts) sont atteintes avec eux. Pour obtenir ces très fortes puissances, plusieurs PQs (ou plans de BQs) sont empilés et leur couplage avec le mode laser est maximisé. Ceci est réalisé en les plaçant périodiquement aux ventres de l'onde stationnaire optique formée dans la microcavité semiconductrice définie par le DBR et la couche de surface, comme le montre la Figure 4.2. Concrètement, les couches actives sont réparties en groupe, chaque groupe étant espacés par une couche de confinement d'une épaisseur bien définie. Dans ces lasers le diamètre des modes peut atteindre le mm contrairement aux lasers à émission par la tranche.

La zone active se termine par l'espaceur, aussi appelé fenêtre ou couche de phase, qui permet le confinement des porteurs, ce qui les empêche d'atteindre la surface et d'être perdus par recombinaison non-radiative. Son épaisseur est choisie avec attention pour avoir une sous-cavité Fabry-Pérot résonante. Un traitement antireflet peut être appliqué sur la surface du $\frac{1}{2}$ -VCSEL, pour accorder finement la longueur de la cavité ou augmenter l'intensité du laser de pompe absorbée en diminuant sa réflexion.

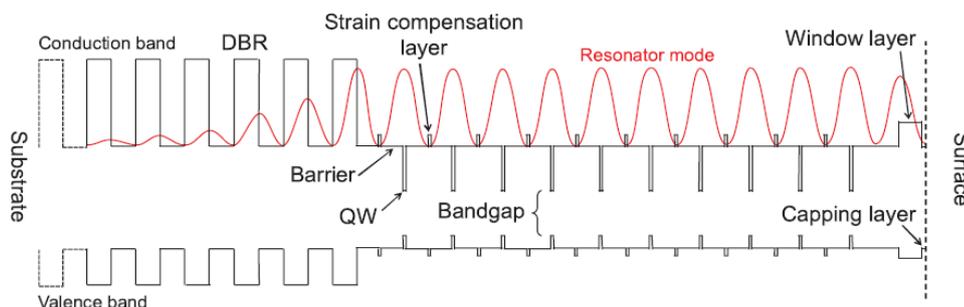


Figure 4.2 : Profil de bande d'un $\frac{1}{2}$ -VCSEL avec le champ stationnaire représenté en rouge. L'image provient de [224].

4.1.1.3 Coupleur de sortie

Le coupleur de sortie est un miroir de très haute réflectivité, généralement de l'ordre de 95 à 99%. La plupart du temps, il est de forme concave pour assurer la stabilité du résonateur. Il peut également être plan pour former des cavités plus complexes, et pour des applications bien plus spécifiques. En effet, la cavité étant externe, l'insertion de divers éléments optiques, tels que des miroirs intermédiaires, permettent de former des cavités de formes très variées (V, W, Z par exemple), et le choix du coupleur de sortie s'en retrouve conditionné. La courbure du coupleur de sortie est également employée pour contrôler le profil transverse de l'émission.

4.1.1.4 Le régime classe A

Un aspect important lié à cette cavité externe concerne le temps de vie des photons dans la cavité. Celui-ci joue un rôle majeur dans le comportement dynamique du VECSEL. En effet, le comportement dynamique d'un laser est classé en fonction des échelles des temps caractéristiques : le temps de vie des porteurs, le temps de vie des photons et le temps de vie de la polarisation. Un laser est ainsi classé dans une des trois familles décrites par *Arecchi* [225]. Lorsque ces trois temps caractéristiques sont du même ordre de grandeur, le laser est dans une dynamique de classe C. Cette classe inclut typiquement des lasers émettant dans l'infrarouge lointain, et sont sujets à des comportements chaotiques. Pour les lasers de classe B, le temps de vie des photons est petit par rapport aux autres temps caractéristiques. Cette catégorie inclut la plupart des lasers utilisés de nos jours comme les lasers à état solide et à semiconducteurs à émission par la tranche ou VCSEL.

Enfin, lorsque le temps de vie des photons devient supérieur au temps de vie des porteurs, la dynamique est de classe A. C'est le cas des lasers VECSELS de longueur de cavité centimétrique [226]. En effet, ce dispositif peut être soit classe B soit classe A en fonction de sa longueur de cavité [17] : dans l'article cité, pour une longueur de cavité de 0,85 mm le VECSEL est de classe B, alors qu'avec 44 mm le temps de vie des photons augmente considérablement, et sa dynamique est de classe A. Comme le temps de vie des photons est très supérieur au temps de vie des porteurs, les oscillations de relaxation disparaissent. Cette propriété permet d'éliminer le pic de bruit autour de la fréquence de relaxation, et de réaliser des VECSELS mono-fréquence à très faible bruit relatif d'intensité par exemple pour les applications radar, ou des VECSELS bi-fréquences avec un signal de battement hyperfréquence de grande pureté spectrale.

4.1.2 Pompage du VECSEL

4.1.2.1 Pompage optique et pompage électrique

Les VECSELS sont habituellement pompés optiquement, et peuvent absorber la pompe sur une large gamme spectrale grâce aux matériaux semiconducteurs utilisés, par contraste avec les lasers à état solide où les variations de la longueur d'onde de pompage peuvent nuire à l'opération. Le pompage électrique peut être employé [227] mais son développement est en retard sur le pompage optique, notamment à cause du besoin d'avoir recourt à des DBRs dopés de haute qualité, qui augmentent les pertes, et de la difficulté à injecter les porteurs uniformément sur une grande surface. Cependant, en dépit de ces complications technologiques, les VECSELS pompés électriquement pourraient bénéficier à beaucoup d'applications, comme la métrologie requérant un bas niveau de bruit. Nous pouvons citer d'autres avantages comme la compacité, le plus haut rendement de puissance et un alignement de la cavité plus rapide. C'est pourquoi des avancées majeures sont tout de même rapportées, comme les travaux du groupe de *U. Keller* de l'ETH Zurich [228] et d'*E. Kapon* de l'EPFL [229], sur des VECSELS basés respectivement sur GaAs et InP.

Les difficultés technologiques sont contournées dans les VECSELS pompés optiquement, ce qui permet l'utilisation de matériaux non dopés et une excitation uniforme sur une grande surface. Il existe deux types de pompage : le pompage résonant et le pompage optique dans les barrières. Comme son nom l'indique, ce dernier consiste à exploiter les couches barrières entourant les puits ou les plans de boîtes, plus épaisses et de plus grand gap, pour absorber le faisceau de pompe. Les porteurs photogénérés dans les barrières diffusent vers les PQs (ou BQs) où ils se recombinaient radiativement. La puissance de pompe est par conséquent absorbée de manière plus efficace. En contrepartie, la différence d'énergie entre les photons de la pompe et les photons générés est dissipée par relaxation non-radiative, induisant un échauffement de la structure supérieur comparé à la première méthode. Il reste tout de même le plus répandu.

Par ailleurs, dans ce manuscrit, nous caractériserons uniquement des VECSELS pompés optiquement, c'est pourquoi nous ne nous attarderons ni sur la présentation ni sur l'état de l'art des VECSELS à injection électrique.

4.1.2.2 Gestion de la thermique

L'essor des VECSELS et leur performance est en partie dû à la meilleure gestion de la thermique et à la disponibilité de diode de pompe toujours plus puissante. Pour obtenir de plus

grandes puissances, la meilleure configuration consiste en une cavité externe permettant un pompage optique uniforme sur un grand diamètre (200-250 μm), et une évacuation de la chaleur efficace. Ces éléments ont permis d'augmenter la puissance des VECSELS de deux ordres de grandeur en 20 ans. En effet, les premiers VECSELS étaient peu puissants ($<0,5$ W) et n'opéraient pas à la température ambiante, en grande partie car la gestion thermique n'était assurée que par un système de radiateur et Peltier en contact avec le substrat (voir Figure 4.3(a)) : la chaleur générée par l'absorption du signal de pompe était par conséquent mal évacuée. D'une part, cet effet thermique réduit l'efficacité d'émission via des processus de recombinaisons non-radiatifs et des fuites de porteurs accrues par la température, ce qui réduit finalement les performances avec un seuil laser plus haut et une puissance de sortie plus faible. L'échauffement entraîne également un décalage de la longueur d'onde d'émission vers les grandes longueurs d'onde, pouvant amener à un désaccord entre la longueur d'onde d'émission et la structure de gain résonante [230]. Ainsi, à partir d'une certaine puissance de pompage, la puissance du VECSEL diminue ; il s'agit de l'inversion thermique ou roll-over thermique. D'autre part, il peut conduire à l'endommagement de la puce.

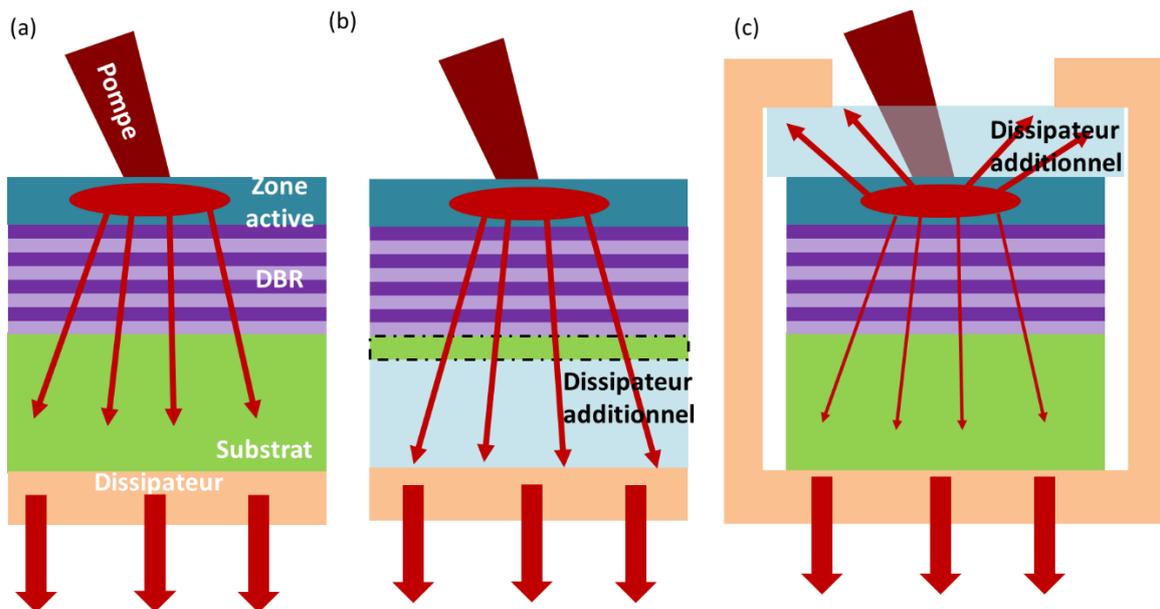


Figure 4.3 : Schéma de principe de l'évacuation thermique dans une structure $1/2$ -VECSEL (a) sans gestion de la thermique, (b) avec un substrat aminci ou complètement retiré et collé sur diamant et (c) avec un diamant intracavité. La figure est redessinée à partir des références [231], [232].

Les deux approches les plus courantes pour améliorer l'évacuation de la chaleur sont schématisées à la Figure 4.3(b) et (c). La première (b) consiste à amincir ou à retirer complètement le substrat du Bragg, pour le remplacer par un dissipateur thermique. Celui-ci est généralement un diamant polycristallin bas de gamme. Cette technique décrite par *Kuznetsov* a permis la première démonstration d'un VECSEL fonctionnant à température ambiante [218].

La seconde approche (Figure 4.3(c)) est l'utilisation d'un dissipateur thermique intracavité de qualité optique, le plus souvent collé par capillarité [233] sur la surface du VECSEL. Cette idée fut proposée dans les années 2000 par *Alford et al*, avec un saphir intracavité [234]. Le dissipateur étant de très bonne conductivité thermique, la chaleur générée dans la zone active s'y diffuse presque intégralement. Le choix du matériau s'effectue par des critères thermiques mais aussi optiques : il doit être transparent à la longueur d'onde d'émission du laser et de la pompe. Mis à part le saphir, d'autres matériaux ont ensuite été proposés comme le carbure de silicium (SiC) [235] ou le diamant. Ce dernier est de loin le meilleur pour cette application [236], en raison de sa très grande conductivité thermique ($\sim 20 \text{ W/cm.K}$, quatre fois plus grande que le SiC) et sa grande fenêtre de transmission. Néanmoins, la principale contrainte de cette méthode est l'introduction d'un élément optique supplémentaire dans la cavité, susceptible d'engendrer des pertes et pouvant se comporter comme un étalon, ce qui peut compromettre l'accordabilité spectrale. Afin de contrecarrer cet effet de filtre spectral, le dissipateur intracavité est traité antireflet et possède une forme très légèrement prismatique [237].

4.1.3 Contrôle des modes

4.1.3.1 Mode transverse

Dans une cavité laser, il est possible que l'émission soit multimode transverse, donnant lieu à des profils particuliers du champ. L'équation du champ électromagnétique pour les modes transverses se formant dans la cavité laser, TEM_{mn} où m et n sont les ordres horizontaux et verticaux des profils du champ, s'écrit :

$$E_{mn}(x, y, z) = E_0 \frac{\omega_0}{\omega} H_m \left(\frac{x\sqrt{2}}{\omega} \right) H_n \left(\frac{y\sqrt{2}}{\omega} \right) \exp \left[-(x^2 + y^2) \left(\frac{1}{\omega^2} + \frac{ik}{2R} \right) - ikz - i(m + n + 1) \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \right] \quad (4.1)$$

où E_0 est une constante de normalisation, ω_0 est le waist du faisceau, ω est son rayon à la position z (direction de propagation), R son rayon de courbure, $H_{m,n}$ est le polynôme d'Hermite et z_R est la longueur de Rayleigh.

La plupart du temps, il est préférable que l'émission soit monomode transverse (TEM_{00}), notamment pour des régimes de fonctionnement spécifiques tels que le régime monomode ou bifréquence bipolarisé. Le fait d'avoir une cavité externe et le choix du coupleur de sortie permet

d'ajuster la taille du mode fondamental gaussien avec la zone pompée. Le mode TEM_{00} peut ainsi posséder un meilleur recouvrement avec la zone de gain que les modes d'ordre supérieur. Cela peut être effectué en coordonnant la taille de la zone de pompage à la taille du mode TEM_{00} sur la puce. Ce mode TEM_{00} est donc naturellement favorisé, indépendamment de la puissance de pompage.

Nous avons représenté à la Figure 4.4 les profils du champ électromagnétique et de l'intensité optique des modes TEM_{00} et TEM_{01} . A partir de la figure, pour éviter le mode TEM_{01} , il faut avoir $\omega_0 < \omega_p < 1,5 \omega_0$ [238] où ω_0 est le waist sur la zone active et ω_p le waist du faisceau de pompe focalisé sur la puce. La répercussion est un gain fort pour le mode transverse fondamental et des pertes pour les modes d'ordres supérieurs, plus étendus spatialement. L'ajout d'un diaphragme centré sur le mode TEM_{00} dans la cavité peut également filtrer spatialement ou du moins augmenter les pertes sur les modes d'ordre supérieur.

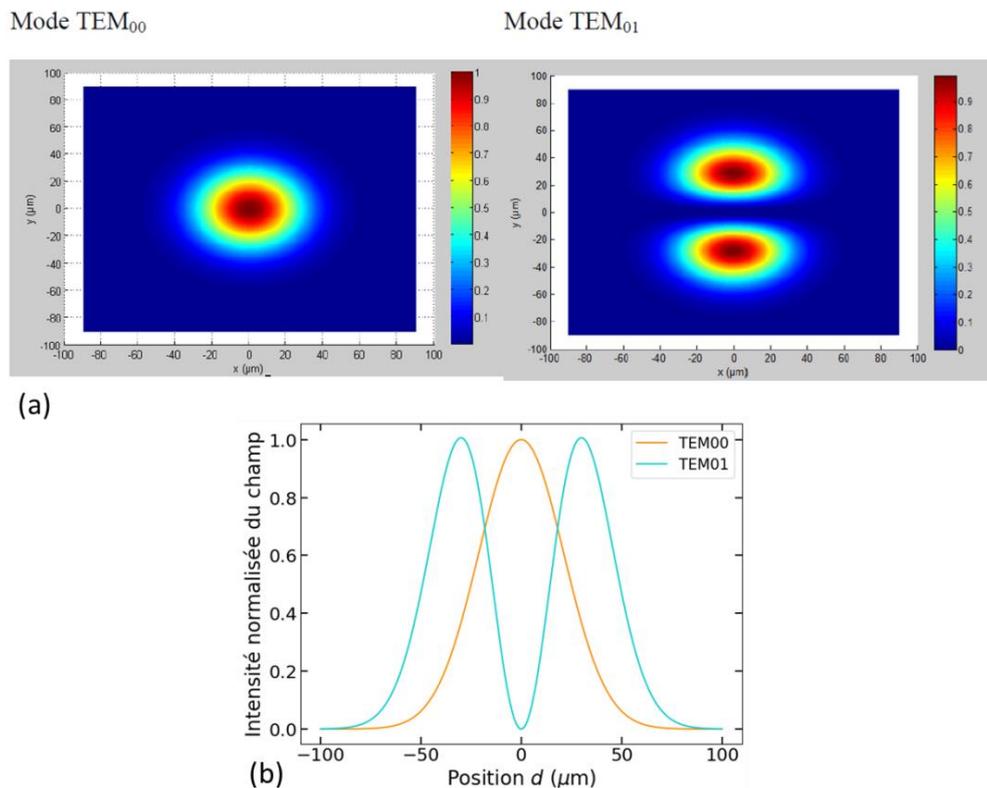


Figure 4.4 : (a) Profils spatiaux de l'intensité optique des modes TEM_{00} et TEM_{01} calculés sur la puce dans la référence [238] pour un waist de $40 \mu\text{m}$. (b) Profils d'intensité normalisée du champ électromagnétique des modes TEM_{00} et TEM_{01} sur la puce calculés pour un waist de $40 \mu\text{m}$.

Il est possible de connaître la taille du waist et de la contrôler à l'aide de la géométrie du coupleur de sortie. A titre d'exemple, nous considérons deux cas où la forme du coupleur est différente. Nous traitons dans un premier temps la configuration la plus conventionnelle d'un VECSEL : la cavité

plan-concave, représentée à la Figure 4.5(a), dont le coupleur de sortie est un miroir concave de rayon de courbure R_{OC} .

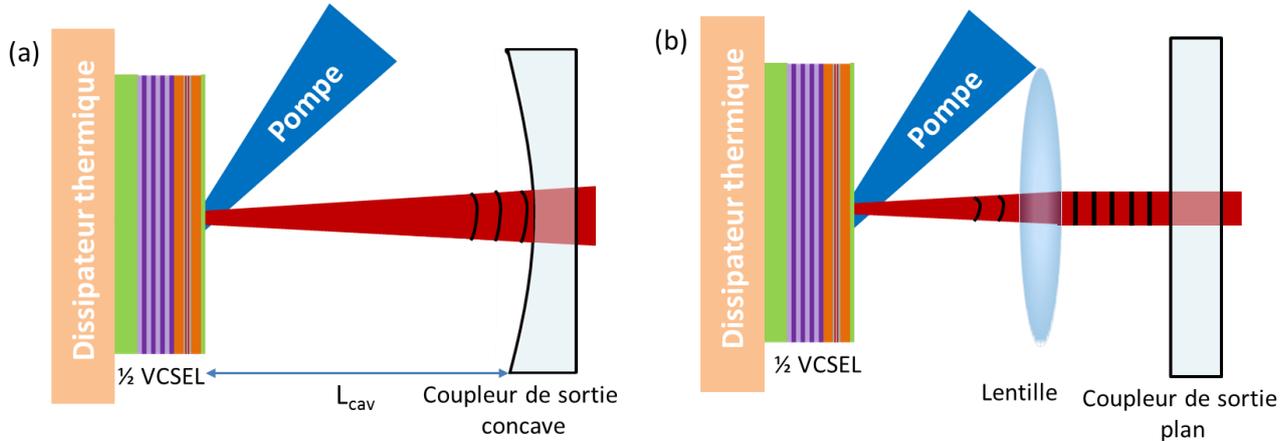


Figure 4.5 : (a) Schéma de la cavité VECSEL plan-concave pompée optiquement. (b) Schéma de la cavité plan-plan pompée optiquement.

Le mode fondamental d'un faisceau gaussien se propageant dans une cavité est stable, c'est-à-dire qu'il est identique après un aller-retour dans la cavité, si le rayon de courbure du front d'onde coïncide avec le rayon de courbure du miroir concave de la cavité, et si la longueur de la cavité est strictement inférieure au rayon de courbure du miroir. Ainsi dans une cavité plan-concave stable, le rayon de courbure du front d'onde arrivant sur le coupleur, donc parcourant la distance L_{cav} correspondant à la longueur de la cavité, est égal à R_{OC} . Dans ce cas, le waist du faisceau sur la structure semiconductrice ω_0 est donné par [239] :

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \sqrt{L_{cav}(R_{OC} - L_{cav})}}. \quad (4.2)$$

Nous remarquons qu'il est maximal lorsque $L_{cav} = R_{OC}/2$. Le choix du rayon de courbure du miroir est dépendant de la taille du faisceau de pompe (et inversement) : il faut que le spot de pompe soit légèrement supérieur au waist, afin d'assurer une émission laser TEM_{00} .

Quant au rayon du faisceau sur le coupleur, il est donné par [239] :

$$\omega_{OC} = \sqrt{\frac{\lambda R_{OC}}{\pi} \sqrt{L_{cav}/(R_{OC} - L_{cav})}}. \quad (4.3)$$

La Figure 4.6(a) présente l'évolution du waist du faisceau (sur le $\frac{1}{2}$ -VCSEL) en fonction de la longueur de cavité pour différents rayons de courbure, tandis que la Figure 4.6(b) présente l'évolution du rayon du faisceau sur le coupleur de sortie pour des paramètres de calcul identiques.

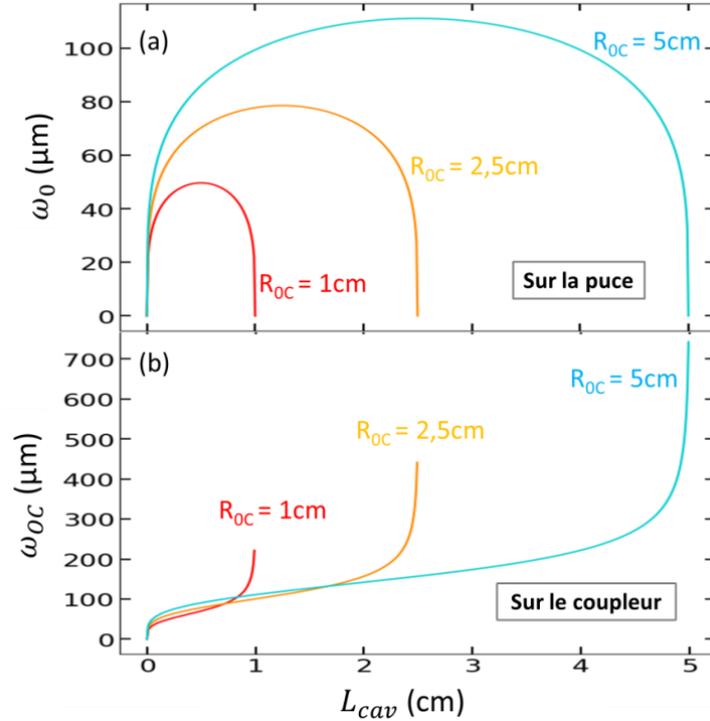


Figure 4.6 : Evolution du rayon du faisceau du mode TEM_{00} en fonction de la longueur de cavité, calculée à 1550 nm pour différents rayons de courbure du miroir concave, (a) avec l'équation (4.2) pour obtenir son waist sur le $\frac{1}{2}$ -VCSEL et (b) avec l'équation (4.3) pour obtenir son rayon sur le coupleur.

Dans un second temps, nous traitons le cas de la cavité plan-plan, utilisée par exemple pour le régime bi-fréquence dans le cas où les deux modes sont volontairement spatialement séparés sur le coupleur de sortie (voir Chapitre 5). Dans cette configuration, un miroir de sortie plan ferme la cavité pour que les deux modes soient résonants après un aller-retour. Une lentille doit être insérée pour assurer la stabilité de la cavité pour les deux modes : cette lentille permet d'obtenir un front d'onde plan, comme illustré par la Figure 4.5(b), coïncidant avec la planéité du coupleur. Ainsi, le nouveau waist, calculé à l'aide de la matrice ABCD pour un aller-retour du faisceau et pour différentes distances entre la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL et la lentille (d_{L-puce}) est présenté à la Figure 4.7(a). Le rayon du faisceau sur le coupleur y est également présenté, en (b). Nous remarquons que pour avoir une configuration stable dans ce cas, la longueur de cavité a une valeur minimale supérieure à la distance focale de la lentille (ici 2 cm) combinée à la distante puce-lentille. Pour pouvoir augmenter la longueur de la cavité et en même temps diminuer le waist, la lentille doit être rapprochée de la structure $\frac{1}{2}$ -VCSEL.

Ces calculs seront utiles par la suite pour positionner la lentille dans notre montage, en fonction de la taille du waist à choisir par rapport au spot de pompe pour obtenir une émission TEM₀₀, et à l'encombrement associé à l'introduction d'éléments dans la cavité.

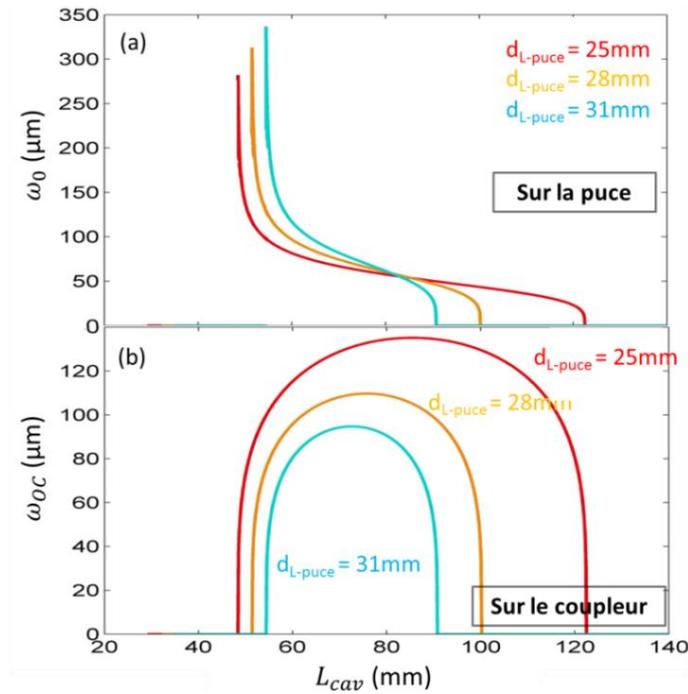


Figure 4.7: Evolution du rayon du faisceau en fonction de la longueur de cavité, calculée avec la matrice ABCD pour différentes distances entre la puce et la lentille à 1550 nm, (a) pour obtenir son waist sur le $\frac{1}{2}$ -VCSEL et (b) pour obtenir son rayon sur le coupleur.

4.1.3.2 Modes longitudinaux : régime multimode

La cavité externe, de par sa longueur, rend l'écart spectral entre deux modes longitudinaux consécutifs d'un VECSEL suffisamment faible pour qu'il opère naturellement en régime multimode, dès lors que chaque mode puisse bénéficier de suffisamment de gain. Ce principe est illustré par la Figure 4.8. Elle représente en effet le spectre de gain du laser, superposé aux modes de la cavité séparés par un écart spectral constant (en haut), ainsi que le spectre d'émission du laser résultant (en bas). Cet écart, appelé intervalle spectral libre (ISL), est défini comme ceci :

$$ISL = \frac{c}{2L_{cav}} \quad (4.4)$$

avec $L_{cav} = n_{MA}L_{Ma} + L_0$ la longueur de la cavité, prenant en compte la longueur L_{Ma} du milieu actif (MA) et de la cavité externe (L_0). Si la cavité contient des éléments optiques, comme dans notre cas une lentille d'épaisseur e_L non négligeable, cette expression change : pour calculer l'ISL de la cavité, il faut considérer le chemin optique des modes. L'ISL est donc, en incidence normale, égale à :

$$ISL = \frac{c}{2(L_{cav} + e_L(n_L - 1) + e_{\text{élément}}(n_{\text{élément}} - 1))} \quad (4.5)$$

où n_L est l'indice de réfraction de la lentille.

Avec ces équations nous voyons bien que, dans le cas des VECSELs et de leur cavité centimétrique, beaucoup de modes peuvent potentiellement osciller simultanément.

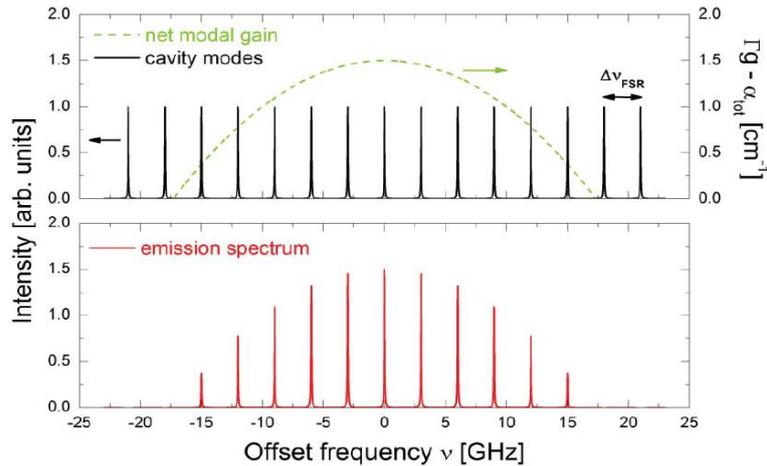


Figure 4.8 : Illustration des modes longitudinaux calculés pour une cavité de 5 cm ($\Delta\nu_{FSR} = ISL = 3\text{GHz} = 25,6\text{ pm}$, en noir) pour $\lambda=1600\text{ nm}$ et le gain modal (en vert). En rouge, le spectre d'émission du laser. L'image provient de [240].

4.1.3.3 Modes longitudinaux : régime monomode

Une particularité importante de la cavité externe, avantage emprunté aux lasers à état solide, est la possibilité d'utiliser des éléments intracavité pour sélectionner et moduler les propriétés d'émission du laser [239]. Nous nous intéressons ici aux éléments sélectifs spectralement, et notamment les étalons qui permettent de contrôler la longueur d'onde d'émission et d'obtenir un régime monomode longitudinal. Le principe des étalons est expliqué et détaillé à l'Annexe 5.

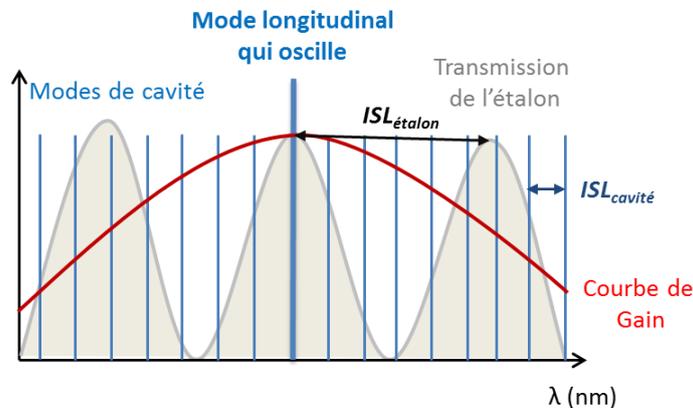


Figure 4.9 : Principe de l'étalon optique pour l'émission monomode. Ici, un seul mode longitudinal, transmis à 100% par l'étalon, possède un gain suffisant pour obtenir l'effet laser.

Comme schématisé sur la Figure 4.9, l'étalon est optimisé pour introduire suffisamment de pertes sur les modes adjacents, rendant ainsi l'oscillation mono-fréquence possible.

4.1.4 Etat de l'art des VECSELS

4.1.4.1 La large couverture spectrale des VECSELS

De très nombreux dispositifs ont depuis été développés pour couvrir une large plage spectrale, avec des puissances allant jusqu'à la centaine de Watts. Par ailleurs l'insertion de cristaux non-linéaires, permettant la conversion de fréquence intracavité, étend la couverture spectrale de ces dispositifs à la plage spectrale des ultra-violets [241] ; et même au domaine THz [242].

L'émission fondamentale des VECSELS a été démontrée de 393 nm avec des PQs InGaN/GaN [243], à au-delà de 5 μm avec des matériaux IV-VI [244]. A partir d'environ 540 nm et jusqu'à 620 nm, l'émission à ces longueurs d'onde est atteinte par doublage de fréquence intracavité de VECSEL émettant autour de 1150-1200 nm. De 620 à 800 nm, les zones actives sont à base de GaAs utilisant des puits quantiques (Al)GaInP, GaAsP et AlGaInAs ou des boîtes quantiques InP sur substrat GaAs [245], [246]. Ensuite, l'émission de 800 à 920 nm peut être atteinte en utilisant des PQs GaAs, AlGaInAs et InGaAsP. Les VECSELS émettant de 920 à 1100 nm bénéficient de la technologie la plus mature, avec les PQs InGaAs et les DBRs AlAs/GaAs. La maturité de cette technologie se reflète dans beaucoup de résultats éminents, en matière de puissance de sortie, spectralement et en opération ultra rapide. Cependant, générer une émission au-delà de 1100 nm est complexe car la contrainte augmente dans les puits InGaAs avec la concentration d'Indium, ce qui peut entraîner des formations de défauts comme des dislocations lors de l'empilement des plans, diminuant ainsi l'efficacité et le rendement. Une alternative est l'utilisation de PQs GaAsSb/Ga(In)As [247] ou de BQs In(Ga)As/GaAs. Pourtant, ces deux alternatives introduisent d'autres limitations. Par exemple, les BQs InAs souffrent d'un faible gain modal, même si de grandes puissances de sorties ont été rapportées pour ces structures [248].

Aux longueurs d'onde télécom 1250-1600 nm, les VECSELS sont à base de PQs AlGaInAs/InP ou InGaAsP/InP. Nous reviendrons plus en détail sur cette plage spectrale dans la partie suivante. Les VECSELS émettant sur la plage 1,9–3 μm sont basés sur des systèmes GaSb/GaInAsSb, qui ont l'avantage d'avoir des DBRs AlAsSb/GaSb à fort contraste d'indice, mais qui ont une faible conductivité thermique. Au-delà de 3 μm , les VECSELS sont fabriqués avec des zones actives PbSe ou PbTe sur substrat BaF₂ ou Si et ils peuvent atteindre 6,5 μm [244].

La Figure 4.10 résume cette couverture spectrale en fonction du matériau de la zone active.

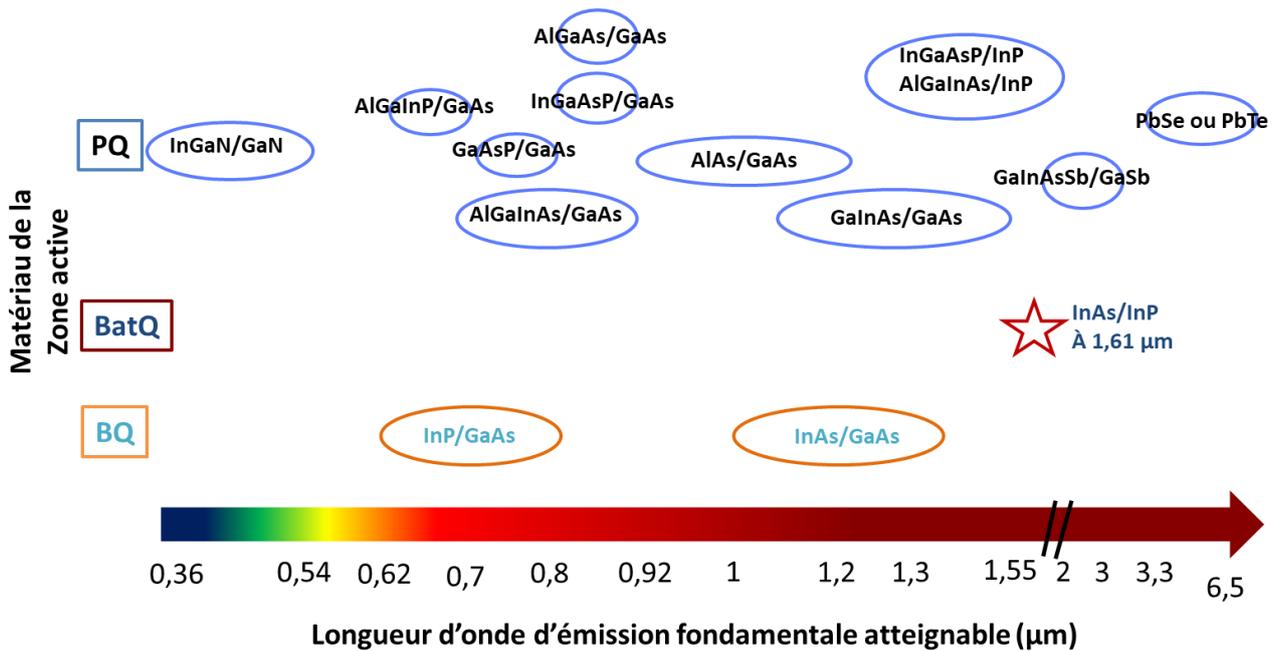


Figure 4.10 : Longueurs d'onde d'émission fondamentale atteignables en fonction du matériau formant la zone active. L'étoile correspond à la seule référence [249] pour un VECSEL à BatQ.

4.1.4.2 Accordabilité spectrale

En plus de leur capacité de couverture spectrale en fonction du semiconducteur utilisé, un VECSEL peut avoir une grande accordabilité spectrale. En effet, grâce à l'utilisation de plusieurs PQs d'épaisseurs et/ou de compositions différentes, une accordabilité de 156 nm à 1,96 µm a été démontrée [250], de même qu'une conception spéciale de la structure (demi-cavité anti-résonante à la longueur d'onde centrale) : 43 nm à 1 µm [251] et également grâce à l'utilisation de BQs : 60 nm à 1,04 µm et 69 nm à 1,18 µm [252]. Enfin, une accordabilité record de 900 nm à 5 µm a été atteinte en changeant la longueur de la cavité, de ~50 à 100 µm à l'aide d'un actionneur piézoélectrique [253].

4.1.4.3 Puissance de sortie

Les VECSELS sont également reconnus pour leur puissance de sortie record pour un dispositif à base de semiconducteurs. Ces records sont obtenus grâce au pompage optique intense et de grand diamètre, à la possibilité d'accroître le diamètre des modes de la cavité tout en filtrant les modes transverses d'ordre supérieur, et à la gestion efficace de la thermique. La gamme de puissance atteignable est dorénavant très large, allant de la dizaine de mW à plus de la centaine de Watts, en fonction du matériau utilisé et de sa longueur d'onde.

La puissance peut être accrue dans une configuration multi-puce ou multi-pompage. Les limites de la puissance sont de plus en plus repoussées, grâce à l'amélioration de la qualité des puces, du design, et de la thermique. Le record en puissance rapporté dans un VECSEL, obtenu dans une structure à PQs InGaAs/GaAs, en utilisant la technologie de dissipation thermique par amincissement du substrat et report sur diamant, est de 106 W en émission multimode transverse à 1028 nm et refroidi à 3°C [254]. Même en émission monomode la puissance de sortie peut être très importante ; la plus notable est de 23,6 W à 1013 nm [255], obtenue par le même groupe sur un VECSEL similaire. En effet, les puits InGaAs bénéficient d'un fort gain, et de DBR GaAs fins et bons thermiquement. Ils présentent ainsi en général de meilleures performances que les VECSELS basés sur InP ou GaSb, limités par le manque de matériaux efficaces thermiquement.

Cependant les VECSELS à PQs émettant autour de 1,55 μm ne sont pas en reste, grâce à des progrès technologiques conséquents, notamment sur les réflecteurs de Bragg.

4.1.4.4 VECSELS à 1,55 μm

A cette longueur d'onde, les VECSELS sont à base de PQs AlGaInAs/InP ou InGaAsP/InP [224]. La contrepartie de ce système est le manque de haut contraste d'indice pour les DBRs InP en accord de maille, et la faible dissipation thermique de ces matériaux. Le besoin d'augmenter la puissance de sortie vers le Watt à 1,3 μm et 1,55 μm a poussé le développement vers d'autres stratégies pour surmonter ce problème de DBR et de thermique. Ces solutions comprennent le remplacement du DBR épitaxié par des miroirs hybrides diélectrique-métalliques [223], ou par des réflecteurs GaAs/Al(Ga)As qui sont de très bon conducteurs, intégrés à la puce par une croissance métamorphique [219], [256] ou par fusion/collage de plaques [22], [23], [221], [222], en combinaison avec des dissipateurs thermiques comme le diamant.

Nous avons résumé dans le Tableau 4.1 les meilleures performances en puissance des VECSELS à PQs en fonctionnement continu, classées par substrats. Les meilleures performances sur InP sont ainsi obtenues par la méthode de la fusion de plaques : 2,6 W à 1570 nm pour une puissance de pompe de 25 W [221] et 4,6 W à 1580 nm pour une puissance de pompe de 50 W [257].

Substrat des PQs	PQs	Paires - DBR	Pompe P (W)	λ (nm)	P (W)	T (°C)	Equipe	Année	Ref.
GaAs	20 InGaP	55 AlAs/AlGaAs	22	665	2,5	10	Univ Stuttgart	2016	[258]
	10 InGaAs	22,5 AlAs/GaAs	250	1028	106	3	Univ Marbourg	2012	[254]
	10 InGaAs		85	1180	23	0	Univ Tampere	2013	[259]
InP	10 AlGaInAs	24 AlAs/GaAs	120	1275	33	-5	Univ Tampere-EPFL	2017	[260]
	8 AlGaInAs	35 AlGaAs/GaAs	30	1480	4,8	8	Univ Tampere-EPFL	2011	[261]
	20 InGaAsP	48 InGaAsP/InP	5,5	1545	0,78	-33	Univ Chalmers	2004	[262]
	10 AlGaInAs	35 AlGaAs/GaAs	25	1570	2,6	10	Univ Tampere-EPFL	2008	[221]
	5 AlGaInAs	35 AlGaAs/GaAs	50	1580	4,6	8	Univ Tampere-EPFL	2012	[257]
GaSb	10 InGaSb	21,5 AlAsSb/GaSb	50	2080	8	-15	Fraunhofer IAF	2012-2013	[263], [264]
	15 InGaAsSb	21,5 AlAsSb/GaSb	15	2470	0,6	5	Univ Tampere	2011	[265]
	10 InGaAsSb	21,5 AlAsSb/GaSb	8	2800	0,12	20	Fraunhofer IAF	2011	[266]

Tableau 4.1 : Meilleures performances rapportées de VECSELS à PQs en fonctionnement continu multimode. Les puissances supérieures à 1 W sur InP sont obtenues avec des DBRs fusionnés.

4.1.4.5 VECSELS à BQs

Concernant les VECSELS à BQs, ceux-ci connaissent depuis quelques temps un essor considérable, grâce à leurs propriétés prometteuses : une puissance ou courant de seuil réduit, une plus grande stabilité du gain et du seuil en température, des dynamiques de gain ultra rapides et un gain spectralement plus large. Jusqu'à présent les performances rapportées sont de 8,4W en puissance de sortie à 1040nm et pour une température de 1,5°C [248], une très grande stabilité thermique [267], et des fonctionnements en régime à blocage de mode de pulse très court (216 fs) à forte puissance (396 W puissance à pic) [268]. Cependant, les puissances obtenues restent inférieures à celles obtenues avec des PQs. Pour obtenir le plus de gain et donc de puissance, l'intégration de beaucoup plus de plans par rapport aux PQs, entre 20 et 40 contre 8 à 15, est nécessaire pour compenser le gain modal plus faible dû à la plus faible quantité de matériau actif.

Les performances des VECSELS à BQs sont moins bonnes à 1,3 μm [269], et l'émission est limitée à cette longueur d'onde par le matériau, basé sur GaAs. La Figure 4.11 positionne l'état de l'art des VECSELS à BQs pompés optiquement, uniquement pour l'émission fondamentale. Nous voyons bien que la plage spectrale n'est pour l'instant couverte que de 600 à 1300 nm. En ce qui concerne la puissance, elle chute à quelques centaines de mW lorsqu'on se rapproche de 1300 nm.

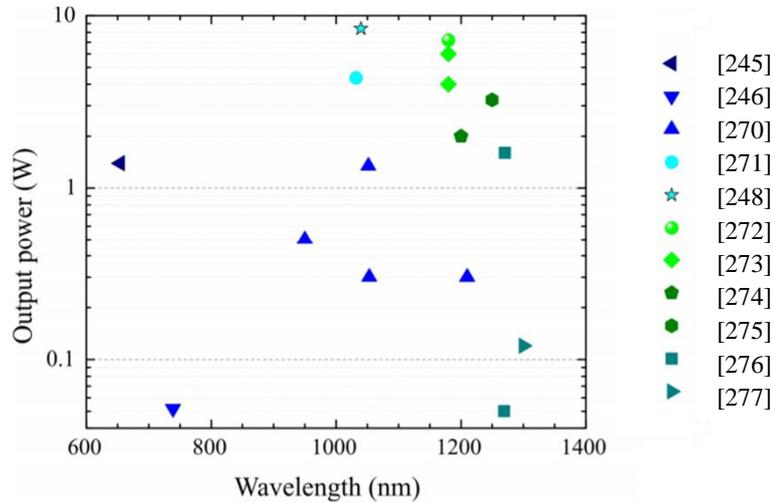


Figure 4.11 : Etat de l'art des VECSELS à BQs pompés optiquement : évolution de la puissance de sortie en fonction de la longueur d'onde de l'émission fondamentale en régime continu. Figure complétée et ajustée à partir des références [252], [272], [278].

Il n'y a pas donc pas eu de démonstration d'un VECSEL à BQs émettant à 1,5 μm , crûes sur substrat InP. Cependant, la réalisation d'un VECSEL à BatQs, basés sur InP et épitaxiés au laboratoire, a été rapportée. La zone active de ce VECSEL est composée de trois fois 6 plans de BatQs InAs/InP(100), et son DBR de 17 paires de couches successives GaAs/AlGaAs crûes métamorphiquement par MBE sur la zone active. Ce VECSEL émet à 1,61 μm des puissances de 163 mW à 20°C en régime multimode, et 7,9 mW à 19,5°C en régime monomode, où il est accordable sur 13 nm [249]. Ainsi, l'utilisation de BQs InAs/InP pourrait ouvrir la voie aux VECSELS à BQs émettant à 1,55 μm .

4.2 Description des échantillons VECSELS

4.2.1 VECSEL à puits quantiques

La structure 1/2-VCSEL à PQs, représentée à la Figure 4.12(a), est une puce provenant de nos partenaires de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne dans le cadre de l'ANR IDYLIC portée par le laboratoire. La structure comprend deux parties distinctes. La première est la zone de gain, composée de 3 groupes (répartis 4-2-2) de puits quantiques contraints InAlGaAs crûs sur substrat

InP. La seconde est le miroir de Bragg, comprenant 19,5 paires de AlAs/GaAs et réalisé sur un substrat GaAs. Les deux plaques sont ensuite assemblées par fusion de plaque [22], [23]. Chaque plaque a été épitaxiée séparément par MOVPE. La longueur de la sous-cavité VECSEL est conçue pour avoir une émission autour de 1540 nm. Après le retrait sélectif du substrat GaAs, le côté DBR de la structure fusionnée est métallisé avec du Ti/Au.. La plaque est ensuite clivée en puces de $\sim 3 \times 3 \text{ mm}^2$ et collées par thermo-compression sur un diamant métallisé Au de $5 \times 5 \times 0,3 \text{ mm}^3$ [279]. Le substrat InP est lui aussi sélectivement retiré. Finalement, la puce est montée sur un dissipateur thermique en cuivre. Cette technologie a été développée par l'EPFL et le LPN [309].

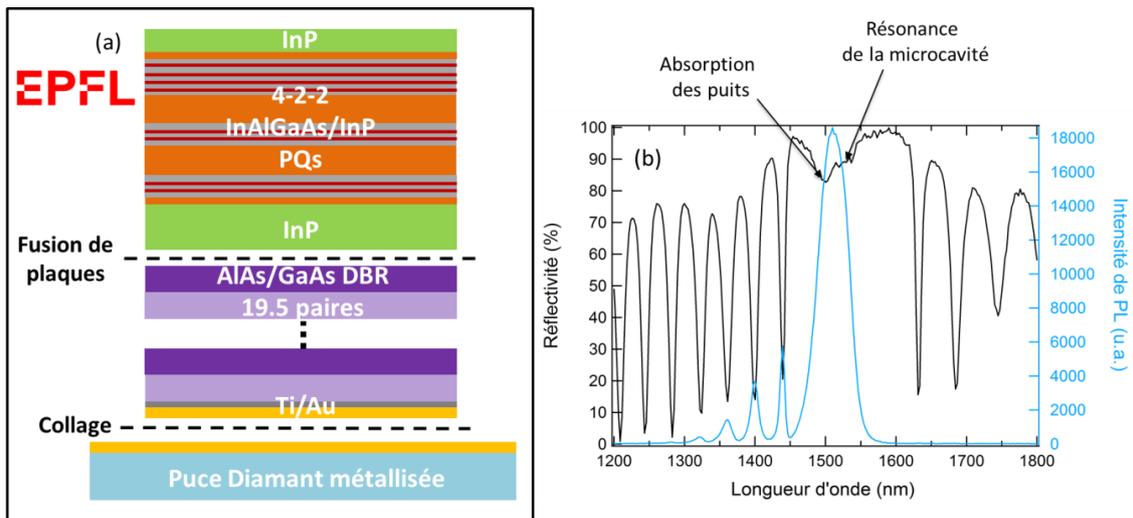


Figure 4.12 : (a) Schéma de l'empilement de la structure à PQs. (b) Spectre de réflexion (courbe noire) et spectre de photoluminescence (courbe bleue) de cette structure.

La photoluminescence (PL) de l'échantillon et sa réflectivité, mesurée par réflectométrie, sont présentées à la Figure 4.12(b). La réflectivité de la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL révèle principalement celle des miroirs de Bragg, dont la plus haute réflectivité est optimisée par le design pour être obtenue autour de la longueur d'onde laser, et est atteinte sur environ 150 nm. Sur cette plage spectrale apparaissent le creux d'absorption des PQs, autour de 1495-1500 nm, et le creux de la résonance de la cavité, autour de 1535-1540 nm. La PL est effectuée avec un laser de pompe Nd :YAG émettant à 1064 nm, avec une puissance de 13 mW. Le pic de PL est situé à 1510 nm et a une largeur à mi-hauteur de 50 nm. Ces résultats garantissent une émission du laser autour de 1540 nm.

4.2.2 VECSEL à boîtes quantiques

4.2.2.1 Design de l'échantillon

Afin de réaliser le VECSEL à BQs, la zone active est épitaxiée avec les paramètres de croissance choisis dans le Chapitre 2 sur un substrat InP(311)B de deux pouces, et porte le numéro

d'échantillon 6394-2. La structure utilisée pour la saturation d'absorption (4×5 plans de BQs, séparés par des épaisseurs d'InP distinctes) est reproduite quasiment à l'identique sur la plaque 6394-2, avec en plus une couche de phase de 460 nm d'InP complétée par une couche d'arrêt d'InGaAs et une fine couche (10 nm) de quaternaire qui sert de couche de fusion pour les miroirs de Bragg. Le schéma de la zone active est présenté à la Figure 4.13(a).

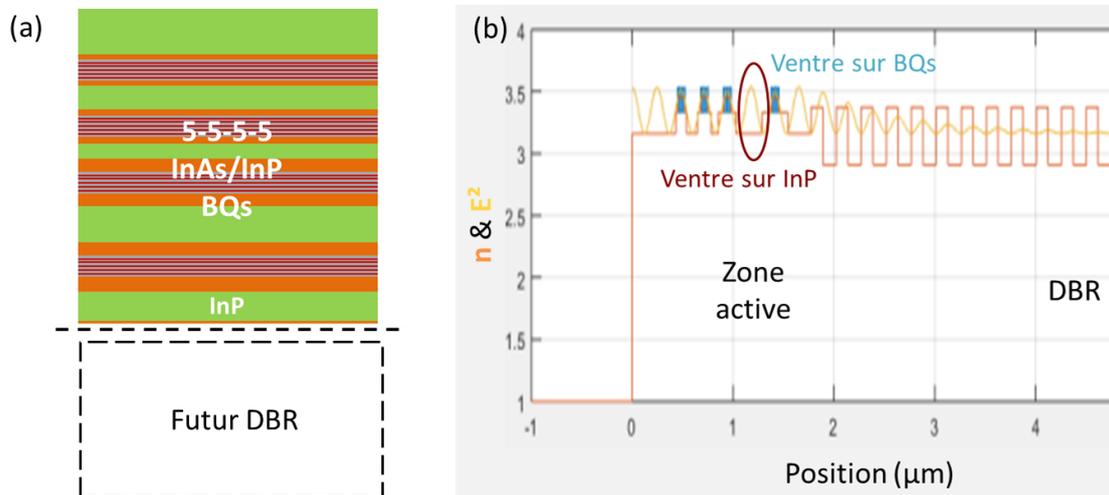


Figure 4.13 : (a) Schéma de l'empilement de la zone active à BQs. (b) Simulation du champ stationnaire dans la zone active à BQs et du début du DBR.

Le choix du nombre de plans de BQs (5-5-5-5) par rapport aux nombre de puits quantiques du premier VECSEL (4-2-2) vient de l'épaisseur plus faible des plans de BQs. Pour les BQs, qui de plus ne recouvrent pas toute la surface du plan, l'épaisseur du plan est de 2,4 nm contre 7 nm pour les PQs, ce qui baisse le facteur de recouvrement et donc le gain modal. Nous compensons ce manque de gain en ajoutant plus de plans de BQs par groupe, et un groupe supplémentaire. Au niveau des épaisseurs d'InP pour l'empilement, elles sont calculées pour coïncider avec les nœuds de l'onde stationnaire optique de la cavité, et les ventres pour correspondre aux plans de BQs. Il est à noter, comme nous pouvons le voir sur la Figure 4.13(b), qu'une couche d'InP est laissée vide de BQs. Ceci permet de décaler le 4^{ème} groupe de plans sur le prochain ventre, et ainsi de croître une épaisseur d'InP plus importante (260 nm contre seulement quelques nm), ce qui est nécessaire pour retrouver une surface parfaitement plane lors de la croissance MBE avant de poursuivre l'empilement.

4.2.2.2 Caractérisations spectrales de la zone active

Nous avons également réalisé avant la fusion des plaques, par soucis de vérification, la PL de l'échantillon 6394-2. La plaque présente une différence notable bord-centre. Malgré cette séparation, elle est homogène au sein des deux zones, comme le montre les spectres de PL réalisés

au laboratoire et présentés à la Figure 4.14(a) et (b). De longueur d'onde et largeur à mi-hauteur similaires, la différence se fait surtout dans l'intensité de PL, globalement 1,5 à 2 fois plus intense au bord. Sur les spectres de PL, on notera un léger épaulement vers 1,65 μm , lié à l'émission de la couche d'arrêt d'InGaAs.

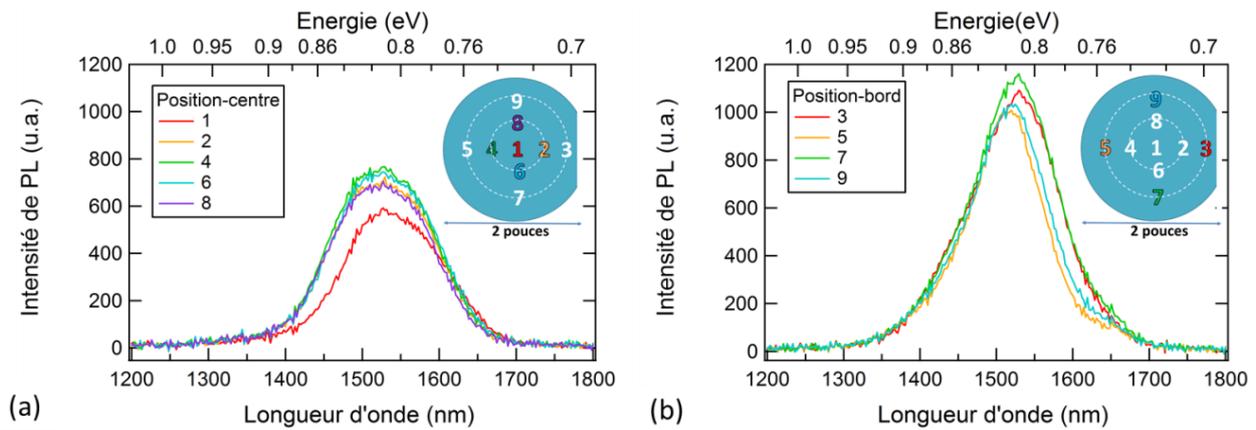


Figure 4.14 : Cartographie de PL de l'échantillon 6394-2 réalisée au laboratoire sur quelques points (a) au centre de la plaque et (b) sur le bord.

4.2.2.3 Caractérisations spectrales du DBR et de la structure fusionnée

La plaque épitaxiée de deux pouces a ensuite été envoyée à l'EPFL pour être fusionnée par le même procédé que pour la puce à puits quantiques au DBR constitué de 29,5 paires d'AlAs/GaAs. Le DBR a également été caractérisé par l'EPFL en établissant une cartographie spectrale, présentée à la Figure 4.15, afin de s'assurer de l'homogénéité de celui-ci.

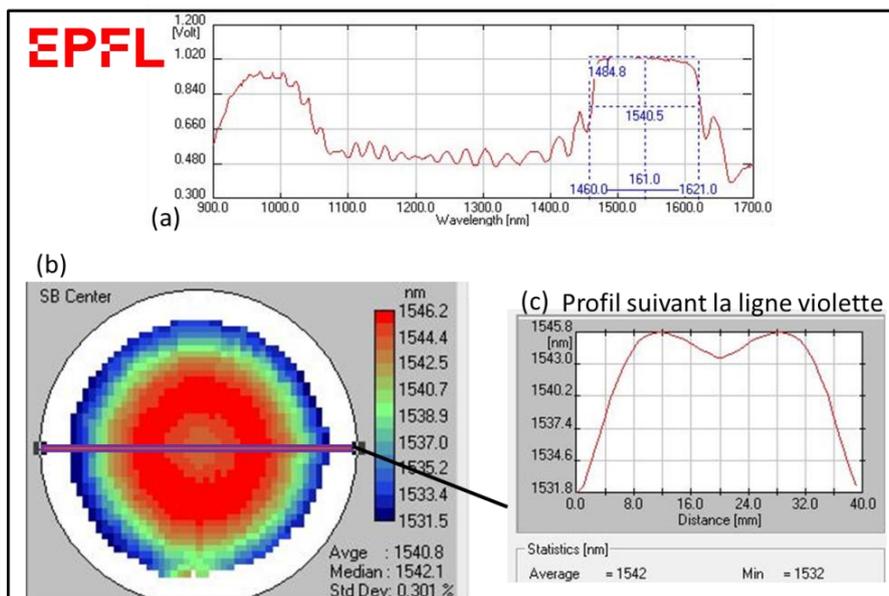


Figure 4.15 : Cartographie spectrale réalisée par l'EPFL sur le DBR avec (a) un exemple du spectre du DBR, (b) la cartographie de la longueur d'onde centrale du DBR pour toute la plaque et (c) suivant la ligne violette tracée sur la cartographie.

Sur le spectre du DBR présenté en (a), nous voyons qu'il est centré à 1540 nm, et large de 160 nm. Sur la cartographie, nous observons que le DBR est bien homogène : même si sur l'extrême bord de la plaque la longueur d'onde passe de 1546 nm à 1532 nm, l'écart type reste très faible, et vaut 0,3%.

Par conséquent, la fusion de la zone active et du DBR est réalisée. La structure fusionnée schématisée à la Figure 4.16(a) a pour référence OVE31. La grande différence avec la structure à PQs est que le substrat GaAs n'a pas été enlevé. En effet, le choix de la gestion de la thermique s'est porté sur l'insertion d'un diamant intracavité, car normalement plus performant niveau thermique, et impliquant de conserver le substrat GaAs. La fusion des deux plaques a réussi, comme nous pouvons le voir sur la photographie d'un quart de la plaque, présentée à la Figure 4.16(b).

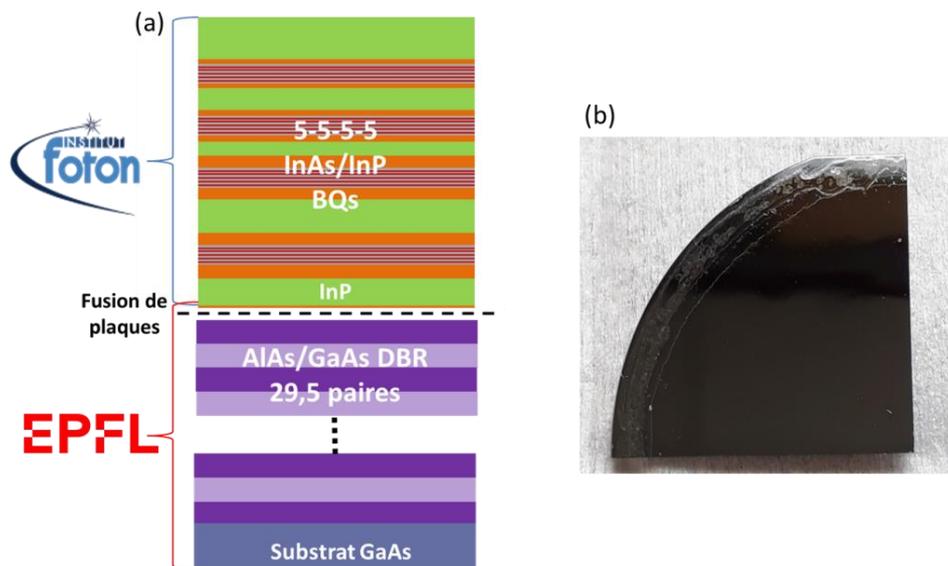


Figure 4.16 : (a) Schéma de l'empilement du $\frac{1}{2}$ -VCSEL à BQs (OVE31). (b) Photographie d'un quart de la plaque OVE31.

La cartographie de PL de la structure finale est ensuite effectuée. La Figure 4.17 présente cette cartographie réalisée par l'EPFL sur toute la plaque de deux pouces, avec en (a) la longueur d'onde centrale de l'émission et en (b) l'intensité du pic. Cette cartographie montre un comportement assez atypique en comparaison des structures régulièrement réalisées par l'EPFL (comme la structure à PQs), puisque nous observons une importante inhomogénéité en longueur d'onde et en intensité de PL sur toute la surface de la plaque. En effet, nous observons une séparation bord-centre très marquée pour l'intensité, où ici l'extérieur de la plaque produit une plus grande intensité, jusqu'à trois fois plus forte que celle mesurée au centre. Concernant la longueur d'onde, nous constatons également une importante disparité entre le centre et le bord, de plus de 180 nm.

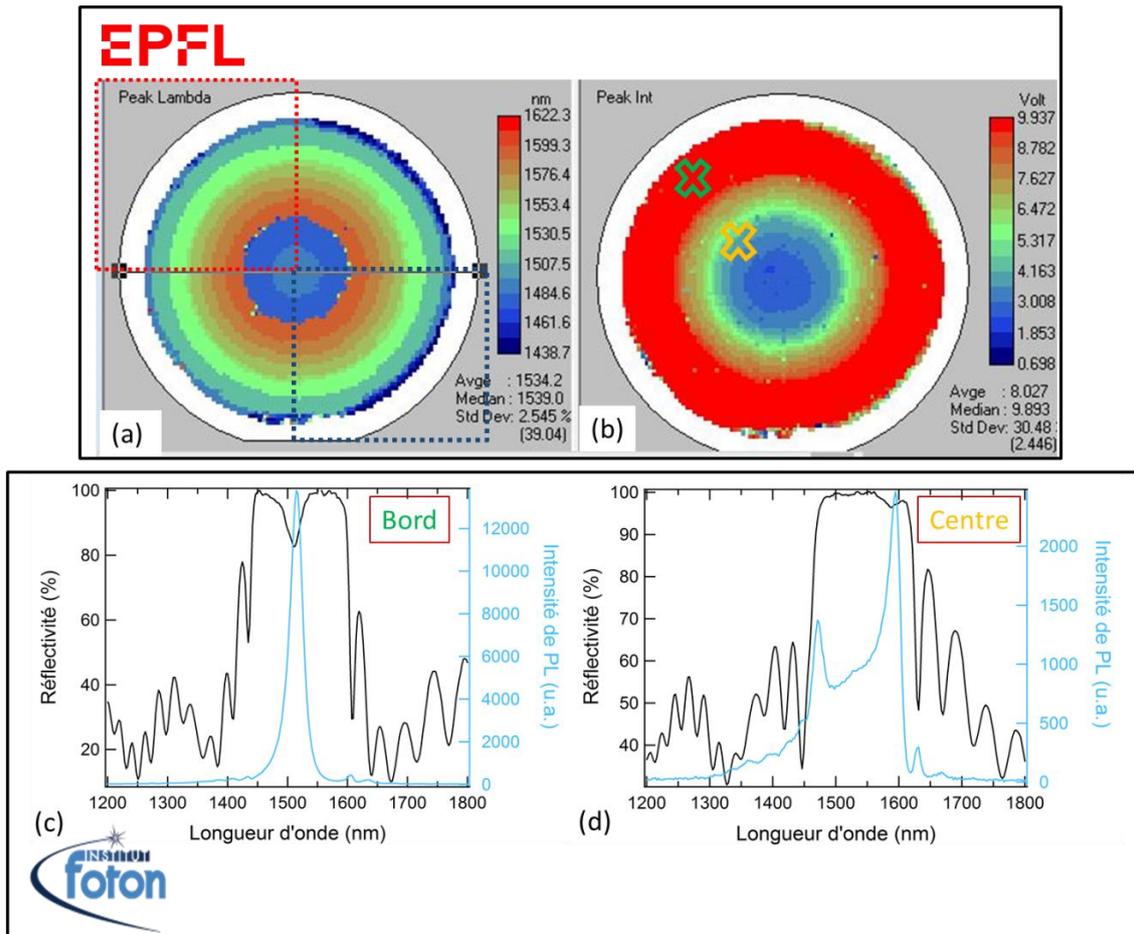


Figure 4.17 : Cartographie complète de la PL du $\frac{1}{2}$ -VCSEL OVE31 réalisée par l'EPFL, avec (a) la longueur d'onde centrale de l'émission (b) l'intensité de la PL. Les cadres du (a) correspondent aux quarts envoyés au laboratoire (en rouge) et à l'université de Tampere (en bleu). (c) et (d) sont les spectres superposant la réflectivité (courbe noire) et la PL (courbe bleue), mesurées au laboratoire, respectivement au bord et au centre. Les croix sur la figure (b) indiquent où ces deux caractéristiques ont été mesurées.

Pour plus de lisibilité, nous avons également représenté à la Figure 4.17(c) et (d) les spectres de PL et de réflectivité mesurés au centre et au bord de la plaque. Nous retrouvons l'importante variation de l'intensité de PL. Si nous considérons le pic de résonance principal, nous avons un rendement de PL qui est jusqu'à 5 fois plus fort sur le bord qu'au centre. En bord de plaque en particulier, l'intensité est la plus intense, la PL est centrée à 1514 nm, et avec une largeur de raie de 26 nm. Par rapport à la précédente cartographie de PL (avant fusion), la PL des BQs était centrée à 1510 nm, avec une largeur de raie de 140 nm. Cette réduction de la largeur de raie est liée aux effets de résonance. La proximité des longueurs d'onde avant et après fusion montre que l'on a un relativement bon accord de la sous-cavité résonante du $\frac{1}{2}$ -VCSEL sur les bords de la plaque, alors qu'au centre on observe deux modes de résonance, avec une émission principalement centrée à 1590 nm. Ce constat nous indique que le mode de résonance au centre n'est pas identique au mode observé au bord de la plaque. Les mesures précédentes de cartographie de PL réalisées sur le DBR

et sur l'échantillon 6394-2 à BQs avant fusion ayant montré une homogénéité spectrale satisfaisante, nous pouvons donc conclure que l'inhomogénéité spectrale observée après fusion de la $\frac{1}{2}$ cavité VCSEL est ici la conséquence d'une inhomogénéité en épaisseur des couches d'InP séparant les différents groupes de BQs. A partir de ces spectres, nous avons estimé que ces couches d'InP devaient être plus épaisses de l'ordre de 5 % au centre, et conformes sur les bords au design de la Figure 4.13. En complément des spectres de PL, la Figure 4.17(c) et (d) montre également les spectres de réflexion, permettant en particulier de visualiser les modes de résonance de la cavité. Par comparaison avec la structure à PQs, nous voyons que le mode de résonance est ici bien plus marqué et bien plus fin avec la structure à BQs, conséquence de la plus faible absorption des BQs.

La plaque de 2 pouces est finalement découpée en quatre cadrans, dont nous récupérons le quart haut-gauche. Il est lui-même clivé par la suite en plusieurs morceaux. Le quart symétrique au nôtre a été envoyé à l'université de Tampere pour des expérimentations visant à en extraire le maximum de puissance. Grâce aux cartographies de PL de la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL, nous pouvons viser où pomper préférentiellement. Ainsi, le centre de la plaque est à éviter alors que le bord est à privilégier.

4.3 Description du montage expérimental

Pour le montage de la cavité externe, la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL est montée sur une embase en cuivre, collée à la pâte thermique sur un module thermoélectrique Peltier, qui permet de maintenir l'échantillon à 20°C. Cet ensemble est fixé sur une monture permettant la translation en x et en y (z est la direction de propagation), ainsi qu'une rotation de l'échantillon autour de l'axe z. La cavité est de type plan-plan. Elle comprend une lentille biconvexe en silice fondue de distance focale $f = 20$ cm, assurant la stabilité du résonateur. Le coupleur de sortie possède une réflectivité $R=99,5$ %. Un cristal biréfringent d'YVO₄ peut, dans certains cas, être inséré. Le schéma ainsi que la photographie légendée de la cavité sont présentés à la Figure 4.18. Le laser de pompe est une diode laser fibrée, dont la fibre est à maintien de polarisation, pouvant fournir 1 W de puissance à 975 nm en continu. Elle est placée à un angle d'incidence de 45° par rapport à l'axe de la cavité laser. Le faisceau de pompe est mis en forme puis focalisé sur la surface de la puce à l'aide de deux lentilles. La première lentille de collimation a une focale $f_1 = 6,4$ mm. La deuxième lentille, de focalisation, a une focale de $f_2 = 50$ mm. Le faisceau de pompe au niveau de l'échantillon a un waist ω_c de 32 μm . Nous choisissons un spot de pompe relativement petit, pour obtenir une émission laser TEM₀₀ à un seuil de pompe bas, ce qui a également pour conséquence une plus faible puissance de sortie du laser.

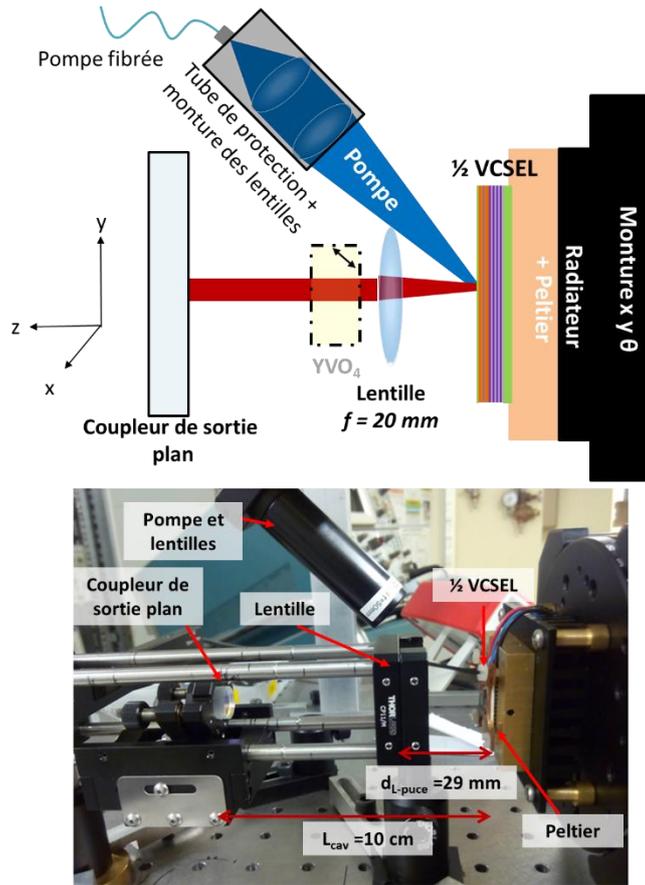


Figure 4.18 : Schéma et photographie légendés du montage de la cavité plan-plan pour une émission multimode du VECSEL. Le cristal biréfringent d'YVO₄ peut être inséré.

A cause de l'angle d'incidence, le faisceau de pompe subit une réfraction de Fresnel en entrant dans l'échantillon. L'angle de réfraction i_2 est alors de $12,88^\circ$. Au sein de la structure, la réfraction est très faible, car les indices de réfraction des différents matériaux sont très proches. La réfraction et les différents indices sont schématisés à la Figure 4.19 pour le VECSEL à puits quantiques. Nous trouvons donc la relation géométrique : $\omega_L = \omega_C / \cos(i_2)$, avec ω_C et ω_L les demi-axes court et long de l'ellipse formée par le spot de la pompe.

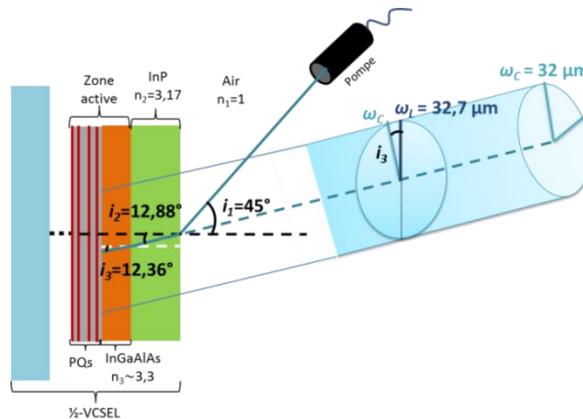


Figure 4.19 : Schéma représentant la réfraction de la pompe à travers l'échantillon, et conséquemment la forme de son spot, avec ω_C et ω_L respectivement les demi-axes court et long.

Sur la zone active et sur les plans de puits ou boîtes quantiques, grâce à la réfraction, le spot calculé est quasiment circulaire avec $\omega_L = 32,7 \mu\text{m} \sim \omega_C = 32 \mu\text{m}$, alors que sur la surface de l'échantillon, le spot de pompe calculé est une ellipse de demi-axe $\omega_L = 45 \mu\text{m}$ et $\omega_C = 32 \mu\text{m}$. La taille du spot de pompe étant fixée, il faut maintenant trouver la position optimale de la lentille au sein de la cavité. La Figure 4.20 montre quelles sont les combinaisons distance lentille-puce et longueur de cavité à choisir pour obtenir un waist de mode de $30 \mu\text{m}$, légèrement plus petit que le waist de la pompe. Nous plaçons ainsi la lentille à un peu plus de 29 mm de la puce ; la longueur de la cavité est alors de 10 cm (courbe magenta).

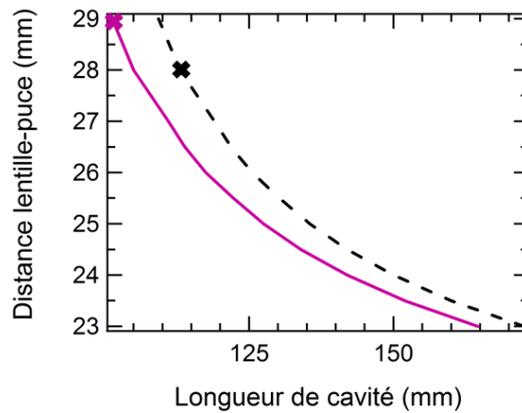


Figure 4.20 : Evolution de la distance lentille-puce permettant de satisfaire les conditions de stabilité de la cavité plan-plan en fonction de la longueur de la cavité pour obtenir un waist sur la puce de $30 \mu\text{m}$. La courbe pointillée noire est la courbe obtenue lorsqu'on ajoute le cristal biréfringent dans la cavité.

En prévision du régime bi-fréquence et de la mesure du couplage, nous insérons un cristal biréfringent d' YVO_4 juste après la lentille, qui vient séparer spatialement sur le coupleur de sortie les deux états propres de polarisation en deux modes polarisés orthogonalement de fréquence légèrement différente. La longueur de la cavité passe à 11,3 cm et la distance de la puce à la lentille optimale est de 28 mm (courbe pointillée noire). Le rôle de ce cristal et ses propriétés seront plus amplement discutées dans Chapitre 5.

4.4 Caractérisations des échantillons VECSELS

4.4.1 Le VECSEL à puits quantiques

Le laser décrit précédemment, dans la configuration où nous avons inséré le cristal biréfringent, opère naturellement en régime multimode longitudinal, caractérisé par une émission spectrale large de 11 nm centrée à 1540 nm que nous avons tracée à la Figure 4.21(a). Le spectre du faisceau est mesuré avec un analyseur de spectre optique (ASO) dont la résolution spectrale est de

0,5 nm. Lorsqu'on mesure le spectre d'émission avec un ASO de plus haute résolution, 0,05 pm, nous pouvons observer l'intervalle spectral libre du laser qui vaut 0,0096 nm (1,3 GHz). Ainsi, nous pouvons déduire avec précision la longueur de la cavité, qui vaut : $L = 11,28$ cm.

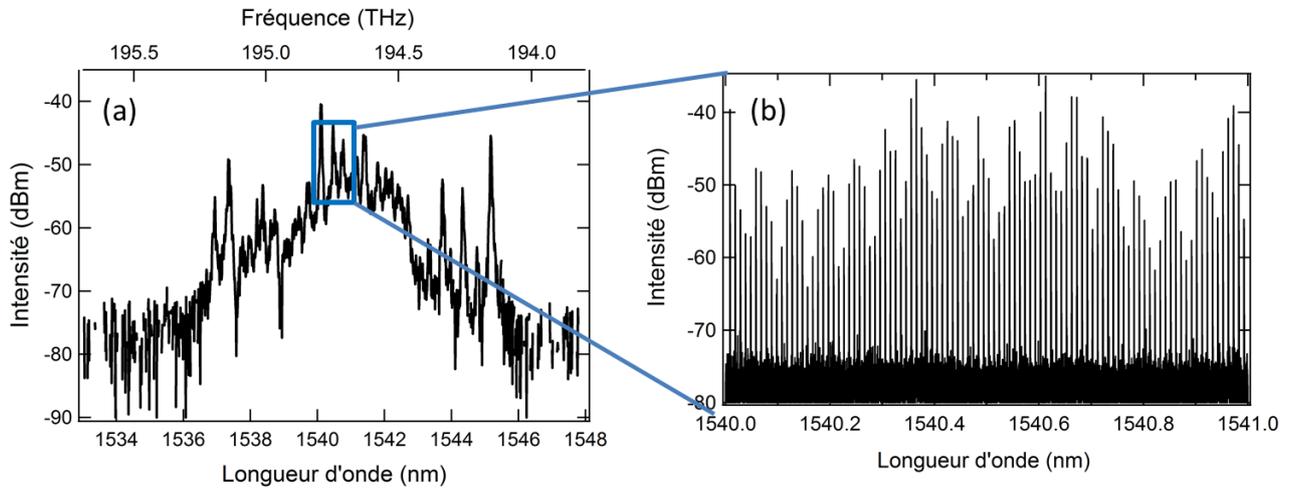


Figure 4.21 : Spectres multimodes du VECSEL acquis avec différentes résolutions : (a) résolution de 0,5 nm pour obtenir le spectre d'émission complet, et (b) résolution de 0,05 pm pour visualiser l'ISL de la cavité.

Nous avons également mesuré la puissance émise par le VECSEL en fonction de la puissance de pompe. La courbe caractéristique obtenue est présentée à la Figure 4.22.

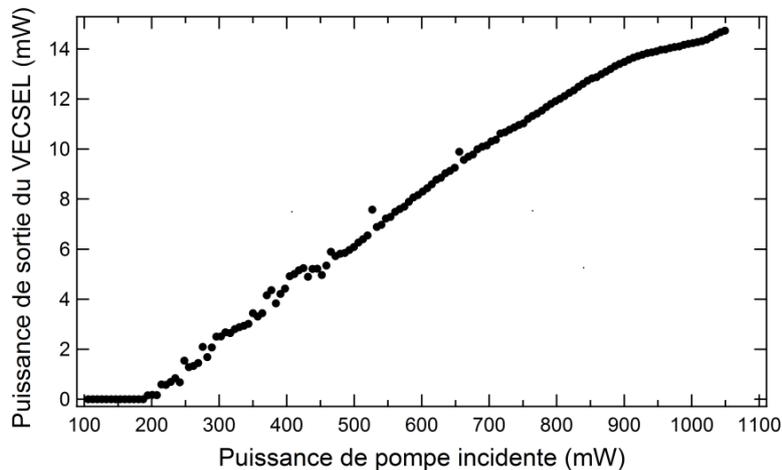


Figure 4.22 : Evolution de la puissance en sortie du VECSEL en fonction de la puissance de pompage, dans la limite de celle-ci. Pour ces mesures, le cristal biréfringent est déjà inséré.

Dans cette condition, le laser a une puissance incidente de seuil à 200 mW (11,7 kW/cm²). A cause des composants intracavité déjà présents et de la petite taille du spot de pompe, la puissance totale émise atteint 14,7 mW pour une puissance de pompe incidente de 1050 mW (61 kW/cm²). De plus, nous utilisons volontairement un coupleur de sortie de grande réflectivité (99,5%), pour préparer la cavité aux futures mesures de couplage. Dans cet intervalle de puissance de pompe, nous n'observons pas de roll-over thermique, impliquant une bonne évacuation de la chaleur. Il est à

noter que la structure semiconductrice n'étant pas traitée antireflet pour la longueur d'onde de la pompe, nous mesurons donc que seule une moitié de la puissance incidente est transmise au milieu actif.

Le VECSEL à PQs présente ainsi des caractéristiques satisfaisantes, dont une puissance suffisante pour les caractérisations du prochain chapitre, et une plage spectrale satisfaisante pour pouvoir effectuer des mesures en fonction de l'écart spectral entre les deux modes sur une dizaine de nm. Enfin, à la sortie du coupleur, deux spots séparés sont visibles avec la carte infrarouge, ce qui indique que les deux polarisations peuvent osciller simultanément (confirmé par un système de caractérisation optique et d'un polariseur, détaillé dans le chapitre suivant).

4.4.2 Le VECSEL à boîtes quantiques

4.4.2.1 Mesures préliminaires sur notre montage

En ce qui concerne le $\frac{1}{2}$ -VCSEL à BQs, dont la structure est rappelée à la Figure 4.23(a), les premiers essais ont été réalisés sans diamant (ni intracavité, ni sous le DBR car le substrat a été conservé). Le substrat GaAs, tout de même aminci de 350 à 100 μm , est collé directement à la pâte thermique sur le support en cuivre refroidi par le Peltier. Bien que la puce soit installée dans les mêmes conditions que le $\frac{1}{2}$ -VCSEL à PQs (également avec le cristal biréfringent inséré), et que le pompage soit dans la zone optimale par rapport aux mesures précédentes (sur le bord, voir Figure 4.23(b)), nous n'avons pas obtenu l'émission laser.

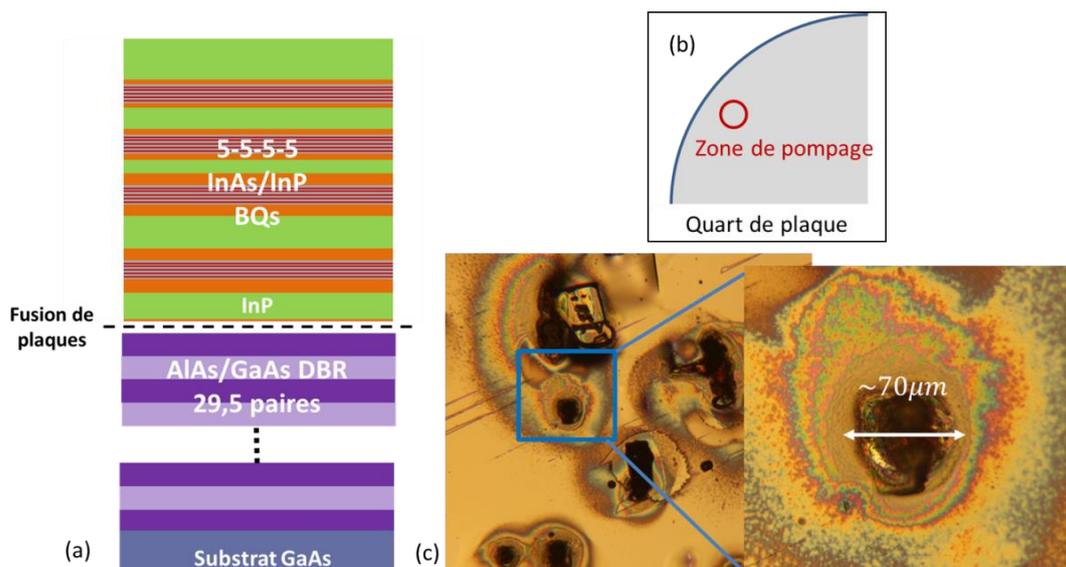


Figure 4.23 : (a) Schéma de la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL à BQs. (b) Schéma situant la zone de pompage sur le quart de plaque lors des essais. (c) Photographie prise au microscope de la puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL à BQs, après montée en puissance (jusqu'à 800 mW). La taille des impacts correspond au diamètre de pompage.

Nous avons remarqué que la puce a fini par être endommagée après de multiples tentatives de pompage à différents endroits dans la zone optimale, comme le montre la Figure 4.23(c). L'endommagement, visible au microscope, se produit systématiquement au-delà d'une puissance de 500 mW, soit 29 kW/cm², et est susceptible d'apparaître à partir de 340 mW, soit 20 kW/cm². Ces puissances sont pourtant relativement faibles comparées aux puissances que supporte la puce à PQs, dont le seuil est à 11,7 kW/cm² ; elle n'a en effet subi aucun endommagement même à 61 kW/cm² de pompage. Cet endommagement prouve une mauvaise dissipation de la chaleur [280].

4.4.2.2 Caractérisations réalisées par l'université de Tampere

Le quart de plaque qui a été fourni à l'université de Tampere, a contrario, a été placé sur un dissipateur en diamant monocristallin intracavité. Cette architecture a permis d'obtenir l'émission laser avec d'excellents résultats que nous allons détailler [281]. Pour dissiper la chaleur, chaque puce rectangulaire de 2,7 × 2,7 mm² clivée à partir de la plaque est collée par capillarité à un diamant intracavité de 3 × 3 × 0,35 mm³. Le montage de la cavité et du diamant intracavité est schématisé à la Figure 4.24.

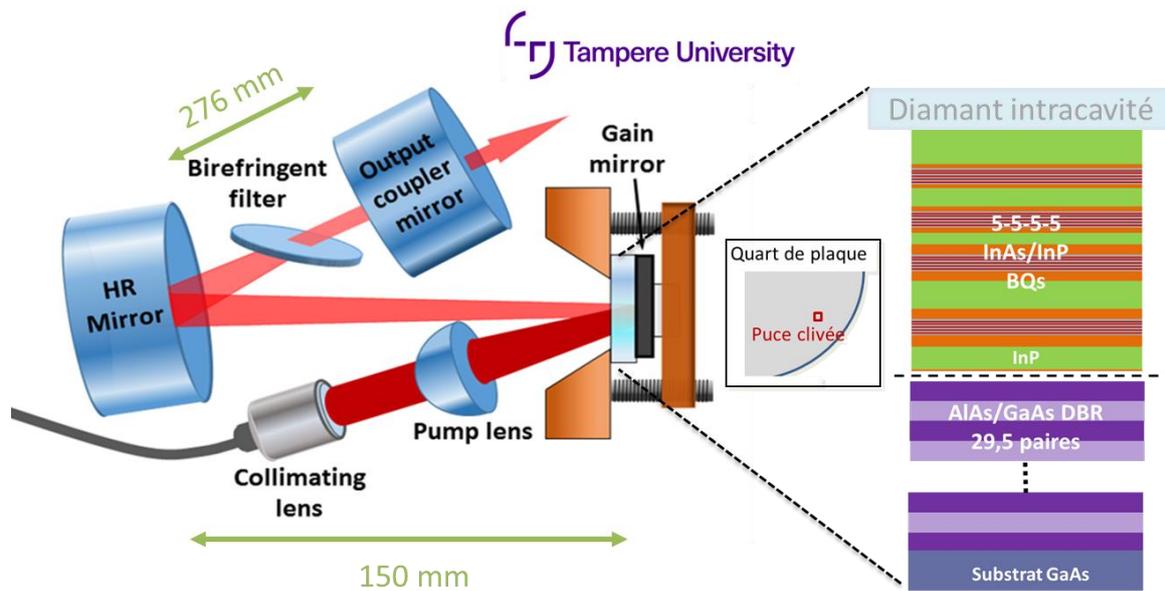


Figure 4.24 : Schéma de la configuration en V de la cavité de l'université de Tampere [281]. La structure 1/2-VCSEL provenant du bord de plaque est représentée avec le diamant intracavité.

La cavité VECSEL est une cavité en V comportant deux miroirs (sans compter le DBR). Le miroir intermédiaire est de très grande réflectivité (> 99,8%) et de rayon de courbure de 20 cm. La cavité est fermée par un coupleur de sortie plan, de réflectivité de 99%. Un filtre biréfringent de 0,5 mm d'épaisseur, placé en incidence de Brewster, permet de figer la polarisation du laser. Elle permet, en outre, d'accorder les longueurs d'onde du laser.

Afin d'obtenir de très fortes puissance de sortie, le VECSEL est pompé avec une diode laser à 980 nm dont le spot focalisé sur la puce est de très grande dimension : $\sim 220 \mu\text{m}$ de diamètre. Le diamètre du mode est de $190 \mu\text{m}$ sur la zone active. La puce est montée sur une plaque en cuivre refroidie thermo-électriquement, la maintenant à 15°C , en contact direct sur le diamant. Les caractéristiques de puissance de sortie et les spectres correspondants, mesurés sur deux puces, sont présentés à la Figure 4.25.

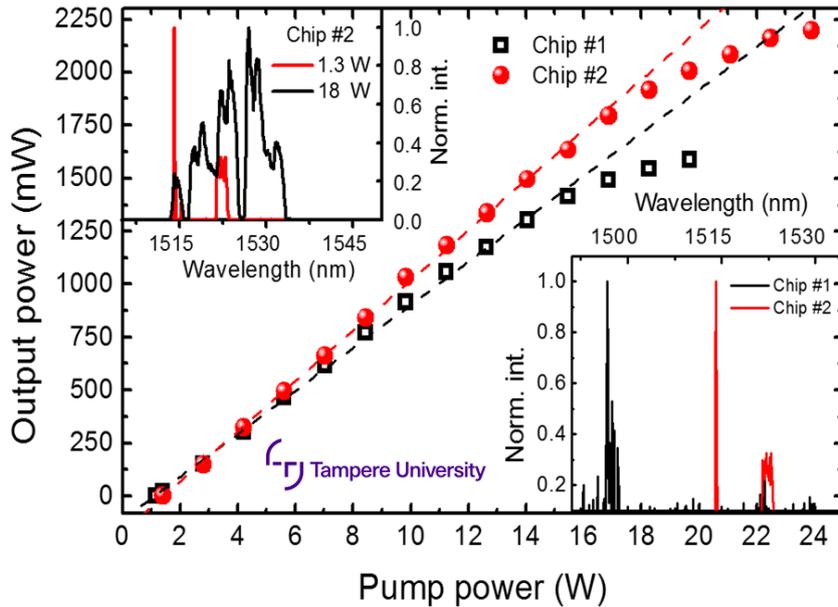


Figure 4.25 : Caractéristiques de puissance du VECSEL, pour deux puces provenant de différents endroits du quart de plaque. L'insert du bas est le spectre des deux puces au seuil. L'insert du haut montre le spectre de la puce 2 sous 1,3W et 18 W de puissance incidente de pompe [281].

Grâce à cette configuration privilégiant les fortes puissances de sortie, la puissance maximale de sortie est mesurée à 2,2 W sous 24 W (126 kW/cm^2) de puissance incidente de pompe, pour un seuil laser atteint dès 1,4 W ($7,4 \text{ kW/cm}^2$) de puissance incidente. Les deux puces ne sont pas totalement identiques, comme nous l'avons vu avec les cartographies de la partie 4.2.2. Ces légères différences sont notamment dues aux variations de l'épaisseur de la zone active sur la plaque. Ces variations entraînent un décalage entre la résonance de la microcavité et du pic de PL, et donc une émission de puissance plus faible et décalée en longueur d'onde.

Quant à l'accordabilité du VECSEL, les résultats obtenus en tournant légèrement le filtre biréfringent sont reportés sur la Figure 4.26. L'accordabilité de la longueur d'onde des deux puces est importante : 60 nm. Ces mesures réalisées pour une puissance de pompe incidente de 6 W ($31,6 \text{ kW/cm}^2$).

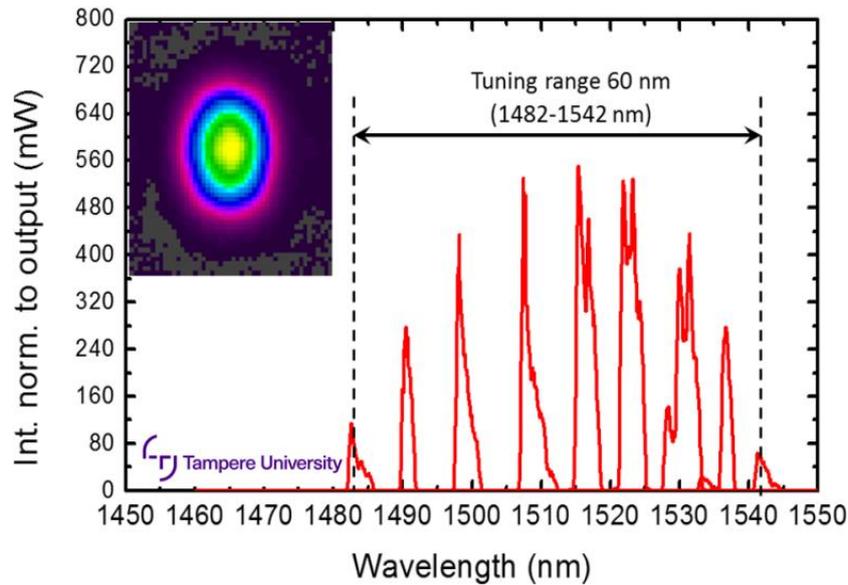


Figure 4.26 : Courbes d'accordabilité de la longueur d'onde. L'insert est le profil du faisceau acquis sous une puissance incidente de 22 W (116 kW/cm²) [281].

Cette étude a permis d'obtenir le premier VECSEL à BQs émettant à 1,52 μm avec de fortes puissances de sortie de 2,2 W (pour des BQs) et une très large accordabilité de 1482 à 1542 nm, soit 60 nm. Ces résultats sont très prometteurs pour l'émission bi-fréquence, et nous prévoyons donc d'utiliser un diamant intracavité sur notre montage pour les prochaines manipulations.

4.5 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'architecture des VECSELS et leur état de l'art. Les nombreux VECSELS à PQs couvrent une plage spectrale de 393 nm à plus de 6 μm , et notamment autour de 1,55 μm , où les PQs sont sur substrat InP. D'ailleurs, les récentes avancées technologiques du DBR ont permis la nette amélioration des propriétés de ces VECSELS. En ce qui concerne les VECSELS à BQs sur substrat GaAs, les démonstrations s'arrêtent à 1,3 μm .

Nous avons décrit les deux structures VECSELS étudiées dans cette thèse, dans un premier temps testées en régime multimode. Le premier $\frac{1}{2}$ -VCSEL se caractérise par une zone active à PQs, constituée de 3 groupes de PQs (4-2-2 PQs), et d'un DBR de fond de cavité AlAs/GaAs de 19,5 paires. La structure complète est obtenue par fusion de plaque, et le tout est reporté sur diamant. Ce laser a été testé sur notre montage expérimental (pompe émettant à 980 nm, de dimensions 32 \times 33 μm) : son seuil est de 200 mW, et sa puissance atteint 14,7 mW sous 1050 mW d'excitation.

La seconde structure, obtenue également par fusion de plaque, se caractérise par une zone active à BQs, constituée de 4 groupes de BQs (5-5-5-5 BQs), et d'un DBR de fond de cavité AlAs/GaAs de

29,5 paires. Les mesures préliminaires (cartographie de PL) ont permis de montrer une forte inhomogénéité sur la plaque de 2 pouces, limitant la zone d'intérêt aux bords de la plaque. En l'absence de diamant intracavité, nous n'obtenons pas l'émission laser. La collaboration avec l'université de Tampere, ayant réceptionné un quart de la plaque de 2 pouces et dont la structure comporte un diamant intracavité, a permis l'obtention de l'émission laser. Il s'agit de la première démonstration d'un VECSEL à BQs sur InP, et qui constitue l'état de l'art des BQs à 1,55 μm . De plus, les caractérisations effectuées par l'université de Tampere sur ce VECSEL montrent de très bonnes performances, avec une forte puissance de sortie (2,2 W) et une très large accordabilité (60 nm). Ces résultats confirment la bonne qualité de la structure à BQs, ayant été optimisée, et permettra donc de tester le comportement des BQs en régime laser bi-fréquence.

Dans le but de préparer le fonctionnement bi-fréquence de notre VECSEL à PQs, la cavité est de type plan-plan, et une lentille assurant la stabilité ainsi qu'un cristal biréfringent permettant l'oscillation sur les deux états propres de polarisation sont déjà présents au sein de la cavité. Dans le chapitre suivant nous nous concentrerons sur l'obtention du régime bi-fréquence sans séparation spatiale des deux modes dans le milieu actif, en rendant les deux polarisations monomodes grâce à l'insertion de deux filtres spectraux.

Chapitre 5

Mesure directe du couplage dans les VECSELS

5.1 Le couplage dans les lasers bi-fréquences	163
5.1.1 La constante de couplage de Lamb	163
5.1.2 Dans les lasers à état solide	164
5.1.3 Dans les lasers à semiconducteur et les VECSELS.....	164
5.2 Principe de la mesure.....	166
5.3 Description et validation du dispositif expérimental	167
5.3.1 Conception de la cavité bi-fréquence pour la mesure du couplage.....	168
5.3.2 Chaîne de détection et analyse de l'émission bi-fréquence.....	171
5.4 Couplage dans les VECSELS à base de puits quantiques	175
5.4.1 Fonctionnement bi-fréquence	175
5.4.2 Mesure de la constante de couplage et de sa dépendance spectrale.....	177
5.4.3 Etude statistique.....	180
5.4.4 Discussion des résultats	183

Au chapitre précédent, nous avons réalisé les premières étapes nécessaires à l'obtention de l'émission bi-fréquence au sein de la même cavité uni-axiale. En effet, nous avons réussi à faire osciller le VECSEL à puits quantiques pompé optiquement sur les deux états de polarisation propres croisés orthogonalement et séparés spatialement sur le coupleur de sortie, tandis que superposés dans le $\frac{1}{2}$ -VCSEL, grâce à l'introduction d'un cristal biréfringent d' YVO_4 . Ces deux bras du VECSEL sont quant à eux toujours multimodes. Pour obtenir l'émission bi-fréquence, chaque état de polarisation doit devenir monomode, ce que nous pouvons faciliter en introduisant des éléments intracavité jouant le rôle de filtres spectraux, tels que des étalons Fabry-Pérot, sur chacun des bras. Ce montage est réalisé dans le but d'une part de prouver que l'émission bi-fréquence d'un VECSEL à PQs de cavité uniaxe peut être réalisée expérimentalement avec les deux modes superposés dans

le milieu actif, et d'autre part, mesurer de façon indiscutable la constante de couplage de Lamb entre ces deux modes.

Dans ce chapitre, nous présenterons en premier lieu un résumé des travaux antérieurs sur les lasers bi-fréquences puis sur les VECSELS. Ensuite nous aborderons la question de la compétition entre les deux modes déjà mesurée dans la littérature à travers la constante de couplage de Lamb. Dans un second temps, nous décrirons le principe de la mesure mise en place et le montage expérimental dédié ainsi que sa validation. Enfin, nous détaillerons et commenterons les résultats obtenus sur le VECSEL à PQs.

5.1 Le couplage dans les lasers bi-fréquences

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, il n'y a pas eu de démonstration d'un VECSEL bi-fréquence de polarisation orthogonale où les modes TEM_{00} résonants dans la même cavité uni-axiale sont superposés sur le milieu actif. La cause est la forte compétition entre les modes pour le gain des puits quantiques, difficilement surmontée dans ce type d'architecture laser. En effet dans le cas particulier des VECSELS, des contraintes mécaniques résiduelles ainsi que des effets thermiques peuvent induire un dichroïsme de gain non négligeable, favorisant l'oscillation d'une seule polarisation [282]. La compétition entre les deux modes peut être quantifiée pour comparer les différents milieux à gain et vérifier la stabilité de l'oscillation, à l'aide de la constante de couplage de Lamb comme nous allons le voir, bien que cette constante ait été introduite initialement par Lamb pour les lasers à gaz [24].

5.1.1 La constante de couplage de Lamb

La constante de couplage de Lamb, notée C et introduite en 1964 [24], est un paramètre physique important dans les lasers multimodes car elle gouverne la dynamique des modes couplés, prenant en compte les aspects spatiaux et spectraux liant les modes dans la cavité. En particulier dans les lasers bi-fréquence, C statue la condition de stabilité de même que la robustesse du régime bi-fréquence. En effet, pour $0 \leq C < 1$, l'oscillation simultanée de deux modes est possible. Néanmoins en pratique, l'oscillation bi-fréquence devient de plus en plus difficile à obtenir lorsque C approche 1, jusqu'à atteindre la bistabilité quand C dépasse 1 [25] : seul un des deux modes oscille. La définition mathématique sera donnée dans la partie **5.2**.

5.1.2 Dans les lasers à état solide

En ce qui concerne l'état de l'art, la constante de couplage a été mesurée dans les lasers bipolarisation à état solide accordables avec des milieux actifs tels que Nd:YAG [9], Er,Yb ;verre [283] et Nd:YVO₄ [284]. Ainsi, C peut être assez élevée, entre 0,8 et 0,9 dans l'Er,Yb:verre [285]–[288] et ~0,85 dans le Nd:YVO₄ [284] ou même assez faible : de jusqu'à 0,4 dans le Nd:YAG, en fonction de l'orientation des axes cristallographiques par rapport aux axes de polarisation du laser [289], [290].

La constante de couplage est le plus souvent mesurée entre des états propres de polarisation TEM₀₀ de polarisation linéaire, mais peut être mesurée également :

- Entre des modes longitudinaux polarisés dans la même direction où elle est de 0,8 dans un laser Er,Yb:verre. [283], [285]. Elle a également été mesurée dans d'autres types de lasers : dans un laser fibré DBR [291] et un laser DFB Al₂O₃:Yb³⁺ [292], [293].
- Entre deux états propres de polarisation, dont l'un oscille sur le mode TEM₀₀ et l'autre sur le mode TEM₀₁, où $C = 0,33$ (contre 0,86 lorsque les deux sont suivant le mode TEM₀₀) [286], ce qui met en avant l'effet du recouvrement spatial entre les deux modes sur la constante de couplage.

Il est à mentionner que lorsque les deux modes sont hélicoïdaux, i.e. deux modes initialement de polarisations orthogonales puis rendues circulaires grâce à l'introduction d'une lame quart d'onde dans la cavité, le couplage est plus fort. En effet, différentes mesures comparatives ont été effectuées entre les modes de polarisation circulaire et linéaire dans le Nd:YAG : *Brunel et al.* ont mesuré $C = 0,4$ contre 0,16 pour des modes linéaires [294], et *McKay et al.*, une valeur de C de 0,87 [38] contre 0,72 [295]. Le couplage est plus fort car les modes hélicoïdaux ont un meilleur recouvrement spatial.

Dans certaines des références précédemment citées [285], [288], C a été mesurée en fonction de l'écart spectral entre les deux modes, et à chaque fois sa valeur était constante. Ainsi, elle a été profondément étudiée dans les lasers à état solide et ces méthodes de mesure ont été adaptées aux lasers à semiconducteurs.

5.1.3 Dans les lasers à semiconducteur et les VECSELS

Dans les milieux semiconducteurs, la constante de couplage a été mesurée pour un VCSEL AlGaAs et vaut 0,8 [296], ce qui est comparable à la plupart des lasers à état solide. Comme nous

l'avons vu précédemment, l'oscillation bipolarisation a déjà été démontrée dans les VECSELS à puits quantiques à 1 μm [18], [297], [298], à 852 nm [46], [48], mais aussi à la longueur d'onde télécom [47], [299]. En raison d'un fort couplage de mode attendu, une séparation spatiale entre les deux modes dans le milieu actif est introduite. Il est à noter qu'à notre connaissance, la valeur de la constante de couplage a été mesurée uniquement de manière indirecte dans une structure à puits quantiques InGaAs/GaAs émettant à 1 μm [19]. Une constante de couplage de 0,8 a été trouvée par extrapolation de la constante de couplage effective obtenue pour différentes séparations spatiales d . En effet, C évolue comme l'intégrale de l'intensité des deux modes (I_1 et I_2) dans la zone active :

$$C = C_0 \frac{\int I_1(x, y) I_2(x, y) dx dy}{(\int I_1^2(x, y) dx dy \cdot \int I_2^2(x, y) dx dy)^{1/2}}, \quad (5.1)$$

où C_0 est la constante de couplage réelle, lorsque les deux modes sont superposés. Ces deux modes étant gaussiens, et en approximant qu'ils ont tous deux un waist ω_0 quasiment identique, C devient :

$$C = C_0 e^{-\frac{d^2}{\omega_0^2}}. \quad (5.2)$$

Pour illustrer l'impact du recouvrement spatial des modes sur la constante de couplage, la Figure 5.1 présente un exemple d'évolution de C en fonction de la distance entre les deux modes, de centre à centre, et pour différentes valeurs du waist.

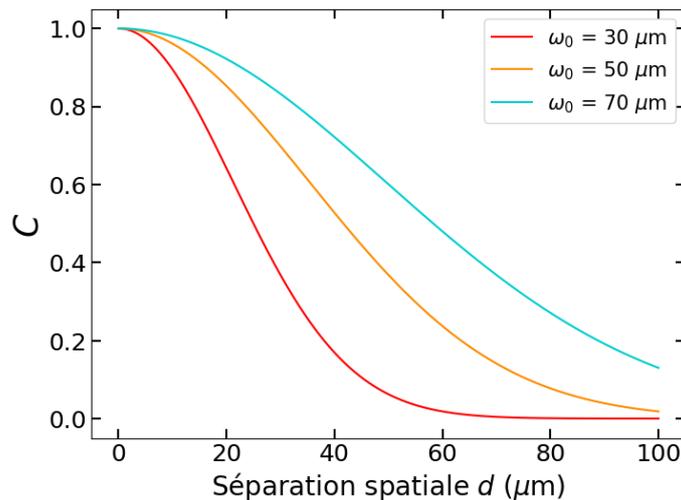


Figure 5.1 : Evolution de la valeur de la constante de couplage de Lamb en fonction de l'écart spatial entre le centre des deux modes, pour différentes valeurs du waist, en prenant $C_0=1$.

Dans la référence [19], en mesurant le couplage pour des séparations $d = 20, 50$ et $100 \mu\text{m}$, l'ajustement de C à l'aide de l'équation (5.2) est réalisé. $C_0 = 0,8$ est ainsi déduit. Cette valeur inférieure à 1 laisse penser que, en principe, il est possible d'obtenir le régime bi-fréquence sans avoir recourt à une séparation spatiale, qui est donc le premier point que nous souhaitons vérifier expérimentalement. De plus nous souhaitons mesurer de manière directe cette constante de couplage et étudier sa dépendance par rapport à la différence de longueur d'onde entre les deux modes. En effet, il est fort probable que celle-ci dépende de l'écart de fréquence en particulier dans des structures à BQs dans lesquelles les propriétés spectrales sont associées à la dispersion de leur taille.

5.2 Principe de la mesure

En considérant qu'on peut éliminer adiabatiquement les populations, ce qui est le cas dans un laser classe A, les équations d'évolution gouvernant les intensités I_1 et I_2 des deux modes propres dans un laser bi-fréquence prennent la forme [300] :

$$\frac{\delta I_1}{\delta t} = I_1[\alpha_1 - \beta_1 I_1 - \theta_{12} I_2], \quad (5.3a)$$

$$\text{et } \frac{\delta I_2}{\delta t} = I_2[\alpha_2 - \beta_2 I_2 - \theta_{21} I_1], \quad (5.3b)$$

où α_1 et α_2 sont les gains non-saturés moins les pertes (gains nets) de chaque mode. β et θ sont respectivement les coefficients d'auto-saturation et de saturation croisée. Les solutions en régime stationnaire $\delta I_i / \delta t = 0$ des deux équations couplées (5.3a,b), en considérant que les deux modes oscillent simultanément, sont :

$$I_1 = \frac{\alpha_1 / \beta_1 - K_{12} \alpha_2 / \beta_2}{1 - C}, \quad (5.4a)$$

$$\text{et } I_2 = \frac{\alpha_2 / \beta_2 - K_{21} \alpha_1 / \beta_1}{1 - C}, \quad (5.4b)$$

où K_{12} et K_{21} sont les rapports des termes de saturation croisée et d'auto-saturation:

$$K_{12} = \frac{\theta_{12}}{\beta_1}, \quad (5.5a)$$

$$K_{21} = \frac{\theta_{21}}{\beta_2}, \quad (5.5b)$$

et C est la constante de couplage de Lamb définie comme [25] :

$$C = \frac{\theta_{12}\theta_{21}}{\beta_1\beta_2} = K_{12}K_{21}. \quad (5.6)$$

Pour mesurer la constante de couplage C entre les deux états propres 1 et 2, nous choisissons de moduler légèrement le gain net α d'un des deux modes en introduisant des faibles pertes optiques sur celui-ci. Les intensités des deux modes, s'ils sont couplés, subissent donc une évolution par rapport à cette modulation. Ainsi, en introduisant des pertes optiques supplémentaires sur le mode extraordinaire (mode 2), nous déduisons à partir des équations (5.4a,b) et (5.5a,b), l'expression de K_{12} par rapport aux variations de I_1 et I_2 [285]:

$$K_{12} = -\frac{\delta I_1 / \delta \alpha_2}{\delta I_2 / \delta \alpha_2}. \quad (5.7a)$$

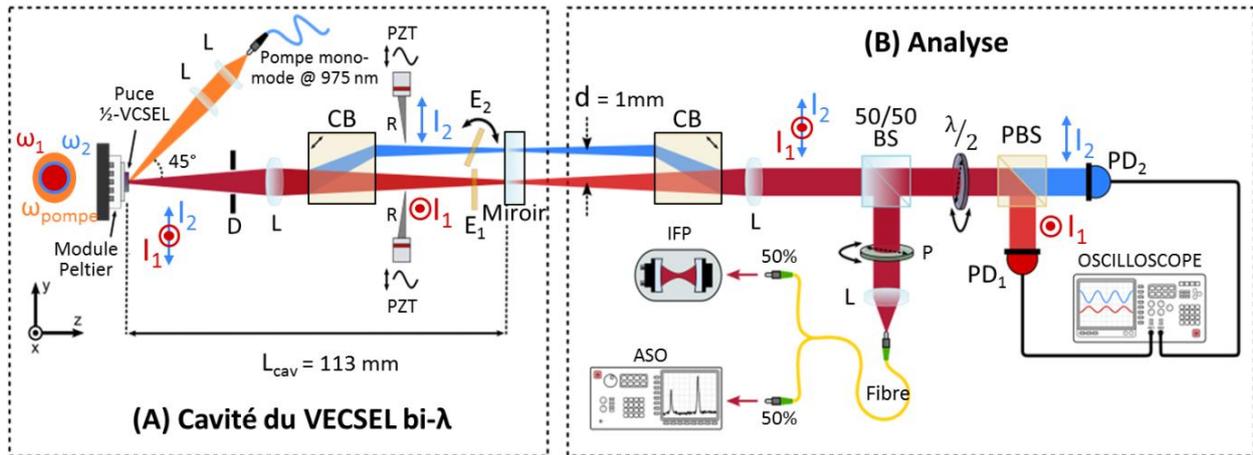
Réciproquement, K_{21} est obtenu en modulant les pertes sur le mode ordinaire (mode 1) :

$$K_{21} = -\frac{\delta I_2 / \delta \alpha_1}{\delta I_1 / \delta \alpha_1}. \quad (5.7b)$$

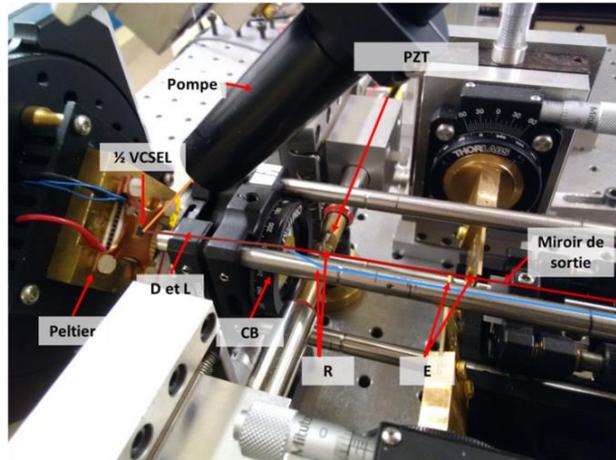
Ces solutions étant valables en régime stationnaire, la modulation des pertes optiques doit être de fréquence suffisamment faible devant les constantes de temps du laser, c'est-à-dire $\ll 1$ MHz.

5.3 Description et validation du dispositif expérimental

Le montage expérimental avec lequel la structure VECSEL est mesurée est illustré à la Figure 5.2(a), et la photographie de la cavité est présentée en (b). Il reprend le dispositif de pompage et de thermalisation du Chapitre 4. La température de fonctionnement est maintenue à 20°C par l'élément Peltier. Le montage, conçu lors de la thèse précédente de *Salvatore Pes*, a été optimisé et mis en exploitation lors de cette thèse. Il peut être décrit suivant deux parties : la partie (A) correspond à la cavité VECSEL à proprement parler alors que la partie (B) concerne l'analyse et la caractérisation du laser.



(a)



(b)

Figure 5.2 : (a) Montage expérimental pour la mesure de la constante de couplage. L : lentille, D : diaphragme, CB : cristal biréfringent d'YVO₄, PZT : actionneur piézo-électrique, R : lame de rasoir, E : étalon, BS : séparateur de faisceau, P : polariseur, IFP : interféromètre Fabry-Pérot, ASO : analyseur de spectre optique, λ/2 : lame demi-onde, PBS : séparateur de polarisation, PD : photodiode InGaAs. Les indices 1 et 2 font référence aux deux modes propres polarisés orthogonalement, respectivement le mode ordinaire et extraordinaire [301]. (b) Photographie de la cavité.

5.3.1 Conception de la cavité bi-fréquence pour la mesure du couplage

Dans le but de diminuer au maximum les pertes optiques, tous les éléments intracavité (à l'exception des étalons) sont traités antireflet à la longueur d'onde d'émission du VECSEL (1,54 μm). De plus, la très haute réflectivité du miroir de sortie (99,5 %) aide à l'obtention du régime bi-fréquence, dans la limite de la puissance de la diode de pompe et des seuils de dommage optique de la structure.

Dans un laser, la sélection de l'état de polarisation se fait sur plusieurs critères : le dichroïsme de gain et la présence de pertes sélectives. Généralement, dû à la compétition de gain, un état de polarisation préférentiel est défini. Grâce à l'introduction d'un cristal biréfringent, il est possible

d'obtenir une émission sur deux modes de polarisation linéaire et orthogonale car il lève la dégénérescence entre ces deux états propres.

5.3.1.1 Séparation spatiale des états propres de polarisation

Afin de séparer spatialement les deux états propres de polarisation dans la cavité, excepté sur le milieu actif où ils doivent se superposer parfaitement, un cristal biréfringent d' YVO_4 de 10 mm d'épaisseur e_{YVO_4} et coupé à 45° de son axe optique est inséré dans la cavité. La séparation spatiale d obtenue grâce à la double réfraction, dont le principe est illustré dans la Figure 5.3, est définie comme ceci :

$$d = e_{\text{YVO}_4} \times \tan(\Psi), \quad (5.8)$$

avec Ψ l'angle de déviation du mode extraordinaire dans le cristal.

$$\Psi = \Theta - \arctan\left(\frac{n_o^2}{n_e^2} \tan\Theta\right). \quad (5.9)$$

Dans ces conditions, $\Psi = 5,68^\circ$ et notre cristal de 10 mm d'épaisseur introduit donc une séparation spatiale d égale à 1 mm. Les deux états propres, initialement superposés, voient alors deux chemins différents dans la cavité, créant ainsi deux modes propres polarisés orthogonalement mais séparés spatialement. Le mode ordinaire, polarisé linéairement suivant la direction x , est noté mode 1 et son intensité est I_1 . Le mode extraordinaire, quant à lui polarisé linéairement suivant la direction y , est désigné en tant que mode 2, d'intensité I_2 . La diode de pompe est polarisée linéairement, et orientée à 45° par rapport à l'axe x afin d'assurer que les deux modes de polarisations croisées voient un pompage symétrique.

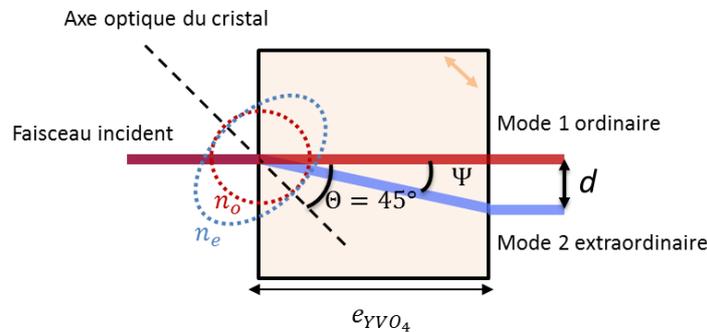


Figure 5.3 : Schéma de principe de la double réfraction du faisceau incident lorsqu'il traverse le cristal biréfringent, amenant à la séparation spatiale des deux états propres de polarisation.

A cause de la légère différence de chemin optique entre les deux bras du laser, le waist des deux modes propres orthogonaux sur la puce diffère très légèrement. Ils sont calculés à 30 et 31 μm pour le mode 1 et 2 respectivement, en utilisant les matrices ABCD pour la propagation de faisceaux gaussiens [302]. Rappelons que le spot de pompe est quasiment circulaire dans le milieu actif (demi-axes de 32 μm et 33 μm , partie 4.3). Ses dimensions assurent un gain suffisant pour les deux modes propres tout en favorisant l'oscillation TEM_{00} pour les deux modes. Comme les deux modes propres sont séparés sur le coupleur de sortie, il est nécessaire de refermer la cavité avec un miroir plan, pour remplir le critère de stabilité pour les deux modes à la fois. Une lentille intracavité doit alors être insérée dans ce résonateur plan-plan. Nous utilisons une lentille biconvexe en silice fondue de distance focale $f = 20$ mm. Elle est placée à 28 mm de la structure $\frac{1}{2}$ -VCSEL. Un diaphragme est aussi inséré entre la puce et la lentille intracavité, là où les modes sont toujours superposés, dans le but de filtrer un quelconque mode transverse d'ordre supérieur résiduel. De plus, ce diaphragme force le chevauchement parfait des deux modes sur le milieu actif. Cette configuration où la lentille est placée à 28 mm de la puce nous permet d'obtenir, pour un waist des modes autour de 30 μm , une longueur de cavité suffisante ($L_{cav} = 11,3$ cm) pour insérer les éléments intracavité nécessaires pour avoir à la fois le régime bi-fréquence, l'accordabilité en longueur d'onde et des pertes différentielles contrôlées afin de mesurer la constante de couplage.

5.3.1.2 Utilisation des étalons intracavité

Pour forcer l'oscillation monomode des deux modes propres de polarisations orthogonales, un étalon d'épaisseur $d_e = 100$ μm en silice fondue avec une réflectivité R de 30 % à $\lambda = 1550$ nm par face est inséré sur chacun des bras. Les deux étalons sont montés sur une platine de rotation qui, de surcroît, permet d'accorder indépendamment la longueur d'onde d'émission du mode propre correspondant. En effet, le fait de tourner l'étalon décale son pic de transmission maximal. La rotation de l'étalon permet d'accorder les deux modes sur l'ensemble du spectre de gain du laser. Outre les filtres spectraux, plusieurs méthodes existent pour accorder le décalage fréquentiel engendré par le cristal biréfringent, sans insertion d'autres éléments : la variation de la température du cristal (et donc de son épaisseur), de la longueur de cavité et de l'angle d'incidence entraînant une variation de quelques MHz à quelques GHz [231], [238]. Cependant, ces méthodes ne permettent qu'une accordabilité très limitée comparées aux étalons.

Les deux étalons sont insérés dans la cavité avec un petit angle d'incidence pour éviter toute résonance avec d'autres interfaces du résonateur principale qui provoquerait des sous-cavités.

5.3.1.3 Éléments pour la modulation des pertes intracavité

Deux lames de rasoir, montées sur des actionneurs piézo-électriques, eux-mêmes sur platines de translation micrométriques, viennent introduire des pertes (une fraction de pourcent) sur un bras de la cavité sans affecter l'autre (et vice versa). Une faible tension sinusoïdale de fréquence comprise entre 15 et 30 Hz est appliquée à un des deux actionneurs pour moduler légèrement l'intensité du mode propre correspondant autour de son état stationnaire. Nous voulons des déplacements des actionneurs très faibles, de l'ordre du μm , afin d'éviter toute modification du profil spatial des faisceaux. Or, les actionneurs piézo-électriques parcourent une distance de $0,6 \mu\text{m}/\text{V}$. C'est pourquoi nous gardons l'amplitude de la tension sinusoïdale inférieure à 1 V, et généralement autour de 0,1 V. Nous utilisons également les actionneurs, grâce à leur faible pas d'excursion, pour équilibrer les pertes et obtenir l'oscillation bi-fréquence.

5.3.2 Chaîne de détection et analyse de l'émission bi-fréquence

La partie (B) du montage expérimental (Figure 5.2(a)) est la partie permettant l'analyse du VECSEL. Elle inclut d'abord un second cristal biréfringent, identique au cristal intracavité, utilisé pour recombinaison spatiale des deux modes propres. Cela facilite l'injection des deux états propres du laser dans les équipements fibrés. Après la lentille de collimation et le séparateur de faisceau 50/50, la moitié du signal est injectée dans une fibre monomode pour la caractérisation spectrale : 50% du signal est ensuite envoyé dans un analyseur de spectre optique (ASO), et le reste dans un interféromètre de Fabry-Pérot (IFP), dont l'intervalle spectral libre est de 7 GHz. Ce dernier permet de contrôler si l'oscillation est bien monomode sur chaque bras du VECSEL et en particulier, de vérifier qu'il n'y a aucun saut de mode durant les mesures. Nous avons placé un polariseur linéaire devant ce système, permettant de choisir l'état propre de polarisation (ou les deux à la fois) à analyser spectralement. Durant les mesures, le polariseur est orienté à 45° pour observer les deux modes. L'autre composante du signal est envoyée sur un séparateur de polarisation (PBS), qui sépare les deux modes propres vers deux photodiodes balancées InGaAs. Plus précisément le mode ordinaire est réfléchi à 90° vers la photodiode 1 et le mode extraordinaire est transmis vers la photodiode 2. Ces deux photodiodes sont reliées à un oscilloscope numérique.

Une lame demi-onde est insérée devant le PBS pour des raisons d'étalonnage. En effet dans la partie suivante après avoir validé le montage, nous mesurerons le déséquilibre de gain/efficacité entre les deux bras, et nous le corrigerons.

5.3.2.1 Validation du montage expérimental pour l'oscillation bi-fréquence

Comme pour le montage de spectroscopie de saturation d'absorption du Chapitre 3, la puce VECSEL à puits quantiques sert également d'échantillon de référence pour la validation du montage expérimental. Le fonctionnement mono-fréquence de chacun des modes propres est ainsi confirmé par l'association du spectre de l'ASO et du spectre de l'IFP, montrés en Figure 5.4(a) et (b) respectivement, démontrant l'oscillation simultanée des modes propres ordinaire et extraordinaire, séparés de $\Delta\lambda = 8,38$ nm. De plus, ces deux modes sont bien superposés sur le $\frac{1}{2}$ -VCSEL, et donc séparés spatialement sur le coupleur de sortie ; ce que nous confirmons par la visualisation des deux spots sur une carte infrarouge à la sortie du VECSEL.

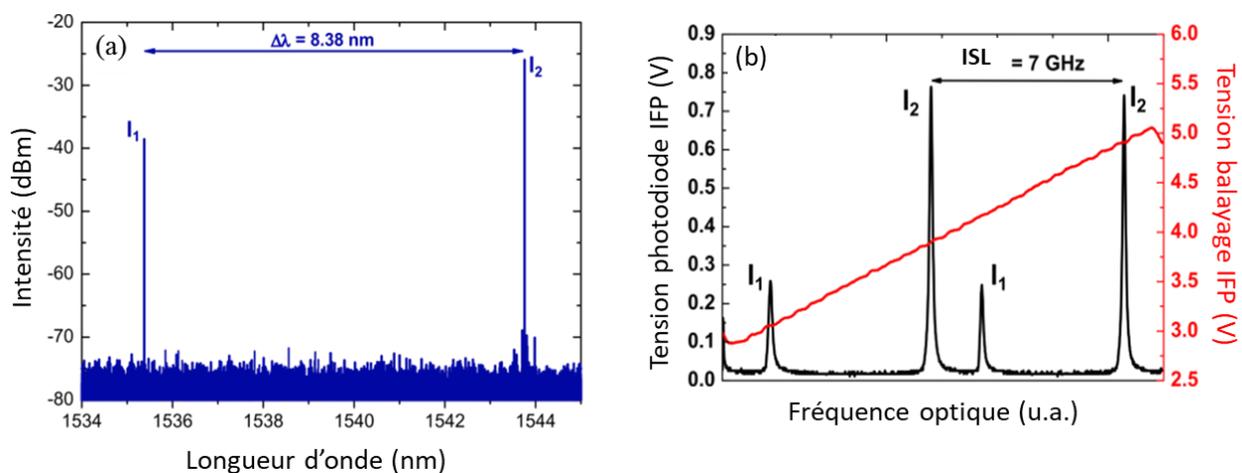


Figure 5.4 : (a) Spectre bi-fréquence acquis avec l'ASO, pour un écart spectral de 8,38 nm entre les états propres de polarisation. (b) Spectre bi-fréquence obtenu avec l'IFP.

Il est important de mentionner que l'oscillation simultanée des deux modes est atteinte grâce à un équilibrage minutieux des pertes optiques de chaque bras. Dans ce but, la position centrale de la lame de rasoir est ajustée à l'aide de la platine de translation grossièrement puis finement avec une tension continue appliquée sur les actionneurs piézo-électriques. Ce système introduit des pertes suffisantes au mode propre dominant afin de permettre à l'autre mode d'osciller simultanément. En effet il existe une dissymétrie de gain résiduelle, essentiellement déterminée par la contrainte naturelle dans la puce, la contrainte induite par la pompe et par l'écart de fréquence des deux modes propres.

Les fluctuations thermiques et les vibrations mécaniques peuvent perturber cet équilibre, résultant en la perte du régime bi-fréquence. Notre expérience n'étant pas complètement isolée de l'environnement extérieur, l'oscillation simultanée des deux modes propres dure de quelques minutes à quelques dizaines de minutes (dans les faits, jamais au-delà de 30 minutes), ce qui permet

tout de même une mesure précise de la constante de couplage. Cette observation est aussi une indication préliminaire que le couplage entre les deux états propres de polarisation est relativement fort (C proche de 1), comme prévu dans les milieux actifs à base de puits quantiques.

Ainsi nous avons réussi à démontrer qu'il était possible d'obtenir l'oscillation bi-fréquence alors que les deux modes partagent exactement la même zone du milieu actif. Le montage, dorénavant validé côté cavité, doit être à présent étalonné du côté de la détection pour la mesure de C , et en particulier de K_{12} et K_{21} .

5.3.2.2 Etalonnage de la chaîne de détection pour la mesure du couplage

La chaîne de détection doit être étalonnée, pour ne pas fausser les valeurs de K_{ij} . La mesure de C_0 n'est pas perturbée par un déséquilibre de la chaîne de détection, car le déséquilibre se compense en multipliant les taux de saturation croisée. La lame demi-onde placée devant le PBS permet de vérifier que l'efficacité de détection sur les deux bras est la même en tournant la lame de 45° , inversant les deux modes sur les photodiodes. Ainsi, nous pouvons vérifier si la puissance détectée est la même. Si ce n'est pas le cas, il faut tenir compte de ce déséquilibre dans la mesure de K_{12} et K_{21} . Nous profitons également de la présence des lames de rasoir pour éteindre l'un des deux modes lors de ces vérifications, ce qui permet de ne pas récolter le signal indésirable de ce mode.

La procédure d'étalonnage de la chaîne de détection se fait en considérant les quatre configurations suivantes illustrées en Figure 5.5.

- Cas A1 : polarisation ordinaire bloquée (1) et lame demi-onde à 0° .
- Cas A2 : polarisation ordinaire bloquée (1) et lame demi-onde à 45° .
- Cas B1 : polarisation extraordinaire bloquée (2) et lame demi-onde à 0° .
- Cas B2 : polarisation extraordinaire bloquée (2) et lame demi-onde à 45° .

Que ce soit pour A ou pour B, nous modifions avec la lame demi-onde le chemin du mode non-bloqué entre les situations 1 et 2. Dans la situation 1, le mode est ainsi détecté par sa photodiode dédiée, alors que dans la seconde situation, il est détecté par l'autre photodiode.

En mesurant les intensités perçues par les deux photodiodes dans les 4 cas, nous constatons un léger déséquilibre dans la chaîne de détection. En effet lorsque nous inversons les deux modes sur les photodiodes, nous mesurons un signal légèrement différent. Le rapport du signal des situations 1 sur le signal détecté dans les situations 2 se situe entre 1,07 et 1,12, peu importe le cas A ou B. Or, nous devrions obtenir un rapport de 1 pour une chaîne de détection équilibrée. Nous observons que cette

différence est due aux gains des photodiodes, qui sont légèrement différents : $G_1 = 3 \text{ mV}/\mu\text{W}$, alors que $G_2 = 2,7 \text{ mV}/\mu\text{W}$. Nous retrouvons donc bien le rapport précédemment mesuré. Ainsi, un facteur correctif est appliqué sur I_1 et I_2 lors des acquisitions. Cela permet, en outre, de compenser d'éventuelles dépendances de l'efficacité en fonction de la longueur d'onde.

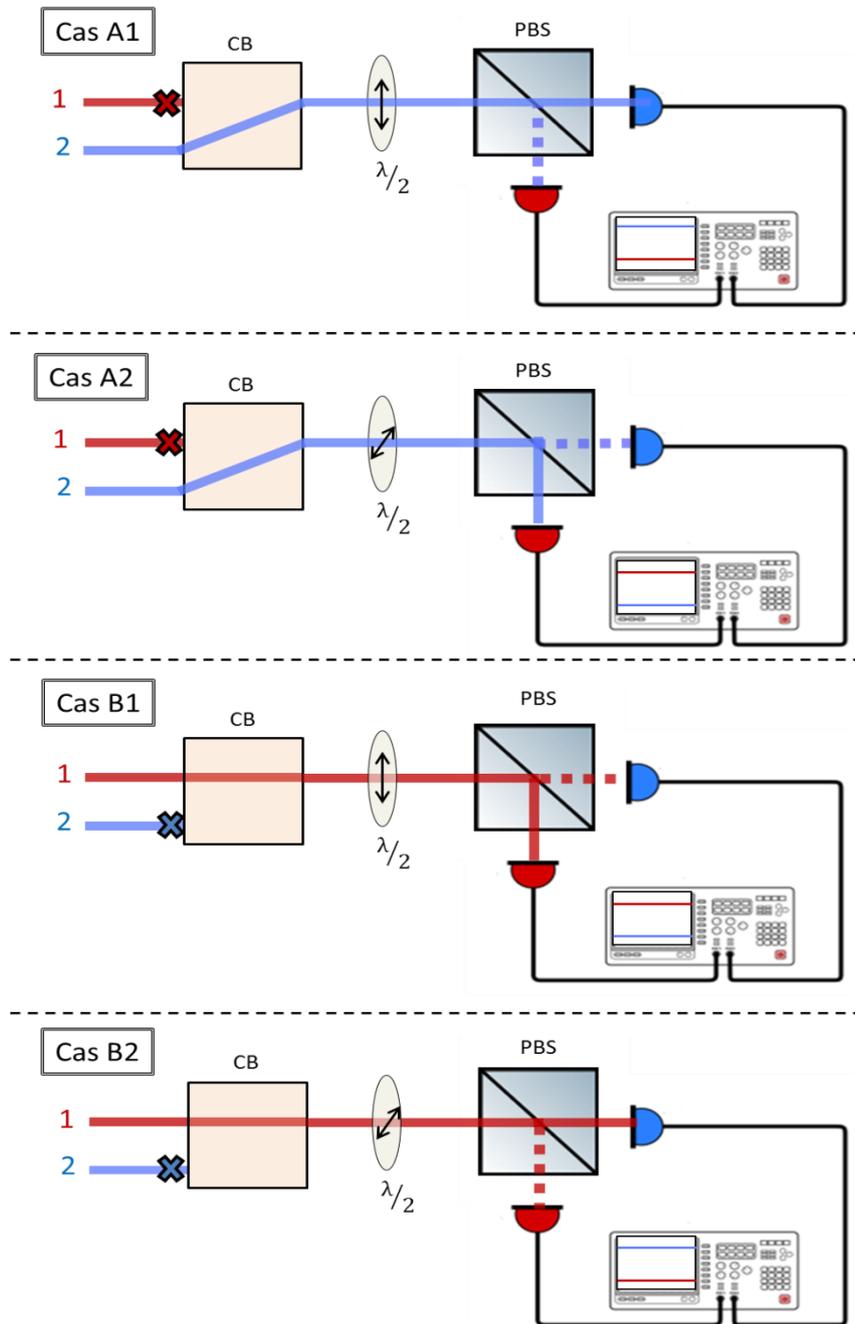


Figure 5.5 : Les différentes configurations permettant de vérifier l'étalonnage de la chaîne de détection. Les faisceaux en pointillés correspondent à une infime portion du signal.

Nous remarquons également dans les quatre cas qu'un signal résiduel très faible, inférieur à 1% du signal total, est détecté par la photodiode censée ne rien recevoir (représenté par des pointillés sur la figure). Ce problème provient du cube séparateur de polarisation qui laisse passer une infime

portion de la polarisation orthogonale sur chaque bras de détection. En considérant cette fraction de signal nous avons recalculé plusieurs valeurs des taux de saturation, qui varient alors de moins de 1,2% par rapport à leurs valeurs avant correction. De plus, le calcul de C_0 réduit l'écart relatif entre les valeurs brutes et corrigées à moins de 0,5%. Nous tiendrons tout de même compte de cette fraction dans la correction des données.

Une fois l'étalonnage terminé, nous positionnons la lame demi-onde de sorte que l'intensité du mode 1 soit perçue par la photodiode 1, et inversement pour le mode 2.

5.4 Couplage dans les VECSELS à base de puits quantiques

En premier lieu, nous avons utilisé cet échantillon provenant de l'EPFL pour étalonner et valider le montage expérimental. A présent que cette configuration où les deux états propres de polarisation sont superposés sur la puce est fonctionnelle, nous souhaitons mesurer la constante de couplage de Lamb. En effet, celle-ci n'a jamais été mesurée de manière directe, i.e. sans séparation spatiale. De plus, ce montage permet aussi d'accorder la longueur d'onde des deux états propres indépendamment, pour ainsi mesurer la dépendance spectrale du couplage [301].

5.4.1 Fonctionnement bi-fréquence

5.4.1.1 Caractéristiques du régime bi-fréquence

Comme décrit dans le Chapitre 4, sans les étalons le laser oscille naturellement en régime multimode longitudinal, à partir d'une puissance d'environ 200 mW, et émet une puissance totale de 14,7 mW pour une puissance de pompe incidente de 1050 mW.

L'insertion de deux étalons sur les deux bras de la cavité force le VECSEL à fonctionner en régime bi-fréquence. La puissance de sortie maximale diminue alors à 3,6 mW, tandis que la puissance de seuil augmente légèrement à 220 mW. Ces répercussions, visibles dans la Figure 5.6(a) sont assez prévisibles, car les étalons entraînent des pertes. De plus, le filtrage spectral contribue également à la réduction de la puissance. Les régimes spectraux monomode et multimode sont comparés dans la Figure 5.6(b) et (c).

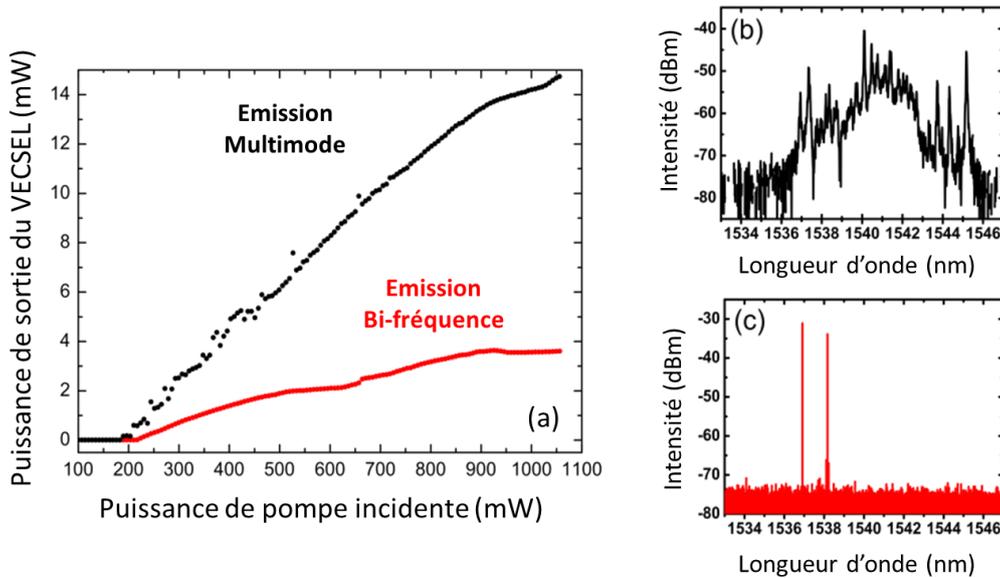


Figure 5.6 : Caractéristiques du VECSEL à PQS, (a) puissance de sortie en fonction de la puissance de pompe incidente en régime multimode (noir) et bi-fréquence (rouge). Spectres ASO en régime multimode (b) et bi-fréquence (c) [301].

5.4.1.2 Accordabilité du laser

En plus de rendre monomode chaque bras du laser, les étalons permettent d'ajuster la longueur d'onde des deux états propres de polarisation. Pour les mesures, en tournant l'étalon nous ajustons le mode 1 pour qu'il soit à la plus basse longueur d'onde possible, en limite spectrale du gain, afin de mesurer la constante de couplage sur le plus grand écart spectral possible entre les deux modes. Ce choix est fait car le mode 1 a tendance à osciller naturellement vers les basses longueurs d'onde en régime monomode. Ainsi il est fixé à 1535,4 nm. Notons que cette longueur d'onde peut varier de 0,2 nm lorsque nous modifions la longueur d'onde du deuxième mode. Quant au mode 2, il peut être accordé jusqu'à l'autre bord du spectre, à 1546,3 nm, comme le montre la Figure 5.7.

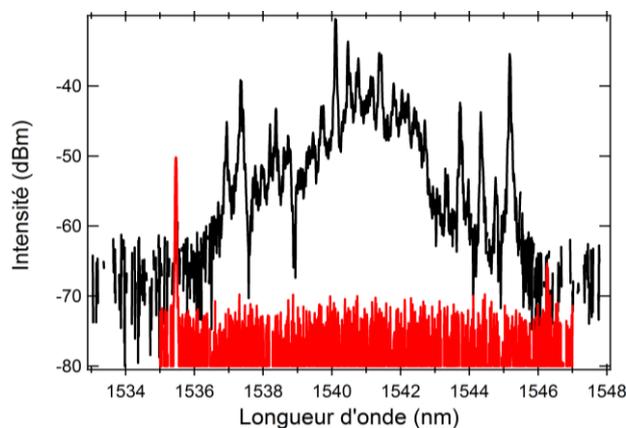


Figure 5.7 : Spectres acquis à l'ASO pour l'émission multimode (courbe noire) et pour l'émission bi-fréquence (courbe rouge) avec l'écart maximal en longueur d'onde obtenu.

Quelques spectres acquis à l'ASO sont présentés dans la Figure 5.8. La partie colorée en noire du spectre correspond au mode ordinaire 1 dont la longueur d'onde est fixée à $1535,4 \pm 0,2$ nm. La partie colorée en bleu correspond quant à elle au mode extraordinaire 2 dont la longueur d'onde est ajustée de 1535,6 nm à 1546,3 nm en tournant l'étalon E_2 .

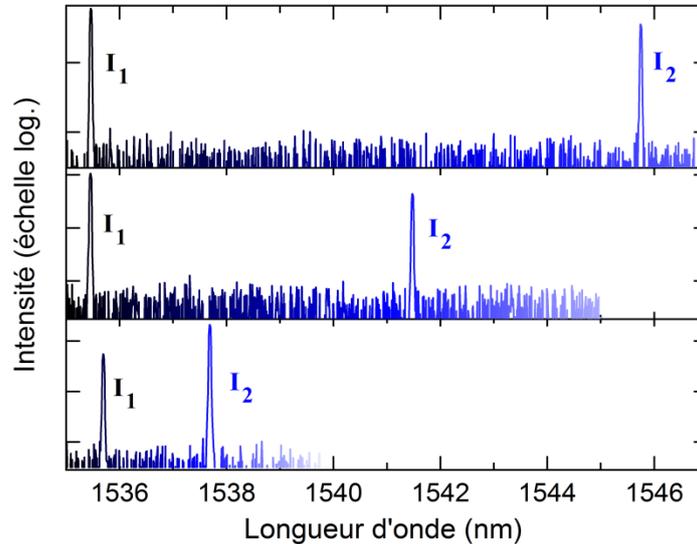


Figure 5.8 : Spectres d'émission du laser bi-fréquence illustré pour trois écarts spectraux différents : 2, 6 et 9,8 nm de bas en haut [301].

Nous pouvons ainsi accorder le mode 2 sur la plage spectrale la plus large possible. En pratique, l'écart spectral entre les deux modes obtenu débute à $\Delta\lambda = 0,36$ nm, et se prolonge jusqu'à $\Delta\lambda = 10,8$ nm.

5.4.2 Mesure de la constante de couplage et de sa dépendance spectrale

5.4.2.1 Méthode de mesure

La séparation spatiale, introduite par le cristal biréfringent d' YVO_4 , nous permet de moduler les pertes optiques d'un seul bras à la fois en modulant la position de la lame de rasoir, dont la position sans modulation est ajustée pour équilibrer les pertes et obtenir l'oscillation bi-fréquence. Durant toute l'expérience, l'amplitude de la modulation appliquée est faible, inférieure à 15%, dans le but d'éviter toute réponse non-linéaire ou modification du profil spatial des faisceaux. Les pertes sont modulées à 19 Hz, fréquence très faible comparée à la fréquence de coupure du laser de quelques MHz. Cela nous permet de considérer les solutions des équations d'évolution en régime stationnaire (5.4a et b).

La puissance de pompe incidente est fixée à 900 mW, correspondant à plus de quatre fois le seuil, c'est-à-dire un taux de pompage de 4,1. La puissance de sortie en continu (sans modulation des

pertes) de chaque mode varie de $40 \mu\text{W}$ à $600 \mu\text{W}$, en fonction de la longueur d'onde du mode accordé et des pertes introduites par les lames de rasoir sur l'autre mode pour obtenir l'émission bi-fréquence. La Figure 5.9(a) et (b) montre des traces temporelles typiques de I_1 et I_2 . Leurs modulations sont bien en antiphasse.

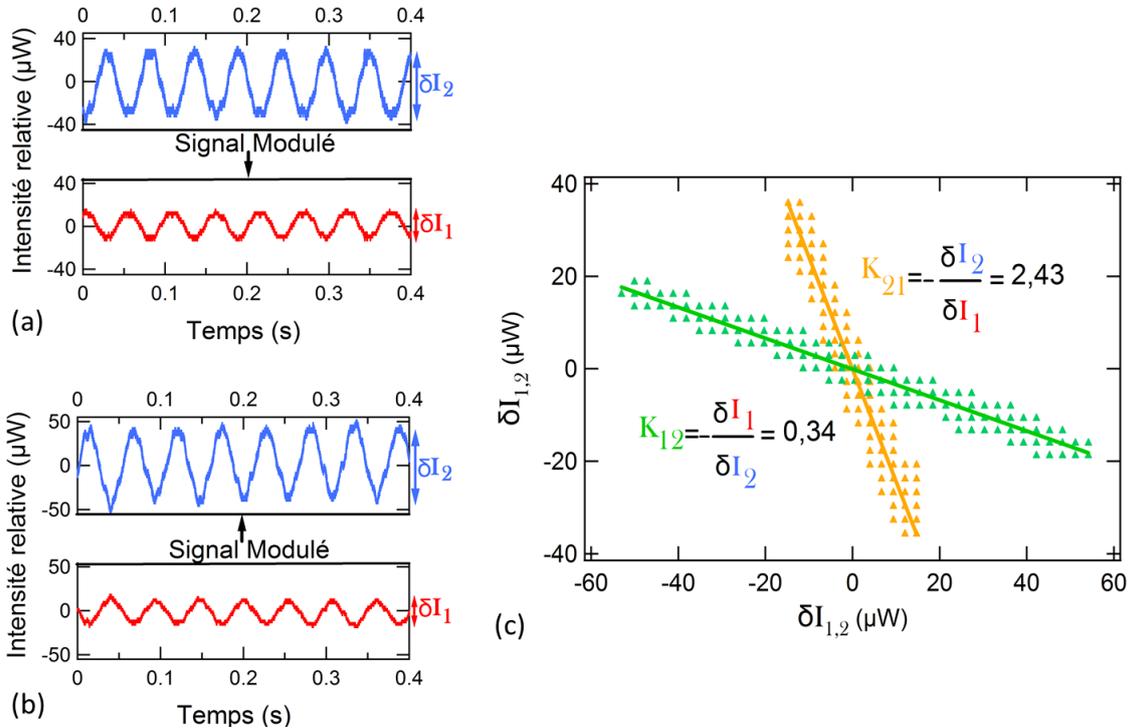


Figure 5.9 : Evolution du niveau relatif de I_1 et I_2 observés à l'oscilloscope lorsque la modulation des pertes est appliquée (a) sur le mode 1 ou (b) sur le mode 2, pour un écart spectral de 2 nm. (c) Intensité relative du mode modulé indirectement en fonction de l'intensité relative du mode modulé directement ($\delta I_{1,2}$). La valeur de chaque pente mène au K respectif [301].

En traçant le signal modulé indirectement en fonction du signal modulé directement par la lame de rasoir, les taux de saturation croisée respectifs K_{12} et K_{21} sont donnés directement par les pentes (Figure 5.9(c)), à partir desquels la constante de couplage C_0 est calculée. Dans cette illustration, une constante de couplage de 0,83 est mesurée pour une différence de fréquence $\Delta\lambda$ entre les deux modes de 2 nm. Il est à noter que les pentes K_{12} et K_{21} restent constantes au sein de la plage de puissance possible de I_1 et I_2 . Par conséquent, ni K_{12} ni K_{21} ne dépendent du point de fonctionnement du laser, dans la limite du taux de pompage accessible expérimentalement. La constante de couplage est ensuite calculée à partir du produit de ces deux pentes.

5.4.2.2 Mesures pour différents écarts spectraux

Nous reportons ici les mesures obtenues pour 15 $\Delta\lambda$ différents, allant de 0,36 nm à 10,8 nm. Au-delà de 10,8 nm, les bords du spectre de gain sont quasiment atteints (voir la Figure 5.7(b) pour

rappel). Pour ces $\Delta\lambda$, nous avons mesuré les taux de saturation croisée. Nous remarquons qu'ils évoluent tous deux en opposition, et dépendent de l'écart spectral. De plus, K_{21} est toujours supérieur à K_{12} , comme le montre la Figure 5.10,

$$1,93 < K_{21} < 2,81$$

$$0,29 < K_{12} < 0,44$$

K_{21} est toujours au moins 4,3 fois plus grand que le K_{12} correspondant. D'ailleurs, le même comportement est observé lorsque les longueurs d'onde du mode 1 et 2 sont permutées, prouvant que la dissymétrie constatée n'est pas gouvernée par le mode de plus haut niveau d'énergie.

A ce stade, nous n'avons toujours pas trouvé l'origine de cette importante dissymétrie entre K_{12} et K_{21} , des études plus poussées sont nécessaires pour la comprendre. Par ailleurs, les développements théoriques présentés dans les références [303] et [108] pourraient apporter des éléments de compréhension ; mais elles n'arrivent actuellement pas à prédire une si grande dissymétrie au regard de nos conditions expérimentales.

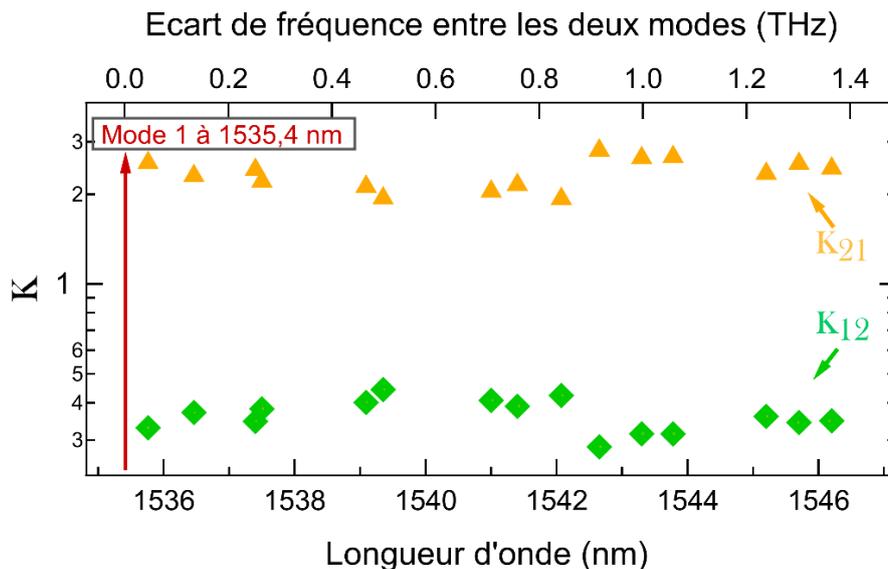


Figure 5.10 : Evolution des deux taux de saturation croisée, en fonction de la longueur d'onde du mode 2 et de leur écart fréquentiel. La longueur d'onde du mode 1 est fixée à $1535,4 \pm 0,2$ nm [301].

A partir de ces taux de saturation croisée nous calculons la constante de couplage en fonction de $\Delta\lambda$. Les résultats sont présentés à la Figure 5.11. Il s'avère que pour des différences de longueur d'onde allant de 0,36 nm à 10,8 nm, la constante de couplage de Lamb est bien une constante dans le cas des structures à PQs, avec une très faible dispersion et cela indépendamment des variations de K_{12} et K_{21} en fonction de l'écart spectral, menant à une valeur moyenne de 0,839. Cette constante est très proche de la valeur rapportée dans la référence [19] par extrapolation, en dépit de la nature

différente du milieu actif : GaAs dans la référence contre InP dans cette étude. A première vue, nous pouvons penser que cette constante est liée principalement au design du milieu actif (PQ) plutôt qu'à la nature du matériau même. Nous pouvons aussi penser que la robustesse d'un tel dispositif bi-fréquence devrait être accrue en utilisant un milieu à gain de nature différente qui réduit la constante de couplage de Lamb. Par exemple, les boîtes quantiques semiconductrices possèdent des caractéristiques spectrales très différentes des PQs, et plus particulièrement des élargissements homogène et inhomogène différents, et un gain plus large spectralement. Des couches actives de BQs peuvent être très prometteuses pour les lasers bi-fréquences en matière de robustesse de l'oscillation comme laissent l'entendre les prédictions théoriques de la référence [108], et l'étude réalisée au Chapitre 3. En effet, nous avons vu que les BQs étaient bien les structures les moins couplées à température ambiante, comparées aux PQs et BatQs, avec une nette différence en ce qui concerne le couplage électronique, néanmoins pour un couplage photonique similaire.

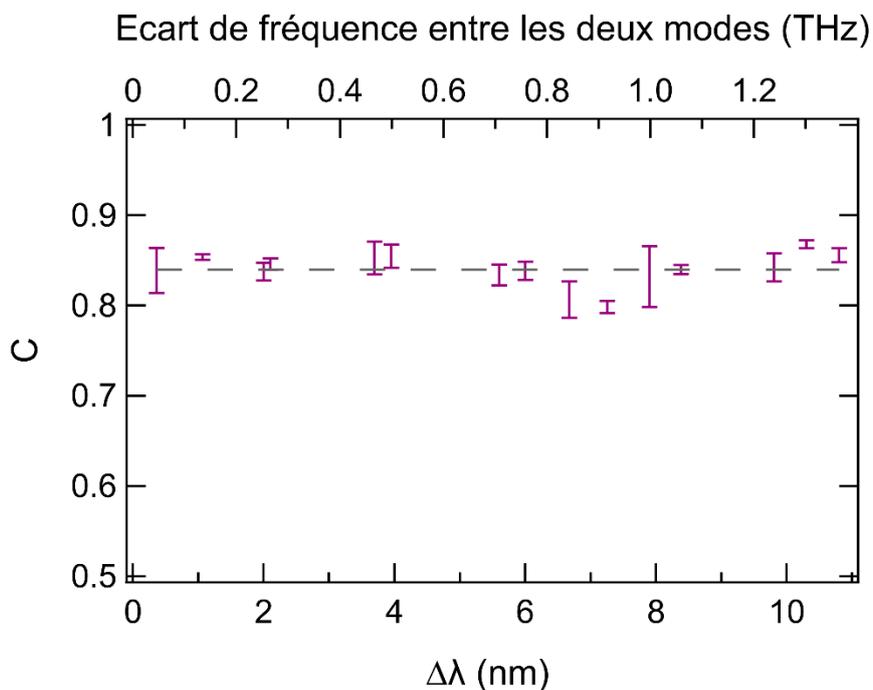


Figure 5.11 : Evolution de la constante de couplage de Lamb mesurée sur un VECSEL à PQs, en fonction de l'écart spectral et fréquentiel entre les deux modes. Les barres d'erreur représentent l'écart type de toutes les valeurs mesurées pour l'écart spectral correspondant. La ligne pointillée grise correspond à $C_0 = 0,84$ [301].

5.4.3 Etude statistique

L'utilisation de Labview pour l'acquisition des données et leur sauvegarde automatique permet de réaliser un grand nombre de mesures rapidement, avec un temps d'acquisition inférieur à la seconde, permettant de palier la faible robustesse de l'oscillation bi-fréquence. Ainsi, nous avons

obtenu 892 courbes brutes appairées, et donc 446 mesures de K_{ij} , parmi lesquelles certaines ne sont pas exploitables. Pour effectuer un tri efficace, rapide et conforme à nos critères que nous détaillerons par la suite, nous utilisons un programme écrit sous Python. Finalement, nous avons obtenu 168 valeurs pour la constante de couplage, et pour 15 écarts spectraux différents entre les deux états propres de polarisation, soit environ 10 valeurs par $\Delta\lambda$.

5.4.3.1 Tri des données et méthodes de calcul alternatives

Le programme Python permet avant tout de trier les données par amplitude de modulation, qui doit rester la plus faible possible dans le but d'éviter toute modification du profil spatial des faisceaux. Pour cela, le taux de modulation TM est calculé après avoir effectué un ajustement par une fonction sinusoidale :

$$TM = \frac{V_{max} - V_{min}}{V_{max} + V_{min}}. \quad (5.10)$$

Nous choisissons de conserver avec le programme, donc pour un premier tri, les courbes pour des taux de modulation inférieurs à 30%. L'ajustement permet également de ne pas prendre les acquisitions ratées : la modulation des pertes étant une fonction sinusoidale, la forme des intensités modulées doit elle-même être une sinusoïde pour rester dans l'approximation linéaire. Avant de choisir la méthode retenue expliquée dans la partie précédente, 4 manières de calculer les taux de saturation croisée ont été comparées (pour rappel, nous avons $K_{12} = -\delta I_1/\delta I_2$ et $K_{21} = -\delta I_2/\delta I_1$) :

- Prendre la pente (méthode retenue).
- Utiliser les amplitudes des deux fonctions sinus ajustées théoriquement. Cette méthode présente cependant des incertitudes quant à l'ajustement des données à la fonction sinusoidale.

Détecter les minima et les maxima de :

- la courbe de données brutes. Quand les courbes sont bruitées le résultat est faussé.
- la courbe lissée par transformée de Fourier. Le problème précédent persiste, mais dans une moindre mesure.

La méthode de la pente est retenue, car c'est elle qui présente la plus faible incertitude. Les incertitudes d'ajustement sont très faibles même quand les mesures sont légèrement bruitées. Elles valent en moyenne $\pm 0,001$. L'écart relatif des valeurs de C_0 avec les méthodes de l'amplitude de

l'ajustement par un sinus et des courbes lissées est exactement le même. Il vaut au maximum 5% et en moyenne 2%. Cependant la 3^e méthode peut donner des écarts relatifs de 20% et en moyenne de 8%.

Après n'avoir sélectionné que les courbes appairées de forme sinusoïdale avec des taux de modulation inférieurs à 30%, les taux de saturation croisée sont enregistrés dans un tableur dans l'ordre chronologique avec leurs deux taux de modulation, leur valeur pour les quatre méthodes et leur incertitude. Un second tri, manuel cette fois, permettant de vérifier l'allure des intensités modulées, est effectué pour sélectionner les taux de modulation avec une tolérance de 15%. Enfin le calcul de C_0 est effectué en multipliant les deux taux de saturation croisée, acquis chacun dans un laps de temps court (< 2 minutes), pour chaque $\Delta\lambda$.

5.4.3.2 Résultat de l'étude statistique

Nous avons ainsi acquis un nombre de mesures représentatif statistiquement pour nous assurer de la précision de la mesure de la constante de couplage. En ce sens, nous avons acquis un total de 168 valeurs avec approximativement 10 valeurs par $\Delta\lambda$. L'écart type associé est donné par les barres d'erreur de la Figure 5.11, mettant en relief la précision de chaque mesure. La Figure 5.12 représente la dispersion des valeurs de C_0 , sans tenir compte de la différence de longueur d'onde entre les modes propres, arrangées en intervalles égaux de 0,01. Les 168 valeurs se concentrent autour de 0,84 quel que soit l'écart spectral. L'écart type total est ainsi de 0,02. Il est relativement faible, ce qui montre que la constante de couplage de Lamb ne dépend pas de $\Delta\lambda$ sur cet intervalle spectral. Finalement, nous avons $C_0 = 0,84 \pm 0,02$.

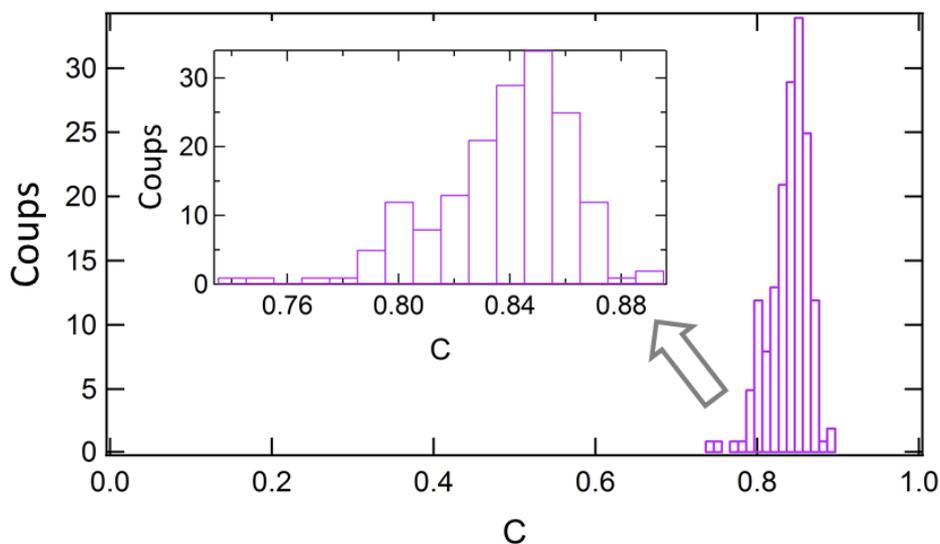


Figure 5.12 : Histogramme des valeurs de C_0 sans distinction de l'écart spectral, avec des intervalles égaux de 0,01.

5.4.4 Discussion des résultats

Pour conclure, nous avons réussi à mesurer directement la constante de couplage de Lamb dans un VECSEL à PQs pompé optiquement, et émettant autour de 1540 nm. Nous avons minutieusement élaboré la cavité laser pour assurer l'émission simultanée des deux modes partageant la même région de la zone active mais suffisamment séparés dans le reste de la cavité pour accorder indépendamment leur longueur d'onde. Cela nous a permis de mesurer également la dépendance spectrale de la constante de couplage à travers les rapports de la saturation croisée et de l'auto-saturation K_{12} et K_{21} pour une différence spectrale allant de : 0,36 nm à 10,8 nm, i. e. 45 GHz à 1,35 THz, i. e. 0,186 meV à 5,583 meV.

Pour revenir sur la largeur homogène des puits quantiques à température ambiante, qui devrait être entre 5 et 7 meV, nous remarquons que l'intervalle spectral ne dépasse pas cette valeur. Nous pouvons nous questionner si pour un écart en énergie/longueur d'onde supérieur à la largeur homogène, le couplage entre les deux modes reste constant. Il pourrait diminuer mais nous ne pouvons pas le vérifier expérimentalement dans ce VECSEL, car nous sommes limités par la largeur spectrale du gain. Ainsi le fonctionnement bi-fréquence est possible ici, jusqu'à 1,35 THz avec une accordabilité continue. Nous avons trouvé que K_{21} est toujours au moins 4,3 fois plus grand que K_{12} , et leurs valeurs varient en fonction de $\Delta\lambda$. En dépit de cela, leur produit C_0 reste constant et $C_0 = 0,84 \pm 0,02$.

En perspective, l'origine de la différence significative entre les deux taux de saturation pourrait être explorée. De plus, nous souhaitons mesurer C_0 dans le laser à BQs lorsque le problème de gestion thermique sera réglé, afin de vérifier que la constante de couplage est plus faible dans ce milieu actif. En effet les BQs possèdent des caractéristiques d'élargissements homogènes et surtout de couplage électronique (relative indépendance des BQs) différentes comparées aux PQs [91]. Par ailleurs nous souhaitons mesurer la dépendance spectrale de C_0 sur de plus grandes plages spectrales afin d'aller au-delà de la largeur homogène. Les BQs possèdent à cet égard des gains plus larges spectralement. Enfin nous voulons trouver s'il existe une relation simple entre la constante de couplage et les mesures de spectroscopie de saturation d'absorption.

Conclusion et perspectives

Récapitulatif des principaux résultats

Ce manuscrit, intitulé « Etude des boîtes quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL bi-fréquence cohérent », présente les résultats obtenus dans le cadre de mes travaux de thèse effectués à l'institut FOTON, conjointement dans les équipes OHM et DOP. Ces travaux ont été effectués dans le contexte d'un contrat de recherche ANR PRCI collaboratif et international, nommé IDYLIC (Investigation of quantum Dots within electrically excited vertical and external cavity surface emitting Lasers for the realization of a Coherent and compact dual wavelength laser), impliquant l'Institut FOTON (les deux équipes OHM et DOP), l'IES et le laboratoire LPN de l'EPFL à Lausanne (Suisse). L'objectif de cette ANR, est de développer une nouvelle plateforme de lasers de type VECSEL, intégrant des BQs InAs/InP émettant à 1,55 μm , pouvant permettre la réalisation de lasers bi-fréquences robustes et accordables. L'objectif de ma thèse était donc de contribuer à la réussite de cet objectif, qui n'avait jamais été encore réalisé, en apportant des éléments expérimentaux permettant de lier les performances du laser bi-fréquence aux spécificités structurales et physiques des BQs. Autrement dit, de répondre aux questions suivantes :

- Est-il possible de réaliser un VECSEL bi-fréquence à BQs ?
- Un laser bi-fréquence à BQs est-il plus robuste qu'un laser bi-fréquence à PQs ?
- Pouvons-nous influencer la robustesse d'un VECSEL bi-fréquence à BQs ?

Dans le Chapitre **1**, nous avons dressé l'état de l'art et donc le positionnement de notre structure VECSEL. Nous avons ainsi pu mettre en avant tout l'intérêt d'une architecture de type VECSEL intégrant une zone active à semiconducteurs, dans l'optique de réaliser un laser bénéficiant d'une part d'un faible bruit d'intensité inhérent à la dynamique de classe A de ce type de laser, mais aussi d'une faible largeur de raie ; ces deux points étant critiques dans la réalisation d'un battement de grande pureté spectrale. Nous avons également présenté de récentes publications montrant qu'il était possible de réaliser des lasers bi-fréquences à BQs en exploitant leur gain inhomogène [20], [21]. Toutefois les uniques démonstrations expérimentales s'avèrent être limitées aux lasers à émission par la tranche, et à ce jour aucune démonstration d'un laser bi-fréquence n'a été faite en intégrant des BQs dans une cavité VECSEL.

Dans le Chapitre 2, nous avons réalisé une étude de la croissance des BQs afin de maîtriser leurs paramètres de croissance en fonction des propriétés optiques et structurales voulues, susceptibles d’être plus favorables à la fabrication du VECSEL bi-fréquence. Nous avons ainsi montré que par le contrôle à la fois du débit d’AsH₃ et de la quantité nominale d’InAs, nous contrôlons la densité de $1,31 \cdot 10^{10}$ à $1,32 \cdot 10^{11}$ BQs/cm². Cette maîtrise de la densité permet ainsi de bénéficier d’un paramètre expérimental permettant de contrôler la distance moyenne entre BQs d’une trentaine de nm à plus de 120 nm, et par ce biais le couplage électronique. L’étude des propriétés optiques de PL a montré qu’il n’y a pas de perte de rendement (sauf à 13 sccm), donc pas de détérioration du matériau. De plus, les longueurs d’onde d’émission des BQs passent de 1,45 à 1,9 μm lorsque la densité des BQs diminue. Grâce au DC [132], nous avons tout de même pu ramener la PL des BQs à une longueur de 1550 nm, tout en réduisant l’élargissement inhomogène. A l’issue de cette étude, et dans l’optique de voir l’effet du couplage électronique, nous avons retenu les conditions suivantes :

Type de BQs	Débit d’AsH ₃	Quantité d’InAs	Densité	Distance entre BQs	Longueur d’onde	Largeur à mi-hauteur
BQs forte densité	1 sccm	2 MC	$9,58 \cdot 10^{10}$ cm ⁻²	30 nm	1510 nm	65 meV
BQs faible densité	5 sccm	2 MC	$4,46 \cdot 10^{10}$ cm ⁻²	63 nm	1520 nm	80 meV

Tableau C.1 : Caractéristiques après DC des BQs en forte et faible densité.

Pour la réalisation d’un premier dispositif, nous avons choisi un flux d’arsine de 1 sccm et une épaisseur de 2 MC d’InAs pour la croissance des BQs. Nous avons ensuite réalisé l’empilement de 20 plans de BQs pour former la zone active du laser.

Dans le Chapitre 3, nous avons étudié et sondé en fonction de la température (de 77K à température ambiante) l’élargissement homogène des nanostructures semiconductrices dans le but de déterminer les propriétés de cet élargissement, auquel est lié le couplage photonique, et également de mettre en évidence le couplage électronique lorsqu’il existe. Un montage expérimental a été mis en place en conséquence, permettant de faire des mesures de 77K à 300K (et plus), et sur une plage de longueur d’onde de 1100 à 1610 nm, grâce à l’utilisation d’un système de sonde composé d’un OPO, d’un monochromateur et d’un SLM. Trois structures ont été testées. La première est un empilement de 12 PQs, servant notamment à l’étalonnage du montage. Une absorption et un élargissement

homogène en fonction de la température correspondant à la littérature sont bien retrouvés [174], [177]. La deuxième et la troisième structure sont des empilements de 20 plans de bâtonnets quantiques et de BQs en haute densité (selon les indications précédentes). Afin de quantifier et/ou qualifier les deux types de couplage opérant dans nos nanostructures et pouvant impacter l'oscillation bi-fréquence, nous avons employé la spectroscopie de saturation d'absorption en continu. Dans le cas des BatQs, le couplage électronique a été mis en évidence dès 77K, car ils sont plus proches les uns des autres que les BQs, et le temps de transfert des porteurs entre BatQs est plus court de deux ordres de grandeur. Cette différence au niveau du temps de transfert tend cependant à être gommée par le confinement plus faible des porteurs dans les BQs. Egalement amplifié par la température, le couplage électronique finit par recouvrir totalement la réponse homogène des BatQs à partir de 140K. Dans le cas des BQs, peu de couplage électronique a été mis en évidence à très basse température ; et leur réponse homogène est masquée à partir de 150 K. Cependant à température ambiante, les BQs démontrent tout de même un couplage électronique plus faible avec une réponse différente du spectre de SHB en fonction de la longueur d'onde : une portion des porteurs résonants reste dans leur boîte. Les BQs restent donc sur toute la gamme de température les structures les moins couplées électroniquement. Quant au couplage photonique, à basse température, nous avons mesuré avec une faible incertitude la largeur homogène des deux types de nanostructures. A température ambiante, nous avons extrapolé sa valeur. Les valeurs de la largeur homogène sont regroupées dans le Tableau C.2.

Température	Largeur homogène des BatQs	Largeur homogène des BQs
77 K	$0,86 \pm 0,06$ meV	$0,68 \pm 0,02$ meV
295 K	$\sim 6,7$ meV	$\sim 6,4$ meV

Tableau C.2 : Largeur homogène des BQs et des BatQs, mesurée à 77 K et extrapolée à température ambiante.

Avec ces valeurs, nous voyons que les BQs présentent une largeur homogène plus faible, que l'on peut attribuer à un couplage plus faible à 77 K. Elles sont indéniablement moins couplées à 77K, et les mesures en fonction de la température prouvent qu'elles le restent. Néanmoins la différence entre les deux types de structures n'est plus très marquée à température ambiante. Nous avons ainsi conclu que les BQs étaient assurément moins couplées électroniquement que les BatQs et les PQs (car milieu homogène), et potentiellement moins couplées photoniquement que les BatQs, même à

température ambiante. Les BQs sont donc le meilleur choix de structure semiconductrice pour limiter la compétition entre les modes oscillant dans une même cavité laser.

Dans le Chapitre 4, nous avons présenté l'architecture VECSEL et son état de l'art. Lié au faible gain des BQs, moins de résultats sont rapportés sur les VECSELS à BQs, qui d'ailleurs sont uniquement crûes sur substrat GaAs, et par conséquent émettent à des longueurs d'onde inférieures à 1,3 μm . A ce jour aucune démonstration à 1,55 μm de VECSELS à BQs n'avait été rapportée. Dans ce chapitre, nous avons présenté les structures VECSELS émettant à 1,55 μm qui ont été réalisées et intégrant un DBR AlAs/GaAs réalisé selon la technique de fusion de plaque, au sein du réseau du projet ANR IDYLIC. Nous avons par la suite testé et qualifié ces deux structures pour le fonctionnement bi-fréquence. La première structure est un $\frac{1}{2}$ -VCSEL à PQs. En régime multimode, le laser a une puissance incidente de seuil à 200 mW et sa puissance totale émise atteint 14,7 mW. En régime bi-fréquence la puissance de sortie maximale diminue alors à 3,6 mW, tandis que la puissance de seuil augmente légèrement à 220 mW. La seconde structure est une puce $\frac{1}{2}$ -VCSEL intégrant les 20 plans de BQs présentés au chapitre 3. Une attention toute particulière a été apportée à la gestion thermique de cette structure, en intégrant un diamant intracavité. Cette structure a permis de démontrer une émission laser jusqu'à 1,54 μm en régime multimode, et de très bonnes performances, avec une forte puissance de sortie (2,2 W) et une très large accordabilité (60 nm) [281], ce qui constitue la toute première démonstration d'un VECSEL à BQs à 1,5 μm . Ce résultat atteste des bonnes propriétés optiques de ces BQs. Au moment de la rédaction de ce manuscrit, aucune expérimentation en régime bi-fréquence n'a pu être encore réalisée, les contraintes liées à la préhension du diamant sur l'échantillon nécessitant des modifications mécaniques du support échantillon.

Enfin dans le Chapitre 5, nous avons présenté un montage expérimental ayant été intégralement conçu en vue de pouvoir mesurer directement la constante de couplage de Lamb C_0 d'un laser bi-fréquence. Nous avons rappelé dans un premier temps le principe de la mesure de la constante de couplage par l'introduction de faibles pertes optiques sur un des deux modes. Le montage expérimental a ensuite été testé par la mesure de C_0 dans le VECSEL à PQs. Nous avons minutieusement élaboré la cavité laser pour assurer l'émission simultanée des deux modes partageant la même région de la zone active mais suffisamment séparés dans le reste de la cavité pour accorder indépendamment leur longueur d'onde. Nous avons ainsi obtenu une oscillation bi-fréquence uni-axiale dans le milieu actif, et nous avons mesuré $C_0 = 0,84$, qui est d'ailleurs très proche de la valeur rapportée dans la référence [19], par extrapolation de plusieurs mesures à

différentes séparations spatiales dans le milieu actif. Le montage nous a également permis de mesurer la dépendance spectrale de la constante de couplage à travers les rapports de la saturation croisée et de l'auto-saturation K_{12} et K_{21} pour une différence spectrale allant de : 0,36 nm à 10,8 nm, i. e. 45 GHz à 1,35 THz, i. e. 0,186 meV à 5,583 meV. Nous avons trouvé que K_{21} est toujours au moins 4,3 fois plus grand que K_{12} , et leurs valeurs varient en fonction de $\Delta\lambda$. En dépit de cela, leur produit C_0 reste constant et est assez élevé, comme anticipé dans ce type de zone active : $C_0 = 0,84 \pm 0,02$. L'insertion de la puce VECSEL à BQs dans ce montage est en cours pour la mesure de C .

Perspectives

Les différentes études menées dans ce travail de thèse ouvrent chacune la voie à de nouvelles perspectives. En priorité, nous comptons mesurer la constante de couplage dans le VECSEL à BQs. L'équipe de Tampere nous ayant prêté leur ensemble puce VECSEL - diamant intracavité décrit dans le Chapitre 4, nous projetons ainsi dans les plus brefs délais de faire osciller la puce dans la cavité plan-plan, puis en régime bi-fréquence en ajoutant le cristal biréfringent et les étalons. Nous souhaitons mesurer C_0 dans le laser à BQs afin de vérifier que la constante de couplage est plus faible dans ce milieu actif, et que, grâce au gain des BQs plus large spectralement que celui des PQs, C_0 diminue lorsque l'écart spectral est supérieur à la largeur homogène.

Par rapport au second chapitre, nous avons choisi, faute de temps, une seule combinaison de paramètres de croissance parmi les deux optimisées ; la seconde option amenant à une densité de BQs deux fois plus faible ($4,46 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) est tout de même à explorer car plus intéressante vis-à-vis du couplage. Nous souhaitons ainsi croître un empilement de 20 plans de BQs à faible densité et voir l'effet de cette diminution de la densité, dans un premier temps sur les mesures de spectroscopie de saturation d'absorption, et dans un second temps sur C , après avoir intégré cet empilement dans une structure VECSEL. Cela nous permettrait de comparer les effets du couplage électronique à couplage photonique constant. Lié à cette perspective, nous voulons trouver s'il existe une relation simple entre la constante de couplage et les mesures de spectroscopie de saturation en régime de gain.

A plus long terme, nous envisageons de réaliser le photomélange des deux modes du VECSEL bi-fréquence sur une photodiode ultra-rapide, pour ainsi voir la qualité spectrale du battement THz, et notamment de mesurer sa largeur de raie. Pour aller plus loin, nous considérons la possibilité de concevoir un VECSEL bi-fréquence à BQs en pompage électrique, mais qui requiert des études conséquentes du point de vue technologique.

Annexe 1 : L'épitaxie par jets moléculaires

L'élaboration de nos nanostructures se fait par épitaxie par jets moléculaires (MBE – pour Molecular Beam Epitaxy). Conçue à la fin des années 50 par K. G. Günther [304] puis développée dans les années 70 par A. Cho et J. Arthur aux laboratoires Bell [305] grâce à l'essor des techniques de l'ultravide, il s'agit d'une technique de croissance contrôlée de couches monocristallines sur un substrat lui aussi monocristallin. La croissance se fait par l'interaction des flux atomiques ou moléculaires issus de sources solides (par sublimation ou évaporation) ou gazeuses à la surface du substrat. Nécessitant des surfaces non polluées par des impuretés superficielles, l'épitaxie doit être réalisée sous ultravide, environ 10^{-10} Torr, qui est obtenu par un jeu de pompes secondaires. L'épitaxie des matériaux semi-conducteurs III-V est basée sur la méthode des « trois températures » décrite par Günther en 1958.

Les éléments III (Ga, In, Al) sont maintenus à une température T_{III} supérieure à celle du substrat T_S , pour que ceux-ci se condensent sur sa surface. T_S doit être suffisante pour éliminer la condensation de l'excès d'éléments V et pour faciliter le réarrangement des atomes. Les éléments V (As, P), portés à une température T_V pour maintenir une pression partielle suffisante sur le substrat, sont envoyés en excès et ne font qu'assurer la stœchiométrie, en se liant aux éléments III. L'épaisseur déposée est donc contrôlée par le flux des éléments III. La relation entre les trois températures est la suivante : $T_V < T_S < T_{III}$.

Les principaux avantages de la MBE par rapport à une autre méthode de croissance couramment utilisée comme la MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) sont :

- La faible vitesse de croissance, de l'ordre de 1 monocouche (MC – soit environ 0,3 nm) par seconde qui permet de contrôler précisément l'épaisseur des couches épitaxiées, à l'échelle sub-nanométrique.
- L'interruption rapide des flux permettant la réalisation d'interfaces abruptes.
- L'observation in situ pendant la croissance de la morphologie de la surface de l'échantillon par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED – pour Reflection High Energy Electron Diffraction).
- La croissance hors équilibre thermodynamique rendant possible la croissance de nombreux alliages métastables.

Le bâti d'épitaxie utilisé au laboratoire pour la croissance de toutes les nanostructures étudiées pour ce travail de thèse est un bâti RIBER 32, à source gazeuses (GS-MBE pour Gas Source Molecular Beam Epitaxy), illustré à la Figure A1.1 en vue de coupe horizontale.

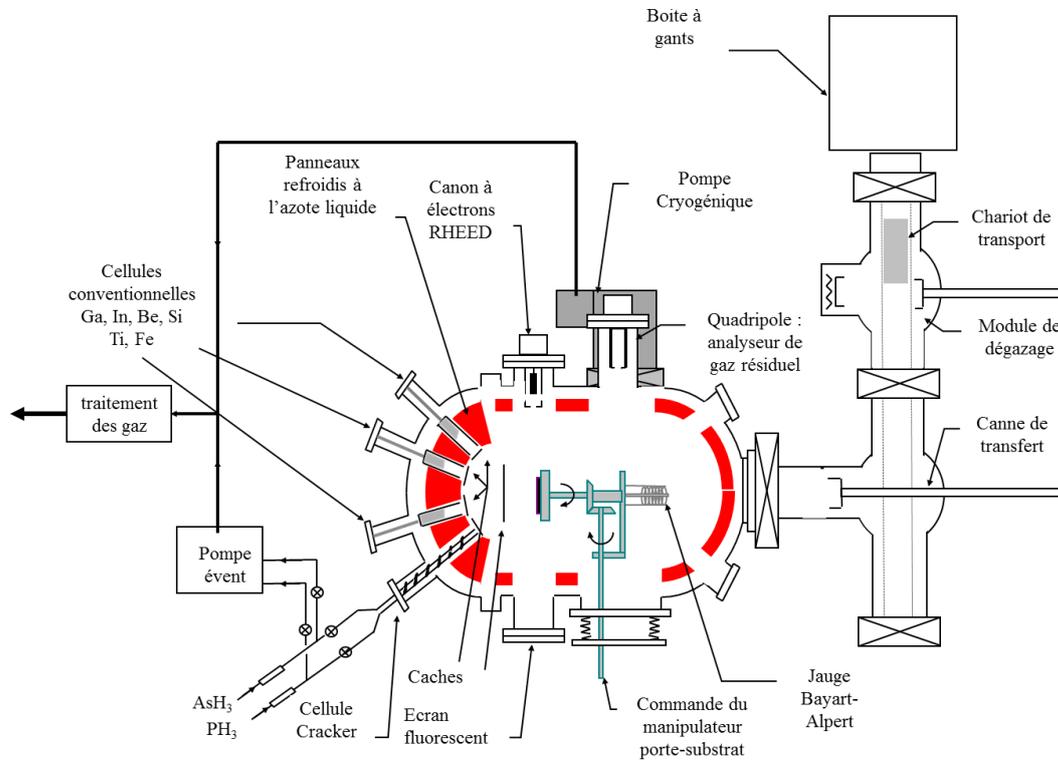


Figure A1.1 : Schéma du bâti d'épitaxie RIBER 32

Il comporte :

- Une chambre d'introduction et de transfert des substrats. Les substrats sont de taille inférieure ou égale à 2 pouces.
- Une chambre d'épitaxie maintenue sous ultravide.
- Un système RHEED composé d'un canon à électrons et d'un écran fluorescent, pour la caractérisation et le contrôle *in-situ* de la surface de croissance.
- Six cellules solides :
 - Quatre cellules sources solides d'éléments III : deux cellules d'Indium et deux cellules de Gallium pour avoir deux vitesses de dépôt différentes.
 - Deux cellules à sources solides de dopants : le silicium pour le dopage de type n et le béryllium pour le type p.
- Une cellule cracker pour les gaz avec deux lignes d'AsH₃ et deux lignes de PH₃.

Grâce aux différents éléments présents dans le bâti, il est possible de réaliser des matériaux binaires (InP, InAs), ternaires (InGaAs, InAsP, InGaP), et quaternaires (GaInAsP).

Annexe 2 : La microscopie à force atomique

Un microscope à force atomique se compose principalement d'une pointe très fine, dont l'apex de taille nanométrique détermine la résolution de la mesure, qui est fixée sur un micro levier flexible, d'une diode laser ainsi que de deux photodiodes de détection. Un ordinateur vient contrôler l'asservissement et l'acquisition. Le principe de l'AFM est illustré par la Figure A2.1.

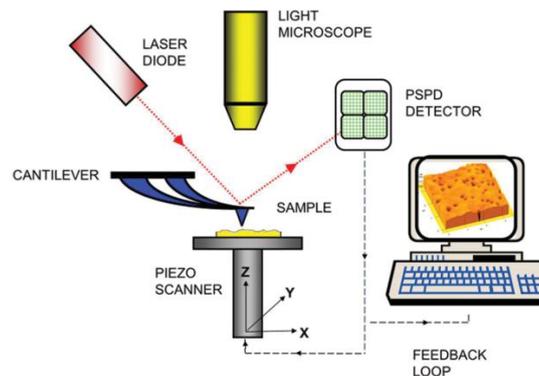


Figure A2.1 : Principe du microscope à force atomique. L'image est tirée de [306].

L'échantillon est fixé sur un tube piézo-électrique, ce qui permet de le déplacer de manière très précise dans le plan par rapport à la pointe (x, y) mais également de garder la distance pointe-surface (z) constante grâce à un système de rétroaction, afin de ne pas les endommager. En balayant la surface de l'échantillon, les forces (répulsives ou attractives) entre l'apex de la pointe et la surface vont induire des déflexions du micro levier différentes en fonction de la hauteur de la surface en un point. La face supérieure du micro levier réfléchit le faisceau laser vers le détecteur, ce qui permet de mesurer les variations de celui-ci. En effet, les déflexions du levier modifient la trajectoire du faisceau et sa position sur les diodes de détection, entraînant des variations de signal qui se traduisent en variations de la hauteur. Ainsi, les images obtenues sont des matrices de 512 lignes et 512 colonnes (x et y) contenant la hauteur mesurée (z). Le microscope à force atomique que nous utilisons est un Veeco di-Innova. L'étude est ici réalisée en mode contact du microscope à force atomique, c'est-à-dire avec une distance pointe-surface minimale (de l'ordre de quelques Å) et exploitant des interactions de type répulsives. Ce mode, qui permet une mesure plus aisée que le mode non contact, présente un risque pour la pointe, qui est très proche de la surface. C'est pourquoi nous avons choisi de balayer une petite surface ($1\mu\text{m}^2$), ce qui, d'autant plus, est amplement suffisant pour obtenir un échantillonnage fiable des paramètres géométriques de nos structures.

Annexe 3 : Traitement des images AFM

Pour traiter les images AFM acquises, nous utilisons successivement deux logiciels :

- Gwyddion, logiciel libre téléchargeable à <http://gwyddion.net/download.php>
- SPM Image Magic, qui n'est plus téléchargeable.

Gwyddion permet dans un premier temps de corriger l'image en supprimant les traits horizontaux dus aux sauts de ligne et en s'affranchissant des diverses déformations induites par l'angle entre l'échantillon et le plan de la pointe et par l'utilisation du tube piézo-électrique. Dans un second temps, le logiciel peut renseigner sur l'organisation spatiale des BQs dans le plan, dans l'espace réciproque en effectuant la transformée de Fourier numérique (2D-FFT) et dans l'espace réel par autocorrélation de l'image AFM Figure A3.1. L'intérêt de ces deux méthodes d'analyse complémentaires est de voir s'il y a une certaine organisation spatiale des BQs, et si oui, de déterminer les distances moyennes entre boîtes voisines.

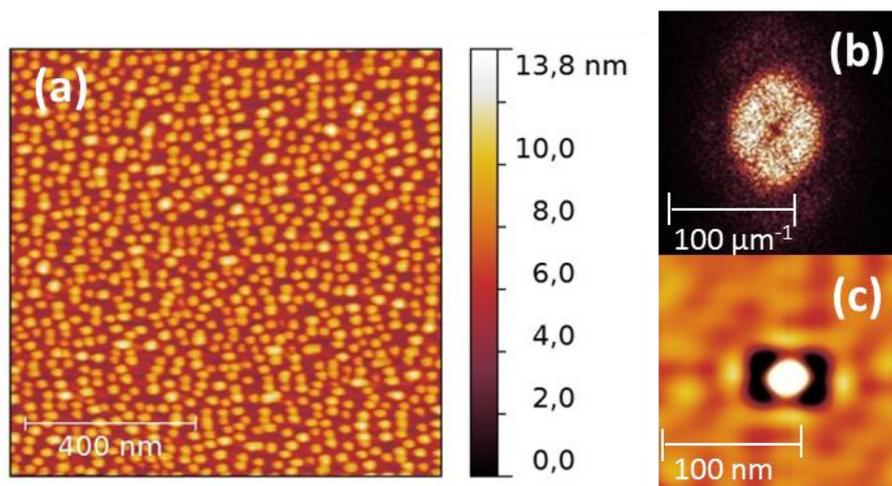


Figure A3.1 : Traitement des images AFM par Gwyddion. (a) Image AFM classique pour l'échantillon 6198-2 (2MC et 1scm). Traitement de cette image par (b) Transformée de Fourier numérique (2D-FFT) et (c) autocorrélation.

Le deuxième logiciel de traitement, spécifiquement dédié au comptage des BQs et au calcul de leur taille, est utilisé pour extraire leurs dimensions et leur homogénéité (dispersion), ainsi que leur densité. La Figure A3.2 montre pour exemple le traitement de l'échantillon 6198-2 (1 scm – 2 MC) avec SPM Image Magic.

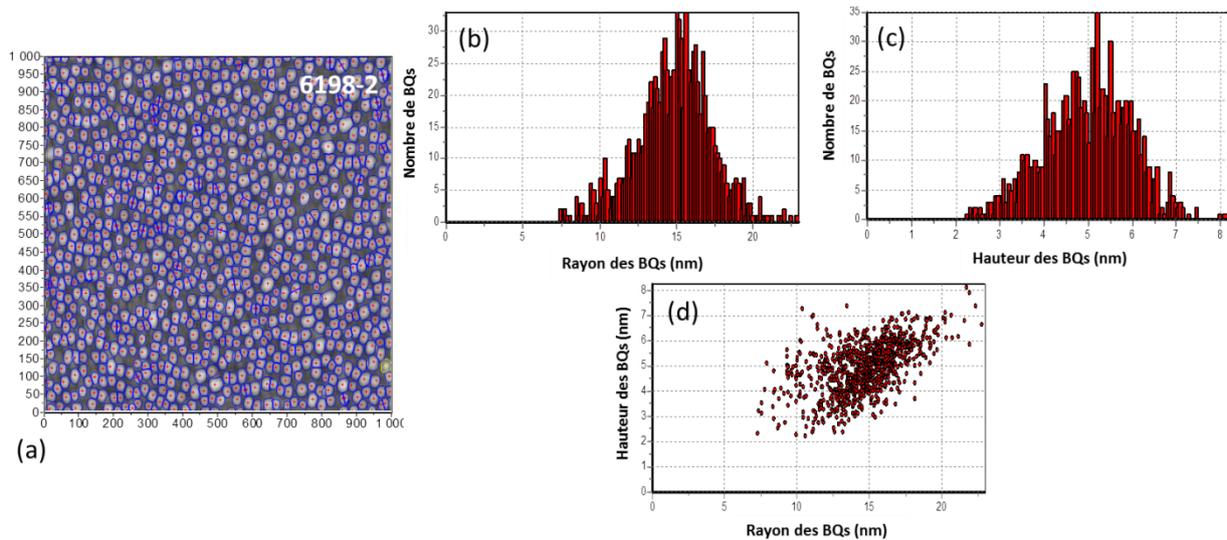
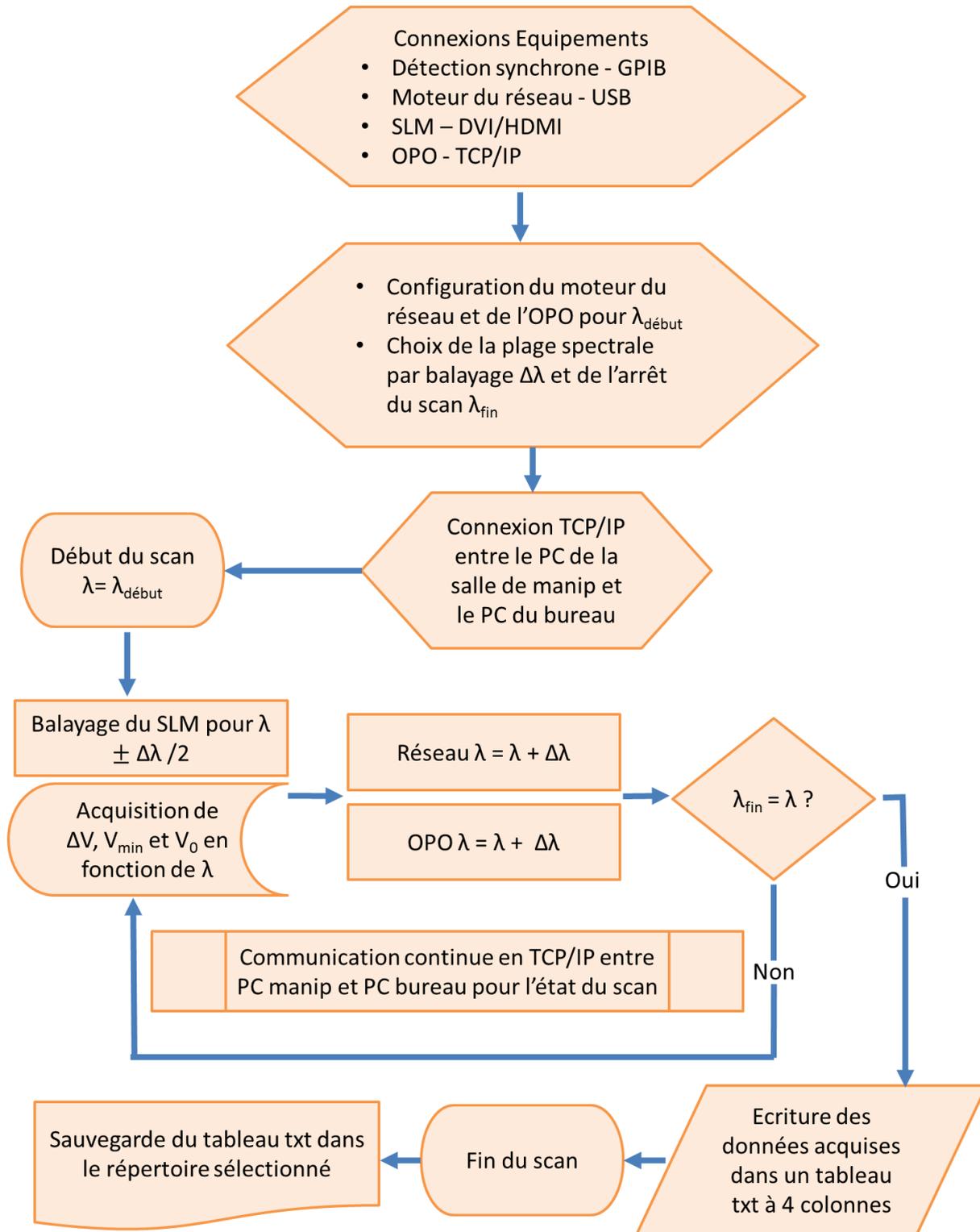


Figure A3.2 : Traitement des images AFM par SPM Image Magic. (a) Démarcation des BQs pour l'échantillon 6198-2 avec la détermination du centre de la boîte (rouge) et le contour (bleu) puis report des résultats sous forme de graphiques : (b) le rayon des BQs, (c) leur hauteur, (d) la dispersion des deux dimensions.

Pour recenser les BQs, un algorithme détermine la frontière de chaque boîte, en commençant par trouver les maxima de la surface (points rouges sur la figure) puis en dessinant les contours (délimitations bleues). Grâce à cette image, on peut vérifier si le dénombrement des BQs est bien réalisé (erreurs récurrentes : boîte comptée deux fois et boîte oubliée car trop faible hauteur) et si besoin, corriger manuellement les erreurs commises par l'algorithme. Après cette vérification manuelle, les données géométriques sont extraites : la répartition de la hauteur et du rayon des BQs, et la dispersion groupée de ces deux données sont ici présentées. On remarque que la taille des nanostructures (hauteur et rayon) suit une distribution Gaussienne et présente donc une certaine dispersion.

Annexe 4 : Logigramme du programme Labview contrôlant le montage de spectroscopie de saturation



Annexe 5 : Principe des étalons

Les étalons, qui ne sont ni plus ni moins que des interféromètres de Fabry-Pérot en verre avec des surfaces parallèles réfléchissantes, fonctionnent en effet comme des filtres spectraux : ils transmettent une série (ou plusieurs) de modes de la cavité, dont le nombre varie en fonction de la finesse \mathcal{F} et de l'ISL de l'étalon ISL_e ; dont la valeur est donnée par :

$$ISL_e = \frac{c}{2n_e d_e \cos\theta} \quad (0.1)$$

où d_e est l'épaisseur et n_e est l'indice de réfraction de l'étalon, θ est l'angle de réfraction du faisceau dans l'étalon : $\sin(\theta) = \sin(\theta_i)/n_e$ avec θ_i l'angle d'incidence. La finesse de l'étalon est le rapport de son ISL sur la largeur à mi-hauteur $\delta\lambda$ des pics de transmission, et dépend de la réflectivité de ses faces. Pour des faces de même réflectivité R , la finesse s'écrit [307] :

$$\mathcal{F} = \frac{ISL_e}{\delta\lambda} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \quad (0.2)$$

Plus la finesse est importante, plus les pics de transmission espacés par la valeur de ISL_e sont fins et leur base espacée : plus l'étalon filtrera les modes. La transmission des étalons est donnée par [231], [307] :

$$T_e(\lambda, \theta_i, R) = \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2 \left[\frac{2\pi n_e d_e}{\lambda} \cos\left(\frac{\theta_i}{n_e}\right) \right]} \quad (0.3)$$

L'étalon est donc équivalent à une deuxième cavité, dont la transmission varie périodiquement en fonction de la longueur d'onde et est différente en fonction de l'angle d'incidence et de sa réflectivité, comme le montre la Figure A5.1.

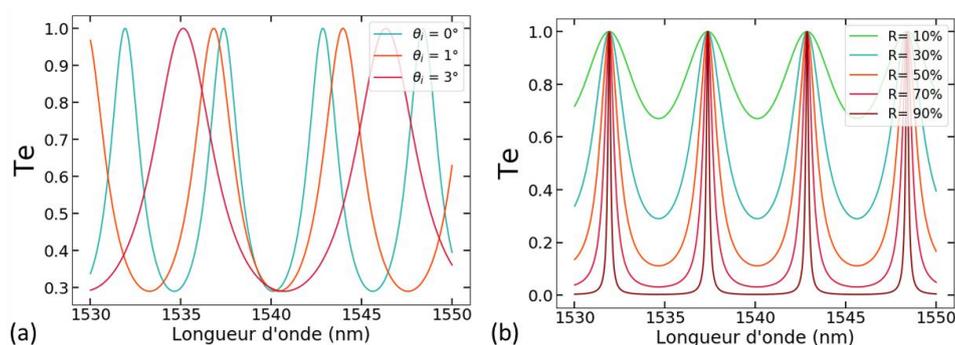


Figure A5.1 : Evolution de la transmission d'un étalon en silice fondue d'indice de réfraction $n_e = 1,445$ à $\lambda=1550$ nm et d'épaisseur de $150 \mu\text{m}$, en fonction de la longueur d'onde (a) pour différents angles d'incidence θ_i ($R=30\%$) et (b) pour différentes réflectivité R ($\theta_i = 0^\circ$).

Table des abréviations

AFM : Atomic Force Microscopy – Microscopie à force atomique

ASO : Analyseur de Spectre Optique

BatQ : Bâtonnet quantique

BQ : Boîte quantique

DBR : Distributed Bragg Reflector – Réflecteur/Miroir de Bragg

DFB : Distributed FeedBack laser - Laser à rétroaction répartie

IFP : Interféromètre de Fabry-Pérot

ISL : Intervalle Spectral Libre

MC : monocouche, unité de la quantité d'InAs déposée (1MC=0,3nm)

MBE : Molecular beam epitaxy – Epitaxie par jets moléculaires

PL : Photoluminescence

PNR : Pompe Non-Résonante

PQ : Puits quantique

Scm : Standard centimer cube per minute, Unité du flux d'AsH₃

SHB : Spectral hole burning – Spectroscopie non-linéaire de saturation de l'absorption

SLM : Spatial light modulator – Modulateur spatial de lumière

VCSEL : Vertical Cavity Surface Emitting Laser – Laser à cavité verticale émettant par la surface

VECSEL : Vertical External Cavity Surface Emitting Laser – Laser à cavité verticale externe émettant par la surface

YAG : Yttrium Aluminium Garnet – grenat d'yttrium et d'aluminium

YVO₄ : vanadate d'yttrium

Publications et communications

Articles

***G. Brévalle**, M. Perrin, C. Paranthoën, C. Levallois, N. Chevalier, Y. Léger, H. Folliot and M. Alouini, “Temperature Dependent Spectral Hole Burning Spectroscopy on InAs/InP Quantum Dashes and Quantum Dots”, en cours.

*K. Nechay, A. Mereuta, C. Paranthoën, **G. Brévalle**, C. Levallois, M. Alouini, N. Chevalier, G. Suruceanu, A. Caliman, E. Kapon and M. Guina “High-power 760 nm VECSEL based on quantum dot gain mirror”, *IEEE*, en cours.

*K. Nechay, A. Mereuta, C. Paranthoën, **G. Brévalle**, C. Levallois, M. Alouini, N. Chevalier, M. Perrin, G. Suruceanu, A. Caliman, M. Guina and E. Kapon “InAs/InP quantum dot VECSEL emitting at 1.5 μm ”, *Applied Physics Letters*, accepté.

***G. Brévalle**, S. Pes, C. Paranthoën, M. Perrin, C. Levallois, C. Hamel, A. Mereuta, A. Caliman, E. Kapon, A. Vallet, L. Chusseau, H. Folliot and M. Alouini, “Direct measurement of the spectral dependence of Lamb coupling constant in a dual frequency quantum well-based VECSEL”, *Opt. Express*, vol. 27, no. 15, pp. 21083–21091, Jul. 2019.

Communications orales

*M. Alouini, **G. Brévalle**, S. Pes, C. Paranthoën, M. Perrin, C. Levallois, C. Hamel, H. Folliot, A. Vallet, L. Chusseau, A. Mereuta, A. Caliman and E. Kapon, “Thorough investigation of mode-coupling in VECSELS: towards robust dual-frequency operation of a single-axis laser”, Oral invite à Photonics West 2020, San Francisco, 31 Janvier – 6 Février 2020.

*K. Nechay, A. Mereuta, C. Paranthoën, **G. Brévalle**, C. Levallois, M. Alouini, N. Chevalier, G. Suruceanu, A. Caliman, E. Kapon and M. Guina “High-power InAs/InP quantum dot VECSEL with fundamental mode emission at 1.5 μm wavelength”, soumis pour Oral à Photonics West 2020, San Francisco, 31 Janvier – 6 Février 2020.

***G. Brévalle**, M. Perrin, C. Paranthoën, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “Spectral Hole Burning Spectroscopy on Quantum Dashes and Quantum Dots for Dual-Frequency Laser Engineering”, Oral à CSW 2019, Nara, Japon, 19-23 Mai 2019.

*C. Paranthoën, C. Levallois, N. Chevalier, A. Le Corre, **G. Brévalle**, M. Perrin, K. Tavernier, H. Folliot and M. Alouini, “1545 μm Quantum Dot Vertical Cavity Surface Emitting Laser with low threshold”, Oral à CSW 2019, Nara, Japon, 19-23 Mai 2019.

***G. Brévalle**, M. Perrin, C. Paranthoën, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “1.5 μm Quantum Dots Spectral Hole Burning experiments for dual frequency laser engineering”, Oral à la journée de l’ED 3M, Rennes, France, 29 octobre 2018.

***G. Brévalle**, M. Perrin, C. Paranthoën, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “1.5 μm Quantum Dots Spectral Hole Burning experiments for dual frequency laser engineering”, Oral à ICPS 2018, Montpellier, France, 29 Juillet - 3 Août 2018.

Présentations posters

***G. Brévalle**, S. Pes, C. Paranthoën, M. Perrin, C. Levallois, C. Hamel, A. Mereuta, A. Caliman, E. Kapon, L. Chusseau, H. Folliot and M. Alouini, “Mode Coupling Measurement in Dual-Frequency Quantum Well-based VECSEL”, Poster à CSW 2019, Nara, Japon, 19-23 Mai 2019.

*K. Nechay, A. Mereuta, C. Paranthoën, **G. Brévalle**, C. Levallois, M. Alouini, N. Chevalier, G. Suruceanu, A. Caliman, M. Guina, and E. Kapon, “High-power InAs quantum dot VECSEL emitting at 1.5 μm ”, Poster à OPD 2019, Espoo, Finlande, 27-29 Mai 2019.

***G. Brévalle**, M. Perrin, C. Paranthoën, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “Structural & Spectroscopic Study of InAs/InP Quantum Dots for Dual-Frequency Laser Engineering”, Poster aux JNMO 2018, Agay, France, 13-15 Juin 2018.

***G. Brévalle**, C. Paranthoën, M. Perrin, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “VECSEL bi-fréquence cohérent : vers une source THz compacte”, Poster aux JNOG 2017, Limoges, France, 3-6 Juillet 2017.

***G. Brévalle**, C. Paranthoën, M. Perrin, C. Levallois, H. Folliot and M. Alouini, “Investigation of a quantum dot vertical external-cavity surface-emitting laser: Towards THz frequency generation”, Poster à la journée de l’ED SLM, Rennes, France, 31 Janvier 2017.

Séminaires internes et invité

***G. Brévalle**, M. Perrin, C. Paranthoën, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “1.5 μm Quantum Dots Spectral Hole Burning experiments for dual frequency laser engineering”, Présentation orale invitée au KAIST, Daejeon, Corée du Sud, Septembre 2018.

***G. Brévalle**, C. Paranthoën, M. Perrin, Y. Léger, C. Levallois, N. Chevalier, H. Folliot and M. Alouini, “Étude des boîtes quantiques pour la réalisation d’un VECSEL bi-fréquence cohérent”, Présentation orale à la journée FOTON, Rennes, France, Juin 2018.

***G. Brévalle**, C. Paranthoën, M. Perrin, H. Folliot and M. Alouini, “Coupling constant measurements in a dual-frequency QWs VECSEL”, Présentation orale interne, Rennes, France, Mai 2018.

***G. Brévalle**, C. Paranthoën, M. Perrin, Y. Léger, C. Levallois, H. Folliot and M. Alouini, “Investigation of a Quantum Dot Vertical External-Cavity Surface-Emitting Laser: Towards THz Frequency Generation”, Poster à la journée FOTON, Rennes, France, Juin 2017.

Bibliographie

- [1] T. H. Maiman, “Stimulated Optical Radiation in Ruby,” *Nature*, vol. 187, no. 4736, pp. 493–494, Aug. 1960.
- [2] P. H. Siegel, “Terahertz technology,” *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 50, no. 3, pp. 910–928, Mar. 2002.
- [3] P. U. Jepsen, D. G. Cooke, and M. Koch, “Terahertz spectroscopy and imaging – Modern techniques and applications,” *Laser Photonics Rev.*, vol. 5, no. 1, pp. 124–166, 2011.
- [4] J. W. Waters, “The Earth observing system microwave limb sounder (EOS MLS) on the aura Satellite,” *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, vol. 44, no. 5, pp. 1075–1092, May 2006.
- [5] H. J. Song and T. Nagatsuma, “Present and Future of Terahertz Communications,” *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.*, vol. 1, no. 1, pp. 256–263, Sep. 2011.
- [6] J.-H. Son, “Terahertz electromagnetic interactions with biological matter and their applications,” *J. Appl. Phys.*, vol. 105, no. 10, p. 102033, May 2009.
- [7] J. F. Federici *et al.*, “THz imaging and sensing for security applications—explosives, weapons and drugs,” *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 20, no. 7, p. S266, 2005.
- [8] E. R. Brown, F. W. Smith, and K. McIntosh, “Coherent millimeter-wave generation by heterodyne conversion in low-temperature-grown GaAs photoconductors,” 1993.
- [9] M. Brunel, F. Bretenaker, and A. L. Floch, “Tunable optical microwave source using spatially resolved laser eigenstates,” *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 6, pp. 384–386, Mar. 1997.
- [10] M. Alouini *et al.*, “Offset phase locking of Er,Yb:glass laser eigenstates for RF photonics applications,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 13, no. 4, pp. 367–369, Apr. 2001.
- [11] G. Pillet *et al.*, “Dual-Frequency Laser at 1.5 μm for Optical Distribution and Generation of High-Purity Microwave Signals,” *J. Light. Technol.*, vol. 26, no. 15, pp. 2764–2773, Aug. 2008.
- [12] M. Alouini, M. Brunel, F. Bretenaker, M. Vallet, and A. L. Floch, “Dual tunable wavelength Er,Yb:glass laser for terahertz beat frequency generation,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 10, no. 11, pp. 1554–1556, Nov. 1998.
- [13] R. Czarny, M. Alouini, C. Larat, M. Krakowski, and D. Dolfi, “THz-dual-frequency $\text{Yb}^{3+}:\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ laser for continuous wave THz generation through photomixing,” *Electron. Lett.*, vol. 40, no. 15, pp. 942–943, Jul. 2004.
- [14] S. Rout and S. Sonkusale, “Introduction,” in *Active Metamaterials: Terahertz Modulators and Detectors*, S. Rout and S. Sonkusale, Eds. Cham: Springer International Publishing, 2017, pp. 1–25.
- [15] M. Tonouchi, “Cutting-edge terahertz technology,” *Nat. Photonics*, vol. 1, no. 2, pp. 97–105, Feb. 2007.
- [16] F. T. Arecchi, G. L. Lippi, G. P. Puccioni, and J. R. Tredicce, “Deterministic chaos in laser with injected signal,” *Opt. Commun.*, vol. 51, no. 5, pp. 308–314, 1984.
- [17] G. Baili, M. Alouini, T. Malherbe, D. Dolfi, I. Sagnes, and F. Bretenaker, “Direct observation of the class-B to class-A transition in the dynamical behavior of a semiconductor laser,” *EPL Europhys. Lett.*, vol. 87, no. 4, p. 44005, Aug. 2009.
- [18] G. Baili *et al.*, “Experimental demonstration of a tunable dual-frequency semiconductor laser free of relaxation oscillations,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 21, pp. 3421–3423, Nov. 2009.
- [19] V. Pal *et al.*, “Measurement of the coupling constant in a two-frequency VECSEL,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 5, p. 5008, Mar. 2010.
- [20] K. Akahane *et al.*, “Stable Two-Mode Emission from Semiconductor Quantum Dot Laser,” *Appl. Phys. Express*, vol. 6, no. 10, p. 104001, Oct. 2013.

- [21] K. A. Fedorova, A. Gorodetsky, and E. U. Rafailov, "Compact All-Quantum-Dot-Based Tunable THz Laser Source," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 23, no. 4, pp. 1–5, Jul. 2017.
- [22] A. Sirbu, V. Iakovlev, A. Mereuta, A. Caliman, G. Suruceanu, and E. Kapon, "Wafer-fused heterostructures: application to vertical cavity surface-emitting lasers emitting in the 1310 nm band," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 26, no. 1, p. 014016, 2011.
- [23] A. Sirbu *et al.*, "High performance wafer-fused semiconductor disk lasers emitting in the 1300 nm waveband," *Opt. Express*, vol. 22, no. 24, p. 29398, Dec. 2014.
- [24] W. E. Lamb, "Theory of an Optical Maser," *Phys. Rev.*, vol. 134, no. 6A, pp. A1429–A1450, Jun. 1964.
- [25] M. Sargent, M. O. Scully, and W. E. Lamb, *Laser physics*. London : Addison-Wesley, 1974.
- [26] Z. Alferov, "Double heterostructure lasers: early days and future perspectives," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 6, no. 6, pp. 832–840, Nov. 2000.
- [27] H. Eisele and G. I. Haddad, "Two-terminal millimeter-wave sources," *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 46, no. 6, pp. 739–746, Jun. 1998.
- [28] A. Maestrini *et al.*, "A 1.7-1.9 THz local oscillator source," *IEEE Microw. Wirel. Compon. Lett.*, vol. 14, no. 6, pp. 253–255, Jun. 2004.
- [29] M. Feiginov, C. Sydlo, O. Cojocari, and P. Meissner, "Resonant-tunnelling-diode oscillators operating at frequencies above 1.1 THz," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 23, p. 233506, Dec. 2011.
- [30] B. S. Williams, "Terahertz quantum-cascade lasers," *Nat. Photonics*, vol. 1, no. 9, pp. 517–525, Sep. 2007.
- [31] M. A. Belkin *et al.*, "Room temperature terahertz quantum cascade laser source based on intracavity difference-frequency generation," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 20, p. 201101, May 2008.
- [32] Q. Y. Lu, N. Bandyopadhyay, S. Slivken, Y. Bai, and M. Razeghi, "Continuous operation of a monolithic semiconductor terahertz source at room temperature," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, no. 22, p. 221105, Jun. 2014.
- [33] Q. Lu, D. Wu, S. Sengupta, S. Slivken, and M. Razeghi, "Room temperature continuous wave, monolithic tunable THz sources based on highly efficient mid-infrared quantum cascade lasers," *Sci. Rep.*, vol. 6, p. 23595, Mar. 2016.
- [34] M. Alouini, M. Vallet, Brunel, F. Bretenaker, and A. L. Floch, "Tunable absolute-frequency laser at 1.5 μm ," *Electron. Lett.*, vol. 36, no. 21, pp. 1780–1782, Oct. 2000.
- [35] A. Rolland, G. Loas, M. Brunel, L. Frein, M. Vallet, and M. Alouini, "Non-linear optoelectronic phase-locked loop for stabilization of opto-millimeter waves: towards a narrow linewidth tunable THz source," *Opt. Express*, vol. 19, no. 19, pp. 17944–17950, Sep. 2011.
- [36] G. Danion, C. Hamel, L. Frein, F. Bondu, G. Loas, and M. Alouini, "Dual frequency laser with two continuously and widely tunable frequencies for optical referencing of GHz to THz beatnotes," *Opt. Express*, vol. 22, no. 15, pp. 17673–17678, Jul. 2014.
- [37] G. Loas, M. Romanelli, and M. Alouini, "Dual-Frequency 780-nm Ti:Sa Laser for High Spectral Purity Tunable CW THz Generation," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 26, no. 15, pp. 1518–1521, 2014.
- [38] A. McKay and J. M. Dawes, "Tunable Terahertz Signals Using a Helicoidally Polarized Ceramic Microchip Laser," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 21, no. 7, pp. 480–482, Apr. 2009.
- [39] P. Zhao, S. Ragam, Y. J. Ding, and I. B. Zotova, "Compact and portable terahertz source by mixing two frequencies generated simultaneously by a single solid-state laser," *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 23, pp. 3979–3981, Dec. 2010.
- [40] H. Maestre, A. J. Torregrosa, J. A. Pereda, C. R. Fernandez-Pousa, and J. Capmany, "Dual-Wavelength $\text{Cr}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ Solid-State Laser With Tunable THz Frequency Difference," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 46, no. 11, pp. 1681–1685, Nov. 2010.

- [41] A. E. Amili, G. Kervella, and M. Alouini, "Experimental evidence and theoretical modeling of two-photon absorption dynamics in the reduction of intensity noise of solid-state Er:Yb lasers," *Opt. Express*, vol. 21, no. 7, pp. 8773–8780, Apr. 2013.
- [42] K. Audo and M. Alouini, "Intensity noise cancellation in solid-state laser at 1.5 μm using SHG depletion as a buffer reservoir," *Appl. Opt.*, vol. 57, no. 7, pp. 1524–1529, Mar. 2018.
- [43] N. Kim *et al.*, "Monolithic dual-mode distributed feedback semiconductor laser for tunable continuous-wave terahertz generation," *Opt. Express*, vol. 17, no. 16, pp. 13851–13859, 2009.
- [44] N. Kim *et al.*, "Tunable continuous-wave terahertz generation/detection with compact 1.55 μm detuned dual-mode laser diode and InGaAs based photomixer," *Opt. Express*, vol. 19, no. 16, pp. 15397–15403, Aug. 2011.
- [45] N. Kim *et al.*, "Distributed feedback laser diode integrated with distributed Bragg reflector for continuous-wave terahertz generation," *Opt. Express*, vol. 20, no. 16, pp. 17496–17502, Jul. 2012.
- [46] F. A. Camargo *et al.*, "Coherent Dual-Frequency Emission of a Vertical External-Cavity Semiconductor Laser at the Cesium D_2 Line," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 24, no. 14, pp. 1218–1220, Jul. 2012.
- [47] S. De, G. Baili, M. Alouini, J.-C. Harmand, S. Bouchoule, and F. Bretenaker, "Class-A dual-frequency VECSEL at telecom wavelength," *Opt. Lett.*, vol. 39, no. 19, pp. 5586–5589, Oct. 2014.
- [48] P. Dumont *et al.*, "Low-Noise Dual-Frequency Laser for Compact Cs Atomic Clocks," *J. Light. Technol.*, vol. 32, no. 20, pp. 3817–3823, Oct. 2014.
- [49] L. Chaccour *et al.*, "Cross-Polarized Dual-Frequency VECSEL at 1.5 μm for Fiber-Based Sensing Applications," *IEEE Photonics J.*, vol. 8, no. 6, pp. 1–10, Dec. 2016.
- [50] R. Paquet *et al.*, "Coherent continuous-wave dual-frequency high-Q external-cavity semiconductor laser for GHz–THz applications," *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 16, pp. 3751–3754, Aug. 2016.
- [51] S. Blin *et al.*, "Coherent and Tunable THz Emission Driven by an Integrated III–V Semiconductor Laser," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 23, no. 4, pp. 1–11, Jul. 2017.
- [52] T. A. G. Bondaz, A. Laurain, J. V. Moloney, and J. G. McInerney, "Generation and Stabilization of Continuous-Wave THz Emission From a Bi-Color VECSEL," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 31, no. 19, pp. 1569–1572, Oct. 2019.
- [53] M. Lukowski, C. Hessenius, and M. Fallahi, "Widely Tunable High-Power Two-Color VECSELs for New Wavelength Generation," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 21, no. 1, pp. 432–439, Jan. 2015.
- [54] F. van Dijk, A. Accard, A. Enard, O. Drisse, D. Make, and F. Lelarge, "Monolithic dual wavelength DFB lasers for narrow linewidth heterodyne beat-note generation," in *2011 International Topical Meeting on Microwave Photonics jointly held with the 2011 Asia-Pacific Microwave Photonics Conference*, 2011, pp. 73–76.
- [55] Z. Jiao *et al.*, "Tunable Terahertz Beat Signal Generation From an InAs/InP Quantum-Dot Mode-Locked Laser Combined With External-Cavity," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 24, no. 6, pp. 518–520, Mar. 2012.
- [56] A. Hurtado, I. D. Henning, M. J. Adams, and L. F. Lester, "Dual-mode lasing in a 1310-nm quantum dot distributed feedback laser induced by single-beam optical injection," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 20, p. 201117, May 2013.
- [57] R. Wang and Y. Li, "Dual-Polarization Spatial-Hole-Burning-Free Microchip Laser," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 21, no. 17, pp. 1214–1216, Sep. 2009.
- [58] Y. Arakawa and H. Sakaki, "Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 40, no. 11, pp. 939–941, Jun. 1982.
- [59] R. C. Ashoori, "Electrons in artificial atoms," *Nature*, vol. 379, no. 6564, p. 413, Feb. 1996.
- [60] Zh. I. Alferov, "The history and future of semiconductor heterostructures," *Semiconductors*, vol. 32, no. 1, pp. 1–14, Jan. 1998.

- [61] P. M. Petroff, A. Lorke, and A. Imamoglu, “Epitaxially Self-Assembled Quantum Dots,” *Phys. Today*, vol. 54, no. 5, pp. 46–52, May 2001.
- [62] M. Gong, K. Duan, C.-F. Li, R. Magri, G. A. Narvaez, and L. He, “Electronic structure of self-assembled InAs/InP quantum dots: Comparison with self-assembled InAs/GaAs quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 77, no. 4, p. 045326, Jan. 2008.
- [63] S. L. Chuang, *Physics of Photonic Devices*. Wiley Series in Pure and Applied Optics, 2009.
- [64] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette, “Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission,” *Phys. Rev. B*, vol. 63, no. 15, p. 155307, Mar. 2001.
- [65] C. Kammerer *et al.*, “Efficient acoustic phonon broadening in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 65, no. 3, p. 033313, Dec. 2001.
- [66] M. Bayer and A. Forchel, “Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 65, no. 4, p. 041308, Jan. 2002.
- [67] H. H. Nilsson, J.-Z. Zhang, and I. Galbraith, “Homogeneous broadening in quantum dots due to Auger scattering with wetting layer carriers,” *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 20, p. 205331, Nov. 2005.
- [68] P. Borri *et al.*, “Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, no. 15, p. 157401, Sep. 2001.
- [69] J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard, “Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, no. 5, pp. 716–719, Aug. 1994.
- [70] M. Zouaoui, “Etude des propriétés électroniques des boîtes quantiques InAs/InP par spectroscopie de défauts profonds (DLTS) pour des applications optoélectroniques,” INSA de Lyon, 2013.
- [71] T. Yang, J. Tatebayashi, S. Tsukamoto, M. Nishioka, and Y. Arakawa, “Narrow photoluminescence linewidth (<17 meV) from highly uniform self-assembled InAs/GaAs quantum dots grown by low-pressure metalorganic chemical vapor deposition,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 84, no. 15, pp. 2817–2819, Apr. 2004.
- [72] S. Banyoudeh and J. P. Reithmaier, “High-density $1.54 \mu\text{m}$ InAs/InGaAlAs/InP(100) based quantum dots with reduced size inhomogeneity,” *J. Cryst. Growth*, vol. 425, pp. 299–302, Sep. 2015.
- [73] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg, “Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k-p theory,” *Phys. Rev. B*, vol. 59, no. 8, pp. 5688–5701, Feb. 1999.
- [74] A. Franceschetti and A. Zunger, “Pseudopotential calculations of electron and hole addition spectra of InAs, InP, and Si quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 62, no. 4, pp. 2614–2623, Jul. 2000.
- [75] M. Z. M. Khan, T. K. Ng, and B. S. Ooi, “Self-assembled InAs/InP quantum dots and quantum dashes: Material structures and devices,” *Prog. Quantum Electron.*, vol. 38, no. 6, pp. 237–313, Nov. 2014.
- [76] T. Miyazawa *et al.*, “Single-Photon Generation in the $1.55\text{-}\mu\text{m}$ Optical-Fiber Band from an InAs/InP Quantum Dot,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 5L, p. L620, May 2005.
- [77] K. Takemoto *et al.*, “Non-classical Photon Emission from a Single InAs/InP Quantum Dot in the $1.3\text{-}\mu\text{m}$ Optical-Fiber Band,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 7B, p. L993, Jul. 2004.
- [78] S. Maimon, E. Finkman, G. Bahir, S. E. Schacham, J. M. Garcia, and P. M. Petroff, “Intersublevel transitions in InAs/GaAs quantum dots infrared photodetectors,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, no. 14, pp. 2003–2005, Oct. 1998.
- [79] R. P. Mirin, A. C. Gossard, and J. E. Bowers, “Characterization of InGaAs quantum dot lasers with a single quantum dot layer as an active region,” *Phys. E Low-Dimens. Syst. Nanostructures*, vol. 2, no. 1–4, pp. 738–742, Jul. 1998.
- [80] “Opto & Laser Europe,” *Issue 74*, p. 33, May-2000.

- [81] P. G. Eliseev *et al.*, “Transition dipole moment of InAs/InGaAs quantum dots from experiments on ultralow-threshold laser diodes,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 2, pp. 262–264, Jun. 2000.
- [82] D. G. Deppe, K. Shavritranuruk, G. Ozgur, H. Chen, and S. Freisem, “Quantum dot laser diode with low threshold and low internal loss,” *Electron. Lett.*, vol. 45, no. 1, pp. 54–56, Jan. 2009.
- [83] H. Shimizu, S. Saravanan, J. Yoshida, S. Ibe, and N. Yokouchi, “InAs Quantum Dot Lasers with Extremely Low Threshold Current Density (7 A/cm²/Layer),” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 8L, p. L1103, Aug. 2005.
- [84] A. Salhi *et al.*, “Enhanced Performances of Quantum Dot Lasers Operating at 1.3 μm ,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 14, no. 4, pp. 1188–1196, Jul. 2008.
- [85] N. Chand, E. E. Becker, J. P. van der Ziel, S. N. G. Chu, and N. K. Dutta, “Excellent uniformity and very low (<50 A/cm²) threshold current density strained InGaAs quantum well diode lasers on GaAs substrate,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 58, no. 16, pp. 1704–1706, Apr. 1991.
- [86] M. T. Crowley, N. A. Naderi, H. Su, F. Grillot, and L. F. Lester, “GaAs-Based Quantum Dot Lasers,” in *Semiconductors and Semimetals*, vol. 86, J. J. Coleman, A. C. Bryce, and C. Jagadish, Eds. Elsevier, 2012, pp. 371–417.
- [87] A. Matsumoto, K. Akahane, T. Umezawa, and N. Yamamoto, “Extremely stable temperature characteristics of 1550-nm band, p-doped, highly stacked quantum-dot laser diodes,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 56, no. 4S, p. 04CH07, Mar. 2017.
- [88] M. Asada, Y. Miyamoto, and Y. Suematsu, “Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 22, no. 9, pp. 1915–1921, Sep. 1986.
- [89] P. M. Varangis *et al.*, “Low-threshold quantum dot lasers with 201 nm tuning range,” *Electron. Lett.*, vol. 36, no. 18, pp. 1544–1545, Aug. 2000.
- [90] K. A. Fedorova, M. A. Cataluna, I. Krestnikov, D. Livshits, and E. U. Rafailov, “Broadly tunable high-power InAs/GaAs quantum-dot external cavity diode lasers,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 18, pp. 19438–19443, Aug. 2010.
- [91] M. Sugawara, K. Mukai, Y. Nakata, H. Ishikawa, and A. Sakamoto, “Effect of homogeneous broadening of optical gain on lasing spectra in self-assembled InGaAs/GaAs quantum dot lasers,” *Phys. Rev. B*, vol. 61, no. 11, p. 7595, 2000.
- [92] M. Grundmann, “How a quantum-dot laser turns on,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 10, pp. 1428–1430, Aug. 2000.
- [93] A. E. Zhukov, M. V. Maksimov, and A. R. Kovsh, “Device characteristics of long-wavelength lasers based on self-organized quantum dots,” *Semiconductors*, vol. 46, no. 10, pp. 1225–1250, Oct. 2012.
- [94] V. I. Sichkovskiy, M. Waniczek, and J. P. Reithmaier, “High-gain wavelength-stabilized 1.55 μm InAs/InP(100) based lasers with reduced number of quantum dot active layers,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 22, p. 221117, Jun. 2013.
- [95] S. Banyoudeh *et al.*, “Temperature-Insensitive High-Speed Directly Modulated 1.55 μm Quantum Dot Lasers,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 28, no. 21, pp. 2451–2454, Nov. 2016.
- [96] A. Abdollahinia *et al.*, “Temperature stability of static and dynamic properties of 1.55 μm quantum dot lasers,” *Opt. Express*, vol. 26, no. 5, pp. 6056–6066, Mar. 2018.
- [97] H. Saito, K. Nishi, and S. Sugou, “Ground-state lasing at room temperature in long-wavelength InAs quantum-dot lasers on InP(311)B substrates,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 78, no. 3, pp. 267–269, Jan. 2001.
- [98] C. Paranthoen *et al.*, “Room temperature laser emission of 1.5 μm from InAs/InP(311)B quantum dots,” *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 17, no. 2, pp. L5–L7, Jan. 2002.
- [99] P. Caroff *et al.*, “High-gain and low-threshold InAs quantum-dot lasers on InP,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, no. 24, p. 243107, Dec. 2005.

- [100] K. Klaime *et al.*, “23 and 39 GHz low phase noise monosection InAs/InP (113)B quantum dots mode-locked lasers,” *Opt. Express*, vol. 21, no. 23, p. 29000, Nov. 2013.
- [101] A. Matsumoto, K. Akahane, T. Umezawa, and N. Yamamoto, “Extreme thermal stability of 1550 nm band highly stacked QD-LDs with p-doped structure,” in *2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR)*, 2017, pp. 1–2.
- [102] E. Homeyer *et al.*, “First demonstration of a 1.52 μm RT InAs/InP(311)B laser with an active zone based on a single QD layer,” *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 22, no. 7, pp. 827–830, Jun. 2007.
- [103] P. Miska *et al.*, “Vertical electronic coupling between InAs/InP quantum-dot layers emitting in the near-infrared range,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 86, no. 11, p. 111905, Mar. 2005.
- [104] C. Cornet *et al.*, “Approach to wetting-layer-assisted lateral coupling of InAs/InP quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 3, Jul. 2005.
- [105] C. Cornet *et al.*, “Increase of charge-carrier redistribution efficiency in a laterally organized superlattice of coupled quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 74, no. 24, p. 245315, Dec. 2006.
- [106] C. Cornet, “propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP,” PhD Thesis, INSA Rennes, 2007.
- [107] M. Sugawara *et al.*, “Modeling room-temperature lasing spectra of 1.3- μm self-assembled InAs/GaAs quantum-dot lasers: Homogeneous broadening of optical gain under current injection,” *J. Appl. Phys.*, vol. 97, no. 4, p. 043523, Jan. 2005.
- [108] L. Chusseau, A. Vallet, M. Perrin, C. Paranthoën, and M. Alouini, “Lamb mode-coupling constant in quantum-dot semiconductor lasers,” *Phys. Rev. B*, vol. 98, no. 15, p. 155306, Oct. 2018.
- [109] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*. John Wiley & Sons, 1999.
- [110] *Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots*. Academic Press, 1999.
- [111] T.-P. Hsieh *et al.*, “1.55 μm emission from InAs quantum dots grown on GaAs,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, no. 15, p. 151903, Oct. 2005.
- [112] C. Cornet, *Contribution to the study of monolithic integration of III-V semiconductors on silicon in the pseudomorphic approach for photonics and photovoltaics*. 2014.
- [113] I. M. Stranski and L. von Krastanov, “Akad.Wis.Lit.Abh.Math.Naturwiss.Kl.IIb,146 :797,” 1939.
- [114] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux, “Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 47, no. 10, pp. 1099–1101, Nov. 1985.
- [115] Q. D. Zhuang, S. F. Yoon, and H. Q. Zheng, “Arsenic/phosphorus exchange and wavelength tuning of in situ annealed InAs/InP quantum dot superlattice,” *Solid State Commun.*, vol. 117, no. 8, pp. 465–469, Feb. 2001.
- [116] P. Miska *et al.*, “Experimental and theoretical investigation of carrier confinement in InAs quantum dashes grown on InP(001),” *J. Appl. Phys.*, vol. 95, no. 3, pp. 1074–1080, Jan. 2004.
- [117] M. Gendry *et al.*, “From large to low height dispersion for self-organized InAs quantum sticks emitting at 1.55 μm on InP (001),” *J. Appl. Phys.*, vol. 95, no. 9, pp. 4761–4766, May 2004.
- [118] H. Dery *et al.*, “On the nature of quantum dash structures,” *J. Appl. Phys.*, vol. 95, no. 11, pp. 6103–6111, Jun. 2004.
- [119] F. Fossard *et al.*, “Spectroscopy of the electronic states in InAs quantum dots grown on $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ (001),” *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 15, Apr. 2004.
- [120] S. Frechengues, “Realisation et etude de nanostructures de (ga)inas epitaxiees sur un substrat d’inp,” thesis, Rennes, INSA, 1998.

- [121] S. Fréchengues *et al.*, “Wavelength tuning of InAs quantum dots grown on (311)B InP,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, no. 22, pp. 3356–3358, May 1999.
- [122] B. Salem *et al.*, “Optical properties of self-assembled InAs quantum islands grown on InP(001) vicinal substrates,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, no. 26, pp. 4435–4437, Dec. 2001.
- [123] O. Bierwagen and W. T. Masselink, “Self-organized growth of InAs quantum wires and dots on InP(001): The role of vicinal substrates,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 86, no. 11, p. 113110, Mar. 2005.
- [124] G. Elias, “Epitaxie des boîtes quantiques InAs/InP(001) de hautes performances pour les applications laser,” thesis, Rennes, INSA, 2009.
- [125] A. Stintz, T. J. Rotter, and K. J. Malloy, “Formation of quantum wires and quantum dots on buffer layers grown on InP substrates,” *J. Cryst. Growth*, vol. 255, no. 3, pp. 266–272, Aug. 2003.
- [126] Y. F. Li *et al.*, “Structural and optical characterization of InAs nanostructures grown on (001) and high index InP substrates,” *Appl. Surf. Sci.*, vol. 167, no. 3, pp. 191–196, Oct. 2000.
- [127] I. Alghoraibi *et al.*, “Self-assembled InAs quantum dots grown on InP (311)B substrates: Role of buffer layer and amount of InAs deposited,” *J. Cryst. Growth*, vol. 293, no. 2, pp. 263–268, Aug. 2006.
- [128] P. Caroff-Gaonac’H, “Croissance de boîtes quantiques d’InAs/InP (113) B pour les applications en télécommunications optiques,” INSA de Rennes, 2005.
- [129] P. Caroff *et al.*, “Achievement of High Density InAs Quantum Dots on InP (311)B Substrate Emitting at 1.55 μm ,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 8L, p. L1069, Aug. 2005.
- [130] A. Nakkar *et al.*, “Optical properties and morphology of InAs/InP (113)B surface quantum dots,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 23, p. 231911, Jun. 2008.
- [131] K. Klaime, “Laser à blocage de modes à base de boîtes quantiques InAs/InP pour les télécommunications optiques,” p. 197.
- [132] C. Paranthoen *et al.*, “Height dispersion control of InAs/InP quantum dots emitting at 1.55 μm ,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 78, no. 12, pp. 1751–1753, Mar. 2001.
- [133] P. Borri *et al.*, “Dephasing in InAs/GaAs quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 60, no. 11, pp. 7784–7787, Sep. 1999.
- [134] R. L. Cone, C. W. Thiel, and Y. Sun, “Rare-earth-doped materials with application to optical signal processing, quantum information science, and medical imaging technology,” presented at the SPIE OPTO, San Francisco, California, USA, 2012.
- [135] D. T. Nguyen, “Spectroscopie optique nonlinéaire à 1,55 μm de boîtes quantiques et de nanotubes de carbone,” PhD Thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011.
- [136] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation*, 2nd ed. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 1996.
- [137] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy: Vol. 2: Experimental Techniques*, 4th ed. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 2008.
- [138] P. Meystre and M. Sargent, *Elements of Quantum Optics*, 4th ed. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 2007.
- [139] R. C. Hilborn, “Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that,” *Am. J. Phys.*, vol. 50, no. 11, pp. 982–986, Nov. 1982.
- [140] S. D. T. Kruger, “Homogeneous Linewidth and Spectral Diffusion in Semiconductor Nanocrystals,” PhD Thesis, University of Oregon, 2006.
- [141] G. Moody *et al.*, “Intrinsic homogeneous linewidth and broadening mechanisms of excitons in monolayer transition metal dichalcogenides,” *Nat. Commun.*, vol. 6, no. 1, p. 8315, Nov. 2015.

- [142] A. Maruani, J. L. Oudar, E. Batifol, and D. S. Chemla, “Nonlinear Spectroscopy of Biexcitons in CuCl by Resonant Coherent Scattering,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 41, no. 20, pp. 1372–1375, Nov. 1978.
- [143] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito, and K. Nishi, “Homogeneous linewidth broadening in a $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ single quantum dot at room temperature investigated using a highly sensitive near-field scanning optical microscope,” *Phys. Rev. B*, vol. 63, no. 12, p. 121304, Mar. 2001.
- [144] J. M. Gérard, J. B. Génin, J. Lefebvre, J. M. Moison, N. Lebouché, and F. Barthe, “Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes,” *J. Cryst. Growth*, vol. 150, pp. 351–356, May 1995.
- [145] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park, “Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, no. 16, pp. 3005–3008, Apr. 1996.
- [146] G. Ortner *et al.*, “Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in InAs/GaAs quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 70, no. 20, p. 201301, Nov. 2004.
- [147] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, and J. M. Gérard, “Photoluminescence Up-Conversion in Single Self-Assembled InAs / GaAs Quantum Dots,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, no. 20, p. 207401, Oct. 2001.
- [148] I. Favero *et al.*, “Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in quantum dots: An effect of the fluctuating environment,” *Phys. Rev. B*, vol. 75, no. 7, Feb. 2007.
- [149] A. Berthelot *et al.*, “Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot,” *Nat. Phys.*, vol. 2, no. 11, p. 759, Nov. 2006.
- [150] P. Gilliot, J. Moniatte, O. Crégut, and R. Levy, “Homogeneous Linewidth and Dephasing Times of Excitons in CuBr Quantum Dots,” *Phys. Status Solidi A*, vol. 164, no. 1, pp. 441–444, Nov. 1997.
- [151] I. Favero *et al.*, “Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 68, no. 23, p. 233301, Dec. 2003.
- [152] T. Muller, T. Moldaschl, W. Parz, S. Golka, G. Strasser, and K. Unterrainer, “Femtosecond spectral hole burning spectroscopy as a probe of exciton dynamics in quantum dots,” *Acta Phys. Pol.-Ser. Gen. Phys.*, vol. 113, no. 3, pp. 777–782, 2008.
- [153] T. Müller, G. Strasser, and K. Unterrainer, “Ultrafast spectral hole burning spectroscopy of exciton spin flip processes in InAs/GaAs quantum dots,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 19, p. 192105, May 2006.
- [154] P. Borri and W. Langbein, “Four-wave mixing dynamics of excitons in InGaAs self-assembled quantum dots,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 19, no. 29, p. 295201, Jun. 2007.
- [155] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, “Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement,” *Phys. Rev. B*, vol. 71, no. 11, Mar. 2005.
- [156] C. Kammerer *et al.*, “Line narrowing in single semiconductor quantum dots: Toward the control of environment effects,” *Phys. Rev. B*, vol. 66, no. 4, p. 041306, Jul. 2002.
- [157] B. Urbaszek *et al.*, “Temperature-dependent linewidth of charged excitons in semiconductor quantum dots: Strongly broadened ground state transitions due to acoustic phonon scattering,” *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 3, p. 035304, Jan. 2004.
- [158] K. Asaoka, Y. Ohno, S. Kishimoto, and T. Mizutani, “Microscopic Photoluminescence Study of InAs Single Quantum Dots Grown on (100) GaAs,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38, no. 1S, p. 546, Jan. 1999.
- [159] J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Sasaki, M. Kujiraoka, and K. Ema, “Radiatively limited dephasing of quantum dot excitons in the telecommunications wavelength range,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 10, p. 103111, Sep. 2007.
- [160] T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, K. Takemoto, and T. Usuki, “Decoherence of single photons from an InAs/InP quantum dot emitting at a 1.3 μm wavelength,” *Phys. Status Solidi C*, vol. 6, no. 4, pp. 944–947, 2009.

- [161] Ł. Dusanowski *et al.*, “Phonon-assisted radiative recombination of excitons confined in strongly anisotropic nanostructures,” *Phys. Rev. B*, vol. 90, no. 12, Sep. 2014.
- [162] J. P. Reithmaier, G. Eisenstein, and A. Forchel, “InAs/InP Quantum-Dash Lasers and Amplifiers,” *Proc. IEEE*, vol. 95, no. 9, pp. 1779–1790, Sep. 2007.
- [163] P. Palinginis, S. Tavenner, M. Lonergan, and H. Wang, “Spectral hole burning and zero phonon linewidth in semiconductor nanocrystals,” *Phys. Rev. B*, vol. 67, no. 20, May 2003.
- [164] J. J. Berry, M. J. Stevens, R. P. Mirin, and K. L. Silverman, “High-resolution spectral hole burning in InGaAs-GaAs quantum dots,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 6, p. 061114, 2006.
- [165] C. Cornet *et al.*, “Time-resolved pump probe of 1.55 μm InAs/InP quantum dots under high resonant excitation,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 17, p. 171502, Apr. 2006.
- [166] T. H. Stievater *et al.*, “Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, no. 13, p. 133603, Sep. 2001.
- [167] T. Guenther *et al.*, “Coherent Nonlinear Optical Response of Single Quantum Dots Studied by Ultrafast Near-Field Spectroscopy,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, no. 5, p. 057401, Jul. 2002.
- [168] T. Takagahara, *Quantum Coherence Correlation and Decoherence in Semiconductor Nanostructures*. Academic Press, 2003.
- [169] A. M. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 71, no. 5, pp. 1929–1960, 2000.
- [170] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel, “A newcomer’s guide to ultrashort pulse shaping and characterization,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 43, no. 10, p. 103001, May 2010.
- [171] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert, “Programmable shaping of femtosecond optical pulses by use of 128-element liquid crystal phase modulator,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 28, no. 4, pp. 908–920, Apr. 1992.
- [172] D. R. Paschotta, “Gaussian Beams,” *RP Photonics Encyclopedia*. [Online]. Available: https://www.rp-photonics.com/gaussian_beams.html. [Accessed: 05-Oct-2019].
- [173] “Thermal properties of Indium Phosphide (InP).” [Online]. Available: <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/InP/thermal.html>. [Accessed: 07-Oct-2019].
- [174] J. S. Weiner, D. B. Pearson, D. A. B. Miller, D. S. Chemla, D. Sivco, and A. Y. Cho, “Nonlinear spectroscopy of InGaAs/InAlAs multiple quantum well structures,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 49, no. 9, pp. 531–533, Sep. 1986.
- [175] C. Cornet *et al.*, “Quantitative investigations of optical absorption in InAs/InP(311)B quantum dots emitting at 1.55 μm wavelength,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, no. 23, pp. 5685–5687, Dec. 2004.
- [176] D. Gammon, S. Rudin, T. L. Reinecke, D. S. Katzer, and C. S. Kyono, “Phonon broadening of excitons in GaAs/Al $_x$ Ga $_{1-x}$ As quantum wells,” *Phys. Rev. B*, vol. 51, no. 23, pp. 16785–16789, Jun. 1995.
- [177] D. Chemla, D. Miller, P. Smith, A. Gossard, and W. Wiegmann, “Room temperature excitonic nonlinear absorption and refraction in GaAs/AlGaAs multiple quantum well structures,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 20, no. 3, pp. 265–275, Mar. 1984.
- [178] Y. Chen, G. P. Kothiyal, J. Singh, and P. K. Bhattacharya, “Absorption and photoluminescence studies of the temperature dependence of exciton life time in lattice-matched and strained quantum well systems,” *Superlattices Microstruct.*, vol. 3, no. 6, pp. 657–664, Jan. 1987.
- [179] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, D. J. Eilenberger, P. W. Smith, A. C. Gossard, and W. T. Tsang, “Large room-temperature optical nonlinearity in GaAs/Ga $_{1-x}$ Al $_x$ As multiple quantum well structures,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 41, no. 8, pp. 679–681, Oct. 1982.

- [180] J. S. Weiner, D. S. Chemla, D. A. B. Miller, T. H. Wood, D. Sivco, and A. Y. Cho, "Room-temperature excitons in 1.6- μm band-gap GaInAs/AlInAs quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 46, no. 7, pp. 619–621, Apr. 1985.
- [181] Y. P. Varshni, "Temperature dependence of the energy gap in semiconductors," *Physica*, vol. 34, no. 1, pp. 149–154, Jan. 1967.
- [182] D. K. Gaskill, N. Bottka, L. Aina, and M. Mattingly, "Band-gap determination by photoreflectance of InGaAs and InAlAs lattice matched to InP," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 56, no. 13, pp. 1269–1271, Mar. 1990.
- [183] P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam, and F. Martelli, "Well-width dependence of exciton-phonon scattering in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ single quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 59, no. 3, pp. 2215–2222, Jan. 1999.
- [184] S. Rudin, T. L. Reinecke, and B. Segall, "Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductors," *Phys. Rev. B*, vol. 42, no. 17, pp. 11218–11231, Dec. 1990.
- [185] J. Lee, E. S. Koteles, and M. O. Vassell, "Luminescence linewidths of excitons in GaAs quantum wells below 150 K," *Phys. Rev. B*, vol. 33, no. 8, pp. 5512–5516, Apr. 1986.
- [186] B. Salem *et al.*, "Optical investigation of single self-organized InAs/InP quantum dashes emitting in the 1.3–1.5 μm range," *Nanotechnology*, vol. 16, no. 4, pp. 444–447, Feb. 2005.
- [187] Ł. Dusanowski *et al.*, "Exciton and biexciton dynamics in single self-assembled InAs/InGaAlAs/InP quantum dash emitting near 1.55 μm ," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 25, p. 253113, Dec. 2013.
- [188] C. Cornet, J. Even, and S. Loualiche, "Exciton and biexciton binding and vertical Stark effect in a model lens-shaped quantum box: Application to InAs/InP quantum dots," *Phys. Lett. A*, vol. 344, no. 6, pp. 457–462, Sep. 2005.
- [189] M. Benyoucef, M. Yacob, J. P. Reithmaier, J. Kettler, and P. Michler, "Telecom-wavelength (1.5 μm) single-photon emission from InP-based quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 16, p. 162101, Oct. 2013.
- [190] N. Chauvin, B. Salem, G. Bremond, G. Guillot, C. Bru-Chevallier, and M. Gendry, "Size and shape effects on excitons and biexcitons in single InAs/InP quantum dots," *J. Appl. Phys.*, vol. 100, no. 7, p. 073702, Oct. 2006.
- [191] S. Adachi, T. Miyashita, S. Takeyama, Y. Takagi, A. Tackeuchi, and M. Nakayama, "Polarization choices in exciton-biexciton system of GaAs quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 55, no. 3, pp. 1654–1660, Jan. 1997.
- [192] A. S. Lenihan, M. V. Gurudev Dutt, D. G. Steel, S. Ghosh, and P. Bhattacharya, "Biexcitonic resonance in the nonlinear optical response of an InAs quantum dot ensemble," *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 4, Jan. 2004.
- [193] G. D. Scholes, "Selection rules for probing biexcitons and electron spin transitions in isotropic quantum dot ensembles," *J. Chem. Phys.*, vol. 121, no. 20, pp. 10104–10110, Nov. 2004.
- [194] H. Zhao, S. Wachter, and H. Kalt, "Effect of quantum confinement on exciton-phonon interactions," *Phys. Rev. B*, vol. 66, no. 8, p. 085337, Aug. 2002.
- [195] M. Syperek *et al.*, "Carrier relaxation dynamics in InAs/GaInAsP/InP(001) quantum dashes emitting near 1.55 μm ," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 8, p. 083104, Aug. 2013.
- [196] P. Miska, J. Even, O. Dehaese, and X. Marie, "Carrier relaxation dynamics in InAs/InP quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, p. 191103, May 2008.
- [197] P. Borri *et al.*, "Ultrafast carrier dynamics and dephasing in InAs quantum-dot amplifiers emitting near 1.3- μm -wavelength at room temperature," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, no. 16, pp. 2633–2635, Oct. 2001.
- [198] N. M. Ravindra and V. K. Srivastava, "Temperature dependence of the energy gap in semiconductors," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 40, no. 10, pp. 791–793, Jan. 1979.
- [199] Z. M. Fang, K. Y. Ma, D. H. Jaw, R. M. Cohen, and G. B. Stringfellow, "Photoluminescence of InSb, InAs, and InAsSb grown by organometallic vapor phase epitaxy," *J. Appl. Phys.*, vol. 67, no. 11, pp. 7034–7039, Jun. 1990.

- [200] L. Besombes, "Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI," PhD Thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2001.
- [201] A. V. Uskov, A.-P. Jauho, B. Tromborg, J. Mørk, and R. Lang, "Dephasing Times in Quantum Dots due to Elastic LO Phonon-Carrier Collisions," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, no. 7, pp. 1516–1519, Aug. 2000.
- [202] A. Capua, O. Karni, G. Eisenstein, V. Sichkovskiy, V. Ivanov, and J. P. Reithmaier, "Coherent control in a semiconductor optical amplifier operating at room temperature," *Nat. Commun.*, vol. 5, no. 1, Dec. 2014.
- [203] W. P. Dumke, "Quantum Theory of Free Carrier Absorption," *Phys. Rev.*, vol. 124, no. 6, pp. 1813–1817, Dec. 1961.
- [204] J. I. Pankove, *Optical processes in semiconductors*. Englewood Cliffs, New Jersey: Prentice-Hall, 1971.
- [205] B. Jensen, "Quantum theory of free carrier absorption in polar semiconductors," *Ann. Phys.*, vol. 80, no. 2, pp. 284–360, Oct. 1973.
- [206] P. YU and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties*, 4th ed. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 2010.
- [207] S. Visvanathan, "Free Carrier Absorption Due to Polar Modes in the III-V Compound Semiconductors," *Phys. Rev.*, vol. 120, no. 2, pp. 376–378, Oct. 1960.
- [208] H. Y. Fan, W. Spitzer, and R. J. Collins, "Infrared Absorption in n-Type Germanium," *Phys. Rev.*, vol. 101, no. 2, pp. 566–572, Jan. 1956.
- [209] E. Haga and H. Kimura, "Free-Carrier Infrared Absorption in III-V Semiconductors III. GaAs, InP, GaP and GaSb," *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 19, no. 5, pp. 658–669, May 1964.
- [210] W. Walukiewicz *et al.*, "Electron mobility and free-carrier absorption in InP; determination of the compensation ratio," *J. Appl. Phys.*, vol. 51, no. 5, p. 2659, 1980.
- [211] O. K. Kim and W. A. Bonner, "Infrared reflectance and absorption of N-type InP," *J. Electron. Mater.*, vol. 12, no. 5, pp. 827–836, Sep. 1983.
- [212] W. P. Dumke, M. R. Lorenz, and G. D. Pettit, "Intra- and Interband Free-Carrier Absorption and the Fundamental Absorption Edge in n-Type InP," *Phys. Rev. B*, vol. 1, no. 12, pp. 4668–4673, Jun. 1970.
- [213] H. Soda, K. Iga, C. Kitahara, and Y. Suematsu, "GaInAsP/InP Surface Emitting Injection Lasers," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 18, no. 12, p. 2329, Dec. 1979.
- [214] K. Iga, "Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser (VCSEL)," *Proc. IEEE*, vol. 101, no. 10, pp. 2229–2233, Oct. 2013.
- [215] K. Iga, "Forty years of vertical-cavity surface-emitting laser: Invention and innovation," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 57, no. 8S2, p. 08PA01, Jul. 2018.
- [216] N. Basov, O. Bogdankevich, and A. Grasyuk, "9B4 - Semiconductor lasers with radiating mirrors," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 2, no. 9, pp. 594–597, Sep. 1966.
- [217] W. B. Jiang, S. R. Friberg, H. Iwamura, and Y. Yamamoto, "High powers and subpicosecond pulses from an external-cavity surface-emitting InGaAs/InP multiple quantum well laser," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 58, no. 8, pp. 807–809, Feb. 1991.
- [218] M. Kuznetsov, F. Hakimi, R. Sprague, and A. Mooradian, "High-power (>0.5-W CW) diode-pumped vertical-external-cavity surface-emitting semiconductor lasers with circular TEM₀₀ beams," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 9, no. 8, pp. 1063–1065, Aug. 1997.
- [219] J.-P. Tourrenc *et al.*, "Thermal optimization of 1.55 μm OP-VECSEL with hybrid metal–metamorphic mirror for single-mode high power operation," *Opt. Quantum Electron.*, vol. 40, no. 2, pp. 155–165, Mar. 2008.

- [220] J. Boucart *et al.*, “Metamorphic DBR and tunnel-junction injection. A CW RT monolithic long-wavelength VCSEL,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 5, no. 3, pp. 520–529, May 1999.
- [221] J. Rautiainen *et al.*, “2.6 W optically-pumped semiconductor disk laser operating at 1.57- μm using wafer fusion,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 26, pp. 21881–21886, Dec. 2008.
- [222] J. Lyytikäinen *et al.*, “1.3- μm optically-pumped semiconductor disk laser by wafer fusion,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 11, pp. 9047–9052, May 2009.
- [223] C. Symonds *et al.*, “High performance 1.55 μm vertical external cavity surface emitting laser with broadband integrated dielectric-metal mirror,” *Electron. Lett.*, vol. 40, no. 12, pp. 734–735, Jun. 2004.
- [224] M. Guina, A. Rantamäki, and A. Härkönen, “Optically pumped VECSELs: review of technology and progress,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 50, no. 38, p. 383001, Sep. 2017.
- [225] F. T. Arecchi, G. L. Lippi, G. P. Puccioni, and J. R. Tredicce, “Deterministic chaos in laser with injected signal,” *Opt. Commun.*, vol. 51, no. 5, pp. 308–314, Oct. 1984.
- [226] G. Baili *et al.*, “Novel architectures of very low RIN semiconductor lasers in extended cavities for high performance microwave links,” in *2006 International Topical Meeting on Microwave Photonics*, 2006, pp. 1–4.
- [227] J. R. Orchard, D. T. D. Childs, L. C. Lin, B. J. Stevens, D. M. Williams, and R. A. Hogg, “Tradeoffs in the Realization of Electrically Pumped Vertical External Cavity Surface Emitting Lasers,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 17, no. 6, pp. 1745–1752, Nov. 2011.
- [228] W. P. Pallmann *et al.*, “Ultrafast Electrically Pumped VECSELs,” *IEEE Photonics J.*, vol. 5, no. 4, pp. 1501207–1501207, Aug. 2013.
- [229] A. Caliman, A. Sirbu, A. Mereuta, K. Pierściński, V. Iakovlev, and E. Kapon, “14XX nm-wavelength electrically-pumped VECSELs fabricated by wafer fusion,” *Opt. Express*, vol. 21, no. 11, p. 13668, Jun. 2013.
- [230] N. Schulz *et al.*, “Effect of the Cavity Resonance-Gain Offset on the Output Power Characteristics of GaSb-Based VECSELs,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 19, no. 21, pp. 1741–1743, Nov. 2007.
- [231] P. Dumont, “Laser à semiconducteur pompé optiquement bifréquence pour les horloges à atomiques à piègeage cohérent d’atomes de Césium,” PhD Thesis, Université Paris-Saclay, 2016.
- [232] S. Calvez, J. E. Hastie, M. Guina, O. G. Okhotnikov, and M. D. Dawson, “Semiconductor disk lasers for the generation of visible and ultraviolet radiation,” *Laser Photonics Rev.*, vol. 3, no. 5, pp. 407–434, 2009.
- [233] Z. L. Liao, “Semiconductor wafer bonding via liquid capillarity,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 5, pp. 651–653, Jul. 2000.
- [234] W. J. Alford, T. D. Raymond, and A. A. Allerman, “High power and good beam quality at 980 nm from a vertical external-cavity surface-emitting laser,” *JOSA B*, vol. 19, no. 4, pp. 663–666, Apr. 2002.
- [235] J. E. Hastie *et al.*, “0.5-W single transverse-mode operation of an 850-nm diode-pumped surface-emitting semiconductor laser,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 15, no. 7, pp. 894–896, Jul. 2003.
- [236] A. J. Maclean, R. B. Birch, P. W. Roth, A. J. Kemp, and D. Burns, “Limits on efficiency and power scaling in semiconductor disk lasers with diamond heatspreaders,” *JOSA B*, vol. 26, no. 12, pp. 2228–2236, Dec. 2009.
- [237] A. J. Maclean *et al.*, “Continuous Tuning and Efficient Intracavity Second-Harmonic Generation in a Semiconductor Disk Laser With an Intracavity Diamond Heatspreader,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 44, no. 3, pp. 216–225, Mar. 2008.
- [238] L. Chaccour, “Développement d’une source VECSEL bi-fréquence pour la mesure de l’effet brillouin dans les fibres optiques,” PhD Thesis, Université Paris-EST, 2016.
- [239] O. G. Okhotnikov, *Semiconductor Disk Lasers: Physics and Technology*. John Wiley & Sons, 2010.

- [240] S. Pes, “Nanostructures-based 1.55 μm emitting Vertical-(External)-Cavity Surface-Emitting Lasers for microwave photonics and coherent communications,” PhD Thesis, INSA de Rennes, 2019.
- [241] Y. Kaneda *et al.*, “Continuous-wave all-solid-state 244 nm deep-ultraviolet laser source by fourth-harmonic generation of an optically pumped semiconductor laser using $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ in an external resonator,” *Opt. Lett.*, vol. 33, no. 15, pp. 1705–1707, Aug. 2008.
- [242] M. Scheller, J. M. Yarborough, J. V. Moloney, M. Fallahi, M. Koch, and S. W. Koch, “Room temperature continuous wave milliwatt terahertz source,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 26, pp. 27112–27117, Dec. 2010.
- [243] R. Debusmann *et al.*, “InGaN–GaN Disk Laser for Blue-Violet Emission Wavelengths,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 22, no. 9, pp. 652–654, May 2010.
- [244] M. Rahim, A. Khiar, F. Felder, M. Fill, H. Zogg, and M. W. Sigrüst, “5- μm vertical external-cavity surface-emitting laser (VECSEL) for spectroscopic applications,” *Appl. Phys. B*, vol. 100, no. 2, pp. 261–264, Aug. 2010.
- [245] T. Schwarzbäck *et al.*, “High-power InP quantum dot based semiconductor disk laser exceeding 1.3 W,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 9, p. 092101, Mar. 2013.
- [246] P. J. Schlosser, J. E. Hastie, S. Calvez, A. B. Krysa, and M. D. Dawson, “InP/AlGaInP quantum dot semiconductor disk lasers for CW TEM₀₀ emission at 716 – 755 nm,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 24, pp. 21782–21787, Nov. 2009.
- [247] C. Berger *et al.*, “Novel type-II material system for laser applications in the near-infrared regime,” *AIP Adv.*, vol. 5, no. 4, p. 047105, Apr. 2015.
- [248] D. A. Nakdali *et al.*, “High-Power Quantum-Dot Vertical-External-Cavity Surface-Emitting Laser Exceeding 8 W,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 26, no. 15, pp. 1561–1564, Aug. 2014.
- [249] S. Pes *et al.*, “Class-A operation of an optically-pumped 1.6 μm -emitting quantum dash-based vertical-external-cavity surface-emitting laser on InP,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 10, pp. 11760–11766, May 2017.
- [250] J. Paajaste, S. Suomalainen, R. Koskinen, A. Härkönen, M. Guina, and M. Pessa, “High-power and broadly tunable GaSb-based optically pumped VECSELs emitting near 2 μm ,” *J. Cryst. Growth*, vol. 311, no. 7, pp. 1917–1919, Mar. 2009.
- [251] C. Borgentun, J. Bengtsson, A. Larsson, F. Demaria, A. Hein, and P. Unger, “Optimization of a Broadband Gain Element for a Widely Tunable High-Power Semiconductor Disk Laser,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 22, no. 13, pp. 978–980, Jul. 2010.
- [252] M. Butkus *et al.*, “Quantum Dot Based Semiconductor Disk Lasers for 1–1.3 μm ,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 17, no. 6, pp. 1763–1771, Nov. 2011.
- [253] A. Khiar, M. Rahim, M. Fill, F. Felder, F. Hobrecker, and H. Zogg, “Continuously tunable monomode mid-infrared vertical external cavity surface emitting laser on Si,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, no. 15, p. 151104, Oct. 2010.
- [254] B. Heinen *et al.*, “106 W continuous-wave output power from vertical-external-cavity surface-emitting laser,” *Electron. Lett.*, vol. 48, no. 9, pp. 516–517, Apr. 2012.
- [255] F. Zhang *et al.*, “A 23-watt single-frequency vertical-external-cavity surface-emitting laser,” *Opt. Express*, vol. 22, no. 11, pp. 12817–12822, Jun. 2014.
- [256] J. P. Tourrenc *et al.*, “High power single-longitudinal-mode OP-VECSEL at 1.55 μm with hybrid metal-metamorphic Bragg mirror,” *Electron. Lett.*, vol. 43, no. 14, Jul. 2007.
- [257] A. Rantamäki *et al.*, “1 W at 785 nm from a frequency-doubled wafer-fused semiconductor disk laser,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 8, pp. 9046–9051, Apr. 2012.
- [258] C. M. N. Mateo *et al.*, “2.5 W continuous wave output at 665 nm from a multipass and quantum-well-pumped AlGaInP vertical-external-cavity surface-emitting laser,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 6, pp. 1245–1248, Mar. 2016.

- [259] S. Ranta, M. Tavast, T. Leinonen, N. V. Lieu, G. Fetzer, and M. Guina, "1180 nm VECSEL with output power beyond 20 W," *Electron. Lett.*, vol. 49, no. 1, pp. 59–60, Jan. 2013.
- [260] T. Leinonen, V. Iakovlev, A. Sirbu, E. Kapon, and M. Guina, "33 W continuous output power semiconductor disk laser emitting at 1275 nm," *Opt. Express*, vol. 25, no. 6, p. 7008, Mar. 2017.
- [261] J. Lyytikäinen *et al.*, "High-Power 1.48- μm Wafer-Fused Optically Pumped Semiconductor Disk Laser," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 23, no. 13, pp. 917–919, Jul. 2011.
- [262] H. Lindberg, M. Strassner, E. Gerster, and A. Larsson, "0.8 W optically pumped vertical external cavity surface emitting laser operating CW at 1550 nm," *Electron. Lett.*, vol. 40, no. 10, pp. 601–602, May 2004.
- [263] S. Kaspar *et al.*, "Recent Advances in 2- μm GaSb-Based Semiconductor Disk Laser—Power Scaling, Narrow-Linewidth and Short-Pulse Operation," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 19, no. 4, pp. 1501908–1501908, Jul. 2013.
- [264] T. Töpper *et al.*, "High-power 2.0 μm semiconductor disk laser—Influence of lateral lasing," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, no. 19, p. 192107, May 2012.
- [265] J. Paaaste, R. Koskinen, J. Nikkinen, S. Suomalainen, and O. G. Okhotnikov, "Power scalable 2.5 μm (AlGaIn)(AsSb) semiconductor disk laser grown by molecular beam epitaxy," *J. Cryst. Growth*, vol. 323, no. 1, pp. 454–456, May 2011.
- [266] B. Rösener *et al.*, "Continuous-wave room-temperature operation of a 2.8 μm GaSb-based semiconductor disk laser," *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 3, pp. 319–321, Feb. 2011.
- [267] T. D. Germann *et al.*, "Temperature-stable operation of a quantum dot semiconductor disk laser," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 93, no. 5, p. 051104, Aug. 2008.
- [268] C. G. E. Alfieri, D. Waldburger, M. Golling, and U. Keller, "High-Power Sub-300-Femtosecond Quantum Dot Semiconductor Disk Lasers," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 30, no. 6, pp. 525–528, Mar. 2018.
- [269] A. E. Abouelez, E. A. Eldiwany, and M. B. El_Mashade, "Design and analysis of passively mode-locked all-quantum-dot electrically-driven VECSEL," *Opt. Commun.*, vol. 446, pp. 1–9, Sep. 2019.
- [270] T. D. Germann *et al.*, "Quantum-dot semiconductor disk lasers," *J. Cryst. Growth*, vol. 310, no. 23, pp. 5182–5186, Nov. 2008.
- [271] M. Butkus *et al.*, "High-power quantum-dot-based semiconductor disk laser," *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 11, pp. 1672–1674, Jun. 2009.
- [272] D. A. Nakdali *et al.*, "High-Power Operation of Quantum-Dot Semiconductor Disk Laser at 1180 nm," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 27, no. 10, pp. 1128–1131, May 2015.
- [273] J. Rautiainen, I. Krestnikov, J. Nikkinen, and O. G. Okhotnikov, "2.5 W orange power by frequency conversion from a dual-gain quantum-dot disk laser," *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 12, pp. 1935–1937, Jun. 2010.
- [274] A. Rantamäki *et al.*, "Flip Chip Quantum-Dot Semiconductor Disk Laser at 1200 nm," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 24, no. 15, pp. 1292–1294, Aug. 2012.
- [275] A. R. Albrecht *et al.*, "Multi-watt 1.25 μm quantum dot VECSEL," *Electron. Lett.*, vol. 46, no. 12, pp. 856–857, Jun. 2010.
- [276] M. Butkus, J. Rautiainen, O. G. Okhotnikov, S. S. Mikhlin, I. L. Krestnikov, and E. U. Rafailov, "1270 nm quantum dot based semiconductor disk lasers," in *22nd IEEE International Semiconductor Laser Conference*, 2010, pp. 71–72.
- [277] J. A. Lott, A. R. Kovsh, N. N. Ledentsov, and D. Bimberg, "GaAs-Based InAs/InGaAs Quantum Dot Vertical Cavity and Vertical External Cavity Surface Emitting Lasers Emitting Near 1300 nm," in *2005 Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2005, pp. 160–161.
- [278] A. Rahimi-Iman, "Recent advances in VECSELs," *J. Opt.*, vol. 18, no. 9, p. 093003, Aug. 2016.

- [279] S. T. Keller, A. Sirbu, V. Iakovlev, A. Caliman, A. Mereuta, and E. Kapon, "8.5 W VECSEL output at 1270 nm with conversion efficiency of 59 %," *Opt. Express*, vol. 23, no. 13, p. 17437, Jun. 2015.
- [280] M. Guden and J. Piprek, "Material parameters of quaternary III – V semiconductors for multilayer mirrors at 1.55 μm wavelength," 1996.
- [281] K. Nechay *et al.*, "InAs/InP quantum dot VECSEL emitting at 1.5 μm ," *Appl. Phys. Lett.*, accepté.
- [282] G. V. der Sande, M. Peeters, I. Veretennicoff, J. Danckaert, G. Verschaffelt, and S. Balle, "The effects of stress, temperature, and spin flips on polarization switching in vertical-cavity surface-emitting lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 42, no. 9, pp. 898–906, Sep. 2006.
- [283] M. Alouini, F. Bretenaker, M. Brunel, A. L. Floch, M. Vallet, and P. Thony, "Existence of two coupling constants in microchip lasers," *Opt. Lett.*, vol. 25, no. 12, pp. 896–898, Jun. 2000.
- [284] K.-G. Hong, S.-T. Lin, and M.-D. Wei, "Polarization bistability associated with $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ and $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ transitions in Nd:YVO₄ laser with intra-cavity periodically poled lithium niobate Bragg modulator," *Opt. Express*, vol. 23, no. 14, pp. 17979–17987, Jul. 2015.
- [285] M. Alouini, "Theoretical and experimental study of Er³⁺ and Nd³⁺ solid-state lasers: Application of dual-frequency lasers to optical and microwave telecommunications," PhD Thesis, Université Rennes 1, 2001.
- [286] M. Brunel, A. Amon, and M. Vallet, "Dual-polarization microchip laser at 1.53 μm ," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 18, pp. 2418–2420, Sep. 2005.
- [287] L. Keruevan, H. Gilles, S. Girard, M. Laroche, and P. Leprince, "Self-mixing laser Doppler velocimetry with a dual-polarization Yb:Er glass laser," *Appl. Phys. B*, vol. 86, no. 1, pp. 169–176, Nov. 2006.
- [288] K. Audo, "Étude théorique et expérimentale des lasers solides bi-fréquences auto-régulés en bruit d'intensité via des non-linéarités intercavité," PhD Thesis, Université Rennes 1, 2018.
- [289] A. McKay, J. M. Dawes, and J.-D. Park, "Polarisation-mode coupling in (100)-cut Nd:YAG," *Opt. Express*, vol. 15, no. 25, pp. 16342–16347, 2007.
- [290] J.-D. Park, A. McKay, and J. M. Dawes, "Effect of gain anisotropy on low-frequency dynamics in four-level solid-state lasers," *Opt. Express*, vol. 17, no. 8, pp. 6053–6058, 2009.
- [291] S. Pradhan, G. E. Town, and K. J. Grant, "Dual-wavelength DBR fiber laser," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 18, no. 16, pp. 1741–1743, Aug. 2006.
- [292] E. H. Bernhardt *et al.*, "Photonic generation of stable microwave signals from a dual-wavelength Al₂O₃:Yb³⁺ distributed-feedback waveguide laser," *Opt. Lett.*, vol. 37, no. 2, pp. 181–183, Jan. 2012.
- [293] M. R. H. Khan, M. F. Islam, G. Sarowar, T. Reza, and M. A. Hoque, "Carrier generation using a dual-frequency distributed feedback waveguide laser for phased array antenna (PAA)," *J. Eur. Opt. Soc.-Rapid Publ.*, vol. 13, no. 1, Dec. 2017.
- [294] M. Brunel, M. Vallet, A. Le Floch, and F. Bretenaker, "Differential measurement of the coupling constant between laser eigenstates," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, no. 16, pp. 2070–2072, Apr. 1997.
- [295] A. McKay, P. Dekker, D. W. Coutts, and J. M. Dawes, "Enhanced self-heterodyne performance using a Nd-doped ceramic YAG laser," *Opt. Commun.*, vol. 272, no. 2, pp. 425–430, Apr. 2007.
- [296] P. Langot *et al.*, "Direct monitoring of the coupling constant in vectorial lasers," *Opt. Commun.*, vol. 148, no. 4, pp. 270–274, Mar. 1998.
- [297] S. De *et al.*, "Intensity noise correlations in a two-frequency VECSEL," *Opt. Express*, vol. 21, no. 3, pp. 2538–2550, Feb. 2013.
- [298] S. De *et al.*, "Phase Noise of the Radio Frequency (RF) Beatnote Generated by a Dual-Frequency VECSEL," *J. Light. Technol.*, vol. 32, no. 7, pp. 1307–1316, Apr. 2014.

- [299] H. Liu *et al.*, “Ultra-low noise dual-frequency VECSEL at telecom wavelength using fully correlated pumping,” *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 8, pp. 1794–1797, Apr. 2018.
- [300] A. E. Siegman, *Lasers*. University Science Books, 1986.
- [301] G. Brévalle *et al.*, “Direct measurement of the spectral dependence of Lamb coupling constant in a dual frequency quantum well-based VECSEL,” *Opt. Express*, vol. 27, no. 15, pp. 21083–21091, Jul. 2019.
- [302] H. Kogelnik and T. Li, “Laser Beams and Resonators,” *Appl. Opt.*, vol. 5, no. 10, pp. 1550–1567, 1966.
- [303] S. De, V. Potapchuk, and F. Bretenaker, “Influence of spin-dependent carrier dynamics on the properties of a dual-frequency vertical-external-cavity surface-emitting laser,” *Phys. Rev. A*, vol. 90, no. 1, p. 013841, Jul. 2014.
- [304] K. G. Günther, “Aufdampfschichten aus halbleitenden III-V-Verbindungen,” *Z. Für Naturforschung A*, vol. 13, no. 12, pp. 1081–1089, 1958.
- [305] A. Y. Cho and J. R. Arthur, “Molecular beam epitaxy,” *Prog. Solid State Chem.*, vol. 10, pp. 157–191, Jan. 1975.
- [306] S. A. James, L. C. Powell, and C. J. Wright, “Atomic Force Microscopy of Biofilms—Imaging, Interactions, and Mechanics,” *Microb. Biofilms - Importance Appl.*, Jul. 2016.
- [307] W. Koechner, *Solid-State Laser Engineering*, 6th ed. New York: Springer-Verlag, 2006.
- [308] M. Guézo, “Absorbant saturable ultra-rapide à multipuits quantiques pour le traitement tout-optique du signal,” PhD Thesis, INSA Rennes, 2004.
- [309] Z. Zhao *et al.*, “Cost-Effective Thermally-Managed 1.55- μm VECSEL With Hybrid Mirror on Copper Substrate,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 48, pp. 643–650, May 2012.

AVIS DU JURY SUR LA REPRODUCTION DE LA THESE SOUTENUE

Titre de la thèse:

Etude des boites quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL bi-fréquence cohérent

Nom Prénom de l'auteur : BREVALLE GAELE

Membres du jury :

- Madame BOUCHOULE Sophie
- Monsieur CASSABOIS Guillaume
- Madame BAILI Ghaya
- Monsieur PANAJOTOV Krassimir
- Monsieur FOLLIOU Hervé
- Monsieur PERRIN Mathieu
- Monsieur PARANTHOEN Cyril
- Monsieur ALOUINI Mehdi

Président du jury : *Madame Sophie Bouchoule.*

Date de la soutenance : 09 Décembre 2019

Reproduction de la these soutenue

- Thèse pouvant être reproduite en l'état
 Thèse pouvant être reproduite après corrections suggérées

Fait à Rennes, le 09 Décembre 2019

Le Directeur,

M'hamed DRISSI



Signature du président de jury

S. Bouchoule
S. Bouchoule

Titre : Etude des boites quantiques pour la réalisation d'un laser VECSEL bi-fréquence cohérent

Mots clés : VECSEL, boites quantiques InAs/InP, laser bi-fréquence, spectroscopie de saturation d'absorption, SHB, couplage

Résumé : Ce travail de thèse porte sur différentes études expérimentales permettant de lier les performances d'un laser bi-fréquence aux propriétés structurales et physiques des boites quantiques (BQs). L'objectif principal est de développer une nouvelle plateforme de lasers de type VECSEL (vertical external cavity surface emitting laser), intégrant des BQs InAs/InP émettant à $1,55 \mu\text{m}$, afin de réaliser des lasers bi-fréquences robustes, nécessitant un couplage faible entre les deux modes, et accordables. En premier lieu, une étude sur la croissance des BQs est présentée. Le contrôle des paramètres de croissance assure le contrôle de la densité et ainsi du couplage électronique entre BQs. La maîtrise de l'empilement des plans de BQs en forte densité permet la réalisation de la zone active du VECSEL. Une étude comparative est ensuite menée, permettant de quantifier le

couplage photonique par la mesure de l'élargissement homogène et le couplage électronique dans les puits, les bâtonnets et les BQs en fonction de la température et de la densité de porteurs. A cette fin, une technique de spectroscopie de saturation d'absorption, exploitant le phénomène de Spectral Hole Burning (SHB), a été développée. Les résultats obtenus sont liés à la dernière étude, portant sur le couplage entre les deux modes dans le VECSEL bi-fréquence, par la mesure de la constante de couplage de Lamb. Elle est d'abord mesurée dans un laser à puits quantiques, permettant d'étalonner le montage et d'avoir un point de comparaison. Finalement, les résultats préliminaires obtenus en régime multimode sur des VECSELS à BQs sont présentés, et s'avèrent être très prometteurs pour atteindre l'oscillation bi-fréquence.

Title : Investigation of quantum dots VECSEL for the realization of a coherent dual wavelength laser

Keywords: VECSEL, InAs/InP quantum dots, dual-frequency laser, saturated absorption spectroscopy, SHB, coupling

Abstract: This PhD work focuses on several experimental studies, allowing to relate the performances of a dual-frequency laser to the structural and physical properties of quantum dots (QDs). These works aim to develop a new kind of VECSEL (vertical external cavity surface emitting laser), integrating InAs/InP QDs emitting at $1.55 \mu\text{m}$, in order to make tunable and robust (i.e. involving a weak coupling between the two modes) dual-frequency lasers. Firstly, a growth study of the QDs is realized. The control of the growth parameters ensures the control of the density and the inter-QDs distance, and thus of the electronic coupling. Following this study, the growth parameters are carefully selected to get high density QDs; then the stack of the QDs planes forming the active medium is realized. The next study allowing the quantification of the photonic coupling by the homoge-

neous broadening and the electronic coupling is performed in quantum wells, quantum dashes and quantum dots, depending on the temperature and the carriers density. For this, saturated absorption spectroscopy, based on the Spectral Hole Burning (SHB) phenomenon, is used. The results obtained are linked to the last study that addresses the coupling between the two modes of the dual-frequency VECSEL by the measurement of the Lamb coupling constant. This measurement is performed in a quantum well based VECSEL first, to calibrate the experimental setup and to get the value for comparisons with QDs. Finally, preliminary results obtained in multimode operation of QDs based VECSEL are presented. They reveal to be very promising for the achievement of a dual-frequency operation.