Dynamique non-linéaire dans les microcavités laser tridimensionnelles à base de polymères : aspects physiques et technologiques

---

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE DE CACHAN

Spécialité Sciences Physiques

Présentée par **Clément Lafargue**

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE DE CACHAN

Devant le jury composé de :

Mme.	DE FORNEL	Frédérique	Directrice de Recherches
M.	ABRAM	Izo	Directeur de Recherches
M.	BOGOMOLNY	Eugène	Dirceteur de Recherches
Mme.	LEBENTAL	Mélanie	Maître de Conférences
M.	ZYSS	Joseph	Professeur des Universités
M.	ROTTER	Stefan	Professeur des Universités
M.	PERRY	Joseph W	Professeur des Universités

Préparée au LABORATOIRE DE PHYSIQUE QUANTIQUE ET MOLÉCULAIRE
ENS CACHAN/CNRS/UMR 8537
61, avenue du Président Wilson,
94235 CACHAN CEDEX (France)

Table des matières

Introduction **7**
0.1 Cadre du sujet de recherche . . . 7
0.2 Sujet de recherche . . . 9
0.3 Plan de la thèse . . . 10

Remerciements **13**

I 2D **15**

1 Système et intérêt **17**
1.1 Géométrie . . . 18
1.2 Résonances . . . 18
1.2.1 Équations de Maxwell . . . 18
1.2.2 Approximation de l'indice effectif . . . 20
1.2.3 Traitements numériques des équations bidimensionnelles . . . 22
1.2.4 Champ lointain . . . 25
1.2.5 Discussion sur le modèle 2D . . . 26
1.3 Approches semi-classiques . . . 26
1.3.1 Approximation eikonale . . . 26
1.3.2 Billards . . . 27
1.3.3 Stabilité d'une orbite . . . 27
1.3.4 Orbites en familles / isolées . . . 29
1.3.5 Scars, superscars, et orbites pseudo-périodiques . . . 29
1.3.6 Formule de trace . . . 32
1.4 Milieu amplificateur . . . 34
1.4.1 Structure électronique . . . 34
1.4.2 Décalage de Stokes . . . 37
1.4.3 Anisotropie des molécules . . . 38
1.4.4 Gain . . . 38

1.5 Effet Laser . . . 39
1.5.1 Problèmes . . . 39
1.5.2 Utilisation des connaissances du problème linéaire et mise à l'épreuve de l'expérience . . . 40
1.5.3 Apports de l'approche semi-classique . . . 41

2 Techniques **43**
2.1 Introduction . . . 43
2.2 Fabrication de microlasers plans . . . 44
2.2.1 Matériaux . . . 44
2.2.2 Lithographie UV . . . 45
2.2.3 Lithographie électronique . . . 46
2.2.4 Mise sur piédestal . . . 47
2.3 Montage expérimental de caractérisation optique . . . 47
2.3.1 Montage "2D" . . . 48
2.3.2 Images . . . 53
2.4 Scanner à angle solide (SAS) . . . 54
2.4.1 Cahier des charges du SAS et choix techniques de réalisation . . . 55
2.4.2 Géométrie . . . 57
2.4.3 Alignement du SAS . . . 58
2.4.4 Diagrammes d'émission en latitude . . . 60

3 Émission tri-dimensionnelle **63**
3.1 Introduction . . . 63
3.2 Diagrammes d'émission en latitude de cavités de type Fabry-Pérot . . . 63
3.2.1 Expérience . . . 64
3.2.2 Modèle pour le Fabry-Perot sur piedestal . . . 64
3.2.3 Fabry-Pérot sur le substrat . . . 66
3.2.4 Reproduticilité, sensibilité aux paramètres . . . 67
3.3 Diagrammes d'émission en latitude de cavités de formes variées. . . . 67
3.3.1 Emission 3D pour des orbites de type FP dans des cavités de contours différents 69
3.3.2 Émission par réfraction en incidence oblique . . . 69
3.3.3 Émission de microlasers carrés . . . 72

4 Émission du carré **73**
4.1 Émission en champ lointain . . . 74
4.2 Images . . . 75
4.3 Effet de la polarisation . . . 76
4.4 Modèles et Discussion . . . 78
4.4.1 Modèle de l'antenne dans l'hypothèse du losange . . . 78
4.4.2 Modèle de la sortie réfractive en transmission rasante . . . 80

4.4.3 Discussion . . . 82
4.5 Microlasers carrés sur piédestal . . . 83
4.6 Retour sur l'émission 3D en incidence oblique . . . 85

5 Triangles **87**
5.1 Introduction . . . 87
5.2 Orbites périodiques dans un triangle . . . 88
5.3 Triangle équilatéral . . . 90
5.4 Triangle rectangle . . . 91
5.4.1 Triangle "345" . . . 92
5.4.2 Triangle "paveur" . . . 93
5.5 Triangles isocèles . . . 95
5.6 Triangle général "quasi-isocèle", orbite diffractive . . . 98

6 Synchronisation de modes **101**
6.1 Modèle du train d'impulsions . . . 102
6.2 Autocorrélation linéaire . . . 103
6.2.1 Description du montage . . . 103
6.2.2 Résultats . . . 104
6.3 Autocorrélation non-linaire . . . 106
6.4 Discussion . . . 107

II 3D **109**

7 Microlasers cubiques réalisés par lithographie UV **113**
7.1 Orbites dans un cube . . . 114
7.2 Fabrication de cubes par lithographie à un photon . . . 118
7.2.1 Introduction de colorant . . . 119
7.3 Fabrication en Bisphénol . . . 122
7.3.1 Première série de cubes en Bisphénol A et Rhodamine . . . 124
7.3.2 Deuxième série de cubes en Bisphénol A et DCM . . . 125
7.4 Fabrication en SU8 par gravure plasma . . . 125
7.5 Autres méthodes de fabrication lithographique . . . 127
7.5.1 Introduction du colorant par diffusion . . . 127
7.5.2 Fabrication par micro-moulage . . . 128

8 Microlasers cubiques réalisés par polymérisation à deux photons (2PP) **133**
8.1 2PP à Cachan . . . 134
8.1.1 Échantillon et résine . . . 134
8.1.2 Montage optique . . . 136
8.1.3 Montage mécanique . . . 136

8.1.4 Résultats 138
8.1.5 Discussion 139
8.2 Technologie au Georgia Institute of Technology (Atlanta) 141
8.3 À Paris V 142

9 Autres formes, conclusion et perspectives **147**
9.1 Orbites dans un tétraèdre 147
9.2 Fibres en polystyrène 148
9.2.1 Méthodes de fabrication et de caractérisation 148
9.2.2 Discussion 149
9.3 Fibre-laser à Cristaux photoniques 150
9.4 Conclusion 151

10 Conclusion **155**

III Annexes **157**

A Paralléllogrammes **159**

B Données cubes de Saint-Petersbourg **165**
B.1 Première série 165
B.2 Deuxième série 165

C Calcul des polarisations de l'orbite 3D du cube **169**

Introduction

0.1 Cadre du sujet de recherche

L'invention du laser a bouleversé toutes les branches de la physique en tant qu'outil de base de la métrologie, et a changé la société en s'imposant dans d'innombrables applications industrielles pour le grand public dans les domaines des technologies de l'information, de la science des matériaux aux procédés de fabrication, du médical ou encore de l'art. L'étude même des lasers est un domaine de la physique qui a grandi sans discontinuer depuis les travaux pionniers d'Alfred Kastler sur le pompage optique jusqu'à la première réalisation dans le domaine optique par Theodor Maiman à Hughes Aircraft en 1960. Les techniques pour créer le LASER (*light amplification by stimulated emission of radiation*) et les régimes de fonctionnement sont aujourd'hui très diversifiés. L'amplification est réalisée par des cristaux, des atomes, des molécules, des ions ou des semi-conducteurs. Lorsque le gain est fourni par des molécules organiques, on parle de lasers à colorant, dont les premiers sont dus à Sorokin et Schäfer en 1966 [1, 2]. Cela fait généralement référence à des milieux liquides (colorants organiques en solution) pour lesquels les molécules-colorants sont en solution dans un circuit de recyclage. La vertu principale de ces lasers réside dans leur grande accordabilité en fréquence. La grande plage accessible est permise par la largeur intrinsèque du spectre de fluorescence du colorant alors que l'accord spectral du laser est réalisé par des éléments dispersifs intra-cavité. Il existe aussi des lasers à colorant à l'état solide présentant jusqu'à présent de sérieuses limites liées à leur fragilité, leur usure et à leurs régimes de fonctionnement possibles, dont le régime continu apparaît exclu. En contrepartie, le dispositif qui leur est associé est moins complexe, miniaturisable, et ne risque pas de relâcher des molécules polluantes dans son environnement, ce qui est un avantage pas anodin en vue d'applications comme sources intégrées. Une solution habituelle est d'utiliser des polymères émetteurs [3]. Une autre configuration possible, dite "hôte-invités" ("*guest-host*"), est de disperser de petites molécules de colorant dans une matrice en polymères.

Parmi ces lasers organiques à l'état solide, les lasers à rétroaction répartie (DFB) utilisent des couches minces micro-structurées en un réseau qui assure à la fois le rôle de confinement et de filtre [4]. Un autre type de configuration est le VECSOL, né d'une adaptation en matériaux organiques du VECSEL semi-conducteur [5]. Un film mince contenant le colorant est positionné entre deux miroirs dont l'un est semi-réfléchissant. Une autre solution technique consiste à utiliser un résonateur monolithique comportant un matériau diélectrique contenant le colorant. C'est la

solution qui a été privilégiée au LPQM dans l'équipe des microlasers organiques, en s'inspirant de la démonstration par l'équipe de Richard Chang d'un laser d'une simplicité étonnante : une micro-goutte d'éthanol contenant un colorant est un microlaser [6].

Le thème des microlasers rejoint naturellement le domaine toujours très animé à ce jour des micro-résonateurs optiques. Beaucoup d'efforts ont été consacrés aux résonateurs diélectriques à haut facteur de qualité que sont les micro-gouttes, les micro-sphères et les micro-tores. De multiples applications ont vu le jour comme des capteurs [7, 8] ou des dispositifs divers pour les télécommunications optiques [9, 10]. Les modes de galerie qu'ils contiennent sont cependant si bien confinés qu'il devient compliqué de les coupler à un système extérieur autrement que par une fibre effilée, ou un prisme, micro-positionné [11, 12]. Au contraire, les microlasers monolithiques à géométrie plane sont des candidats très sérieux en termes de sources cohérentes intégrées pour des applications de traitement de l'information opto-électronique ou de type "laboratoires sur puces" (dits "lab-on-chip"). Parmi les technologies variées en lice, les micro-résonateurs organiques présentent des avantages en termes de coût de fabrication et de fonctionnalité par rapport à la voie plus traditionnelle des matériaux à base de semi-conducteurs minéraux. La souplesse dans l'ingénierie de ces résonateurs vient du fait que la forme de la frontière peut être variée à volonté et conduit à des structures de champ électromagnétique spécifiques aux propriétés originales. En outre, l'électronique organique a déjà mené aux succès des OLED's (*organic light emitting diodes*), et l'émergence d'une voie mixte, alliant les avantages complémentaires des deux familles organique et inorganique est très prometteuse [3, 13, 14]. Ces applications industrielles constituent un premier débouché qui contribue à crédibiliser les prespectives des microlasers organiques. Ces derniers sont en effet susceptibles de renouveler en profondeur et de prolonger le domaine des OLED's qui a maintenant atteint le stade de la grande production industrielle et sort de ce fait du champ de la recherche fondamentale.

Dans ce contexte, des études fondamentales sont menées sur les résonateurs optiques ou plus généralement électromagnétiques [15] à base de diélectriques. Nos microlasers partagent avec eux un deuxième intérêt qui est d'offrir un vaste champ d'étude de phénomènes relevant de la dynamique non-linéaire et du chaos ondulatoire [16, 17, 18, 19, 20]. La prédiction des résonances de ces structures est un sujet de physique-mathématique en lui-même. Il rejoint, dans les cas où l'approximation semi-classique des petites longueurs d'ondes a un sens, le problème du jeu de billard dans des géométries à deux ou trois dimensions [16, 21]. Le cadre des faibles confinements, avec les faibles indices de réfraction des diélectriques organiques, apporte une certaine sélectivité sur les résonances. La dynamique non-linéaire du laser s'appuie sur ces résonances, produisant au final une émission cohérente dont les propriétés angulaires et spectrales traduisent à la fois les caractéristiques du colorant et celles du résonateur. La compréhension du lien entre les propriétés de base du résonateur (entre matériaux et géométrie) et ces caractéristiques émissives reste toutefois largement à établir et constitue à ce jour un défi fascinant, de nature à motiver une large palette pluridisciplinaire de chercheurs allant de la physique à la chimie et aux mathématiques pures et appliquées [22, 23, 24, 25]. Plus récemment, la recherche sur les lasers aléatoires, liée à la localisation de la lumière en milieu aléatoire, pousse le confinement dans ses retranchements [26, 27, 28].

Cependant, la compréhension des structures de champ électromagnétique spécifiques aux pro-

priétés originales qui existent dans les micro-résonateurs diélectriques s'est considérablement améliorée ces dernières années. La grande variété de formes de contour accessibles en laboratoire, facilement grâce aux matériaux organiques, facilite la recherche dans ce sens. Mais l'influence des coins et plus généralement des singularités, reste une énigme persistante. De même, il est actuellement très difficile d'évaluer l'écart entre le modèle réaliste tridimensionnel et sa réduction à deux dimensions, couramment effectuée grâce à une approche par l'indice effectif [29], pertinente dans des géométries en films minces, loin des bords.

D'autre part, les très récents progrès en micro-fabrication rendront bientôt accessibles toutes les formes rêvées pour les micro-résonateurs. La limitation aux géométries en films minces, seules pendant longtemps à fournir les qualités de surfaces optiques intéressantes, est en passe d'être levée. La lithographie en couches épaisses a progressé jusqu'à des facteurs de formes de l'ordre de la centaine [30]. Le phénomène d'actualité est surtout la généralisation des techniques de fabrication par photo-polymérisation à deux photons. Inventée et développée depuis une douzaine d'années par des groupes de chimistes et de physiciens pionniers [31, 32, 33], cette technique sort aujourd'hui des laboratoires comme outil pour la physique microscopique en général [34, 35, 36, 37]. Elle révolutionne le champ des possibles en donnant accès à toutes les formes tridimensionnelles (3D) sans la limite aux formes cylindriques, intrinsèques à la lithographie sous masque. Sur ce domaine particulier, les semi-conducteurs sont handicapés par les contraintes de dépôt épitaxial alors que la silice excelle dans le domaine géométriquement très spécialisé des micro-sphères à haut facteur de qualité. La polymérisation à deux photons sera, tôt ou tard, mise à profit pour la conception de nouveaux types de micro-résonateurs offrant une adaptabilité encore plus grande à toutes sortes d'applications industrielles ou de recherche. D'un point de vue fondamental, tout reste à faire, car le jeu de billard 3D rélève d'une problématique de mathématique largement ouverte, et que les simulations 3D ne donnent accès pour le moment qu'à des systèmes de tailles très réduites, comparables à la longueur d'onde.

0.2 Sujet de recherche

Le projet du groupe MICROLASERS au LPQM de l'ENS de Cachan consiste à caractériser par des expériences associées à des études théoriques (analytiques et numériques) l'émission produite par des microlasers organiques. L'expérience inclut la fabrication des microlasers, qui, jusqu'à mon arrivée, concernait exclusivement la technique de lithographie de couches minces organiques.

La richesse de ce sujet d'étude s'exprime par les innombrables formes de microlasers fabriqués par lithographie, présentant une grande variété de comportements spectaculairement différents et liés aux types de géométries. L'outil d'analyse privilégié est le tracé de rayon dont la légitimité s'obtient en deux temps. Tout d'abord la configuration en films minces légitime le traitement du système 3D par une approximation 2D dite "d'indice effectif". Ensuite, la taille transversale étant grande devant la longueur d'onde, l'approximation semi-classique des petites longueurs d'onde est pertinente et justifie l'approche de l'optique géométrique au sein du micro-résonateur. Toutefois l'influence des effets tridimensionnels, négligés par l'approximation de l'indice effectif, reste difficile

à évaluer. De plus, certains comportements observés ne sont pas expliqués de manière satisfaisante. Dans cette étude, la diffraction par les singularités de flanc et de frontière joue un rôle crucial. Dans tous les cas, l'émission est nécessairement 3D (e.g. émission hors plan du substrat), ce qui avait été très rarement envisagé et encore moins étudié avant cette thèse. Si, dans le futur, des systèmes optoélectroniques doivent contenir plusieurs microlasers intégrés sur la même puce, l'inévitable émission 3d produira des effets indésirables de courts-circuits optiques, si la géométrie de l'émission n'est pas maîtrisée en profondeur. Une partie de cette thèse a donc consisté à proposer une nouvelle caractérisation de l'émission par des microlasers, en nous concentrant sur l'aspect 3D.

D'autre part, la fabrication de microstructures 3D de formes quelconques pose un défi technologique et physique que nous avons commencé à affronter par le biais de technologies polymères. Nous avons travaillé dans ce contexte à la fabrication de micro-résonateurs 3D, en particulier cubiques, par les deux voies que sont la lithographie et la polymérisation à deux photons. Sur la base de notre maîtrise antérieure des structures 2D, nous avons caractérisé l'émission des prototypes obtenus. Les problèmes d'indentification d'orbites fermées et de leur contribution à l'émission laser, sont encore largement ouverts en 3D et intéressent les communautés de la photonique, du chaos ondulatoire, et plus généralement de la physique mathématique.

0.3 Plan de la thèse

Cette thèse avait pour but initial d'étudier des effets 3D dans des micro-résonateurs 3D qui n'existaient pas et qu'il nous a fallu fabriquer. Le développement des technologies de fabrication a commencé très tôt, dès le master, par un stage de quatre semaines dans le groupe de Joseph Perry, spécialiste de la fabrication par la technique de photo-polymérisation à deux photons. Les efforts se sont poursuivis à Cachan, tout au long de la thèse, en impliquant Séverin Charpignon, Aurélia Olivier, Joseph Lautru et Nina Sobeschuck ainsi qu'à Paris V avec la contribution de Marc Guillon et Eirini Papagiakoumou dans le groupe de Valentina Emiliani. Mais les premiers échantillons fonctionnels, c'est-à-dire émettant un rayonnement laser, ont mis longtemps à voir le jour. En parallèle, il fallait mettre au point un outil de caractérisation de l'émission 3D. Cet outil, appelé Scanner à Angle Solide (SAS), a été réalisé de façon relativement rapide grâce à l'aide de collègues du Laboratoire de Mécanique et de Technologie de l'ENS de Cachan, Christophe Cluzel et Xavier Pinelli, qui ont bien voulu nous faire bénéficier de leur savoir-faire en conception de systèmes mécaniques de haute précision. Aussi cet outil a-t-il été utilisé en premier lieu sur des échantillons issus de procédés de fabrication traditionnels de l'équipe microlasers, permettant par la même occasion de parfaire et de compléter notre connaissance de l'émission de composants dont nous ne maîtrisions auparavant le comportement que dans le seul contexte 2D. Ainsi, la première partie de la thèse est dédiée à l'étude de l'émission, en général 3D, par des microlasers issus de la filière technologique des couches minces. Elle comprend six chapitres qui sont indépendants sauf les deux premiers qui introduisent respectivement les bases théoriques et technologiques nécessaires à la compréhension des quatre autres chapitres.

Le premier chapitre décrit le champ d'étude un peu particulier que constituent les microlasers

de notre fabrication à la frontière des physiques micro- et macrosopiques. J'y expose les outils théoriques utiles à la compréhension de l'effet laser dans ces micro-résonateurs organiques dopés en colorant organique. L'existence de ces outils est due, en bonne partie, aux travaux de doctorats de mes prédécesseurs dans le groupe microlasers du LPQM : Tahar Ben Messaoud, Mélanie Lebental, Nadia Djellali, Sergey Lozenko et Iryna Gozhyk.

Le chapitre 2 est focalisé sur la technique. J'y décris les outils expérimentaux présents au laboratoire à mon arrivée et que j'ai appris à utiliser. Pour la fabrication d'échantillons planaires, les méthodes sont issues du savoir-faire des anciens laboratoires du CNET de Bagneux. Pour leur caractérisation optique, le montage expérimental est inspiré des activités de Richard Chang à l'université de Yale aux USA. Les thèses précédentes ont chacune fait progresser le savoir-faire et notre compréhension du sujet, avec le soutient de Rolland Hierle et Joseph Lautru, ingénieurs salle-blanche au LPQM et à l'Institut d'Alembert et de Christian Ulysse du Laboratoire de Photonique et Nano-structures. Je présente aussi les outils de caractérisation optique que j'ai développés durant mon stage doctoral, dont en particulier le Scanner à Angle Solide (SAS) et l'imagerie par une lunette. Ces nouveaux outils sont utilisables et ont été utilisés pour tous les types d'échantillons, y compris ceux de la deuxième partie II de cette thèse.

Le chapitre 3 présente justement les premiers résultats obtenus grâce au SAS : les diagrammes d'émission 3d, dits "en latitude", de microlasers de type Fabry-Perot, qui sont les plus simples de notre palette.

Le chapitre 4 est spécialement dédié au cas particulier des microlasers de forme carrée. Leurs caractéristiques d'émission 3d a servi de point de départ à une réinterprétation de la structure des modes lasants. Cette réinterprétation permet d'expliquer à la fois les diagrammes d'émission 3d ainsi que des résultats expérimentaux connus depuis quelques années mais résistant jusqu'à présent à toute description théorique.

Le chapitre 5 est dédié à la forme triangulaire, dont la dynamique est plus riche que ne pourrait le laisser penser la simplicité du contour. Ce travail a été en réalité commencé durant mon stage de master 2 au LPQM, mais la plupart des conclusions non-triviales de ce chapitre ont nécessité une maturation bien plus longue, ainsi que certains nouveaux outils (l'imagerie par une lunette en particulier), pour émerger.

Enfin le chapitre 6 est un peu à part de plusieurs point de vue, même si la question qui y est étudiée a des répercutions importantes pour toutes les autres questions au sujet de l'émission. La question concerne davantage la dynamique du laser que les diagrammes d'émission, au cœur des deux chapitres précédents. Il s'agit de savoir si les modes laser co-existants dans les microlasers sont synchronisés ou non. Nous avons une fois de plus choisi les résonateurs les plus simples de notre collection (de type Fabry-Perot) pour mener cette étude. Le montage expérimental utilisé à l'occasion est décrit dans cette partie.

La deuxième partie de la thèse est dédiée aux échantillons 3D dont la fabrication a d'abord nécessité l'acquisition d'un savoir-faire nouveau, puisque le type de réalisations visé, quelque peu spécifique, n'avait jamais été abordé à l'ENS de Cachan, ni ailleurs à notre connaissance. Il s'agit de fabriquer des micro-résonateurs de formes géométriques 3D simples comme des polyèdres élémentaires, les matériaux restant des polymères dopés en colorants organiques. De nombreuses

stratégies de fabrication ont été testées pendant mon doctorat, que l'on peut classifier clairement en deux familles de méthodes : la lithographie à un photon et l'écriture directe par laser à deux photons. Plusieurs des stratégies employées ont mené à un succès mitigé, mais bien présent, dans le sens où des micro-lasers fonctionnels et même performants ont bien été fabriqués, mais dont la géométrie n'est pas très précisément celle visée, rendant l'interprétation des données acquises difficile. Le premier chapitre (chapitre 7) de cette partie concerne le tracé de rayon dans un billard à 3D, principalement dans le cas du billard cubique (un polyèdre des plus simples, surtout du point de vue de la fabrication). On y montre qu'au tracé d'orbite similaire aux billards 2D de la première partie s'ajoute une subtilité liée à la polarisation du champ. Le chapitre 8 concerne les méthodes de fabrication de type lihographie, inspirées des techniques bien connues dans la salle blanche de l'ENS de Cachan et développées avec l'aide de Joseph Lautru . Dans le chapitre 9 sont décrites les méthodes de photo-polymérisation à deux photons. Enfin je décris dans le chapitre 10 quelques autres formes de micro-résonateurs 3D sur lesquels nous avons eu l'occasion de nous pencher et donne en conclusion des perspectives de travail.

Remerciements

Je suis très reconnaissant à Mélanie Lebental et Joseph Zyss de m'avoir proposé un sujet de travail riche et passionant, puis de m'avoir aider pendant ces trois années, chacun dans son style, à le mener à bien. Leur enthousiasme, leur courage et leur grand dévouement à la recherche m'ont souvent permis de sortir des ornières.

Je dois aussi beaucoup à mes amis et collègues du groupe microlasers Sergey Lozenko, Iryna Ghozyk et Stefan Bittner qui n'ont jamais hésité à me sacrifier de leur temps et à partager leur savoir. Travailler avec Salim Zerkani, Séverin Charpignon, Viktor Tsvirkun, Maxime Boudreau, Nina Sobeshchuck et David Ulbricht a aussi été un plaisir et un honneur.

Je remercie tous mes amis du LPQM, de l'Institut d'Alembert et de l'ENS, étudiants personnels, enseignants et chercheurs. Leur présence était la base d'un environement de travail stimulant et rassurant à la fois. Il y avait Trang, Xiao, Marie-Pierre, Anaïs, Ludovic, Abdallah, Yi, Sanogo, Joseph, Isabelle, Isabelle, Jean, Loïc, Armand, Géro, Sandoko, Jean-Philippe, Camille, Ngun, Bassam, Katia, Khaoula, Armand, Qinggele, Emmanuelle, Emmanuel, Christian, Luc, Jean-Luc, Jean-Baptiste, André, Frédéric, Nadia, Simona, Anthony, Cyrielle, Aurélia, Gaelle, Marjolaine, Gilles, Rachel, Olivier, Tanh, Chi-Than, Diep, Thien, Ginette, Fabien, Jean-Sébastien, François, Sophie, Soroush, Simon, Vincent, Pierre, Thomas, Rigo, Piernicola, Margarita, Dominique, Vasyl, Elena, Marcin, Adi, Anu, David, Fabio, Manish, Nitin, Silvia, Mayeul, Radek, Victor, Renuka, Laura, Christine, Elin, Hugo, Félix, Amed, Brigitte, Chantal, Colette, Michel, ...

J'ai aussi rencontré et échangé avec de nombreuses personnes extérieures à l'ENS qui ont contribué à rendre cette période riche scientifiquement autant qu'humainement. Merci à Christian Ulysse pour les multiples échantillons fabriqués, merci à Anshuman, au Pr. Narayan, à Alexander Nositch, Eugène Bogomolny, Stefan Rotter et Joseph Perry. Les trois professeurs dernièrement cités m'ont fait l'honneur de particper à mon jury en venant parfois de loin. Je les en remercie.

Je remercie également Frédérique de Fornel et Izo Abram d'avoir accepter d'être rapporteurs du manuscrit.

Je remercie enfin mes parents qui ont laissé la Chalosse à son sort pour venir préparer le pot de thèse, et Marie pour son soutient jusqu'à la dernière heure du 18 Septembre 2013.

Première partie

2D

Chapitre 1

Système et intérêt

Les microlasers organiques se composent, comme tous les lasers, d'un milieu amplificateur et d'un environnement à contre-réaction résonante, pouvant être une cavité optique, ou un milieu confinant moins bien défini comme dans le cas des lasers aléatoires. Ici le milieu amplificateur, constitué de molécules organiques pompées optiquement, et désigné sous le nom de *colorant*, occupe tout le volume de la cavité dont les frontières sont matérialisées par les bords d'une structure diélectrique transparente. Différentes espèces moléculaires actives sont utilisées. Dans cette partie toutefois, la matrice est toujours en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) dont les caractéristiques (indice de réfraction n_{p} de 1.49 à 600 nm et dispersion) sont bien connues aux longueurs d'ondes visibles qui nous intéressent.

Une des particularités de nos microlasers est que le champ électromagnétique occupe l'ensemble du volume de la cavité selon des modes dont la structure est réellement à deux ou trois dimensions. A priori, ces modes lasers sont difficilement calculables, même avec une connaissance exacte de la forme du contour. D'un point de vue de rayon ou de photons, la lumière est piégée dans le résonateur et se réfléchit ou rebondit sur les parois, comme le ferait une particule dans un billard à 2 ou 3 dimensions. Je décrirai dans ce chapitre en quoi la vision du résonateur en "billard à photon" est intéressante. Toutefois, à la différence d'un billard fermé et d'un résonateur métallique pour lesquels les particules et les photons sont toujours réfléchis par les parois, les résonateurs diélectriques apparaissent comme des billards ouverts puisque les photons ont une probabilité non-négligeable de sortir par réfraction à chaque réflexion. Dans nos expériences avec des matériaux organiques, les indices optiques plutôt faibles, en comparaison avec les micro-résonateurs à base de matériaux semi-conducteurs, rendent nos lasers peu confinant et élèvent leur seuil.

Cette partie est dédiée aux principes fonctionnement de nos lasers. Je commence par décrire le phénomène de résonance dans nos micro-résonateurs dont les procédés de fabrication sont décrits au chapitre 2.2. Je donne pour cela toutes leurs spécifications y compris les détails quantitatifs sur la géométrie, les propriétés optiques des matériaux et autres paramètres dans les conditions expérimentales du laboratoire. Je décris par la suite les outils semi-classiques qui sont à notre disposition pour étudier et comprendre les résonances optiques dans les micro-résonateurs. Enfin

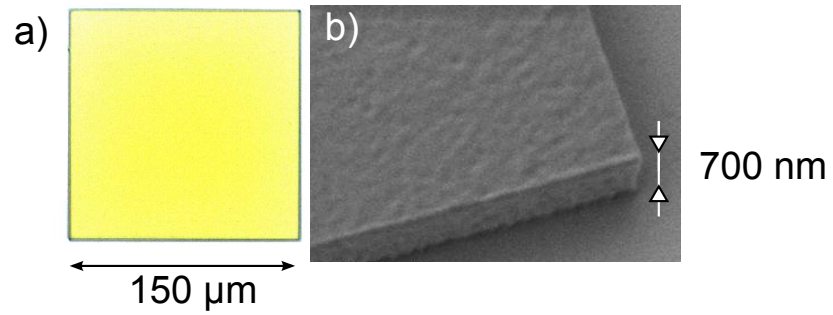


Figure 1.1 – Géométrie des microlasers "*2D*" a – photographie au microscope optique. La couleur jaune est due à la présence des molécules de DCM (cf paragraphe 2.2.1 sur les colorants). b – image au microscope électronique à balayage.

je décris le milieu amplificateur composé de molécules de colorant pompées optiquement. Le dernier paragraphe concerne le problème difficile que constitue la prise en compte à la fois du résonateur et du milieu multi-mode amplificateur, problème qui reste au demeurant largement ouvert.

1.1 Géométrie

Je décris ici la structure générale d'un microlaser dit "*2D*" ou "planaire", que l'on appelle ainsi car il est gravé dans un film mince (voir fabrication au chapitre 2.2). L'épaisseur d choisie est d'environ 700 nm, de l'ordre de la longueur d'onde du microlaser (autour de 600 nm), afin d'obtenir un guidage monomode (cf paragraphe 1.2.2). Son contour dans le plan du substrat peut prendre une forme arbitraire dont la dimension typique est généralement de l'ordre de 200 μm. Les bords latéraux sont verticaux de sorte que la structure organique a une forme cylindrique (i.e. base arbitraire et bords droits) très aplatie. Par convention, nous choisissons l'axe z perpendiculaire au plan du substrat, qui contient donc les axes x et y. Elle repose sur une couche de 2 μm de silice elle-même située sur un substrat de silicium.

Les conditions de passage des champs électro-magnétiques entrainent un certain confinement de la lumière à l'intérieur de la structure, qui est à l'origine de l'effet de cavité et partant, de l'effet laser. Le nom de "cavité" désigne ainsi la partie pleine de la structure car il s'agit d'une cavité pour la lumière. La cavité n'est cependant pas parfaitement confinante, ce qui permet l'émission.

1.2 Résonances

1.2.1 Équations de Maxwell

La dynamique des champs électromagnétiques à l'intérieur et aux alentours d'une micro-structure est régie par les équations de Maxwell qui, pour un milieu diélectrique non magnétique, et en l'ab-

sence de charge et de courant, s'écrivent

$$\begin{aligned} \mathrm{rot}\vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}\,, \\ \mathrm{div}\vec{E} &= 0\,, \\ \mathrm{div}\vec{B} &= 0\,, \\ \mathrm{rot}\vec{B} &= \mu_0\epsilon\frac{\partial \vec{E}}{\partial t}\,, \end{aligned} \tag{1.1}$$

où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide et où ϵ est la permittivité du matériau diélectrique, reliée à l'indice de réfraction par la relation $\epsilon = \epsilon_0 n^2$. Une remarque préliminaire est que la présence du colorant entraîne un facteur de gain et une dispersion qui viennent perturber les équations ci-dessus. Une première approche pour étudier les résonances est de considérer une structure "passive", c'est à dire de faire abstraction du colorant, comme si le matériau était un diélectrique transparent sans gain.

Ces équations décrivent la propagation des champs à l'intérieur des matériaux respectifs polymère, air, silice et silicium. Dans chacun d'eux, les champs obéissent à l'équation d'onde :

$$\left(\Delta - \frac{n_{\mathrm{m}}^2}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)\left\{\begin{array}{c}\vec{E}\\ \vec{B}\end{array}\right\} = 0 \tag{1.2}$$

où l'indice optique n_{m} est celui de chaque matériau et c est la vitesse de propagation de la lumière dans le vide et Δ le Laplacien. Découlent aussi des équations de Maxwell les conditions de passage aux interfaces entre deux diélectriques. Cela revêt une importance capitale pour nous puisque dans les structures en matériau diélectrique, le confinement se fait uniquement par les réflexions inhérentes à ces interfaces entre le matériau intérieur et l'extérieur de la cavité, d'indices réfractifs différents. Ces conditions de passage s'expriment, en l'absence de charge et de courant de surface, par la continuité du champ magnétique $\vec{B}$, la continuité de la composante du champ électrique tangentielle à l'interface $\vec{E}\wedge\vec{n}$ où $\vec{n}$ est un vecteur normal à l'interface et la continuité de la composante normale de l'induction électrique $\vec{D}\cdot\vec{n} = n_{\mathrm{m}}^2\vec{E}\cdot\vec{n}$ (et non de celle du champ électrique).

Les équations de propagations couplées aux conditions de passage trouvent éventuellement alors [38] des solutions de la forme $\vec{E}(\vec{r},t) = \Re\left[\vec{\Psi}(\vec{r})e^{-i\omega t}\right]$ avec $\omega = \omega' + i\omega''$. Une telle solution, associée à des conditions aux limites de radiation (dites de Sommerfeld), est appelée résonance de la cavité. La structure spatiale $\vec{\Psi}(\vec{r})$ est alors constante dans le temps et satisfait à l'équation de Helmoltz

$$\left(\Delta + n_{\mathrm{m}}^2 k^2\right)\vec{\Psi}(\vec{r}) = 0\,, \tag{1.3}$$

où $k = \omega/c$. Mais l'amplitude croît ou décroît dans le temps en fonction du signe de ω''. Pour une cavité passive, composé seulement du matériau diélectrique et donc sans gain, le signe de ω'' doit, impérativement, être négatif, de façon à exprimer une décroissance exponentielle de l'amplitude de la fonction d'onde. Toutefois obtenir la distribution d'onde est loin d'être trivial et il est en général, à 3 dimensions, hors de portée de trouver l'expression de la fonction d'onde vectorielle.

Même une approche numérique (par exemple par la méthode des éléments finis) requiert une puissance de calcul aujourd'hui trop grande pour les échelles spatiales correspondant à nos structures ($R \sim 100\lambda$). En fait très récemment, les simulations 3D pour des systèmes plus petit

($R \sim 10\lambda$) commencent à être envisagées par des théoriciens comme notamment Marc Durufle de l'INRIA à Bordeaux ou Stefan Rotter à l'Université Technologique de Vienne, ce qui pourrait apporter de nombreux éclaircissement par rapport aux simulations bi-dimensionnelles présentées dans la prochaine section.

Afin de décrire les résonances dans les cavités de notre fabrication, nous nous appuyons sur la spécificité de leur géométrie plane et en tirons l'approximation très opérationnelle de l'indice effectif, selon laquelle les surfaces "horizontales" (parallèles à x et y) d'un côté et les surfaces "verticales" (parallèles à z) ne jouent pas le même rôle dans le confinement du champ.

1.2.2 Approximation de l'indice effectif

La grande taille transversale des cavités relativement à leur épaisseur, permet de considérer la couche en polymère comme un guide d'onde. L'approche du guide d'onde nous permet de nous intéresser seulement à la lumière guidée dont on peut espérer qu'elle sera confinée. Dans un guide d'onde infini on cherche ainsi une solution propagative de la forme $\vec{\Psi}(\vec{r}) = \vec{u}(z)e^{in_{\text{eff}}kx}$ Ainsi la dépendance en z ne peut pas prendre n'importe quelle forme puisque les équations de propagation deviennent dans chaque milieu d'indice n_{m}

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + (n_{\text{m}}^2 - n_{\text{eff}}^2)k^2\right)\vec{u}(z) = 0\,, \tag{1.4}$$

et la dépendance en z est en conséquence donnée de la forme

$$\vec{u}(z) \propto \exp(-zk\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_{\text{air}}^2}) \tag{1.5}$$

dans l'air,

$$\vec{u}(z) = \vec{\alpha}_+ \exp(izk\sqrt{n_{\text{p}}^2 - n_{\text{eff}}^2}) + \vec{\alpha}_- \exp(-izk\sqrt{n_{\text{p}}^2 - n_{\text{eff}}^2}) \tag{1.6}$$

dans le polymère et

$$\vec{u}(z) \propto \exp(zk\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_{\text{s}}^2}) \tag{1.7}$$

dans la silice. Enfin les conditions de passage du champ électrique, différentes pour une polarisation orientée suivant z (normal à la surface) où x, y (parallèle à la surface) créent une distinction entre deux types de modes guidés appelés respectivement TM pour transverse magnétique ($B_z = 0$) et TE pour transverse électrique ($E_z = 0$). Les conditions de continuité étant différentes, l'indice effectif permettant le raccord de la fonction d'onde entre les différents matériaux prend deux valeur distinctes pour les modes TE et TM.

Suivant les valeurs de l'épaisseur de la couche et de son indice indice optique, il peut exister aucun, un, ou plusieurs modes TE et TM. L'indice de chacun de ces modes est donné par l'équation découlant du système précédent 1.5 [39] :

$$\frac{2\pi d}{\lambda}\sqrt{n_{\text{p}}^2 - n_{\text{eff}}^2} = \arctan\left(\eta_1 \frac{\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_{\text{s}}^2}}{\sqrt{n_{\text{air}}^2 - n_{\text{eff}}^2}}\right) + \arctan\left(\eta_2 \frac{\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_{\text{air}}^2}}{\sqrt{n_{\text{air}}^2 - n_{\text{eff}}^2}}\right) + \pi l\,, \tag{1.8}$$

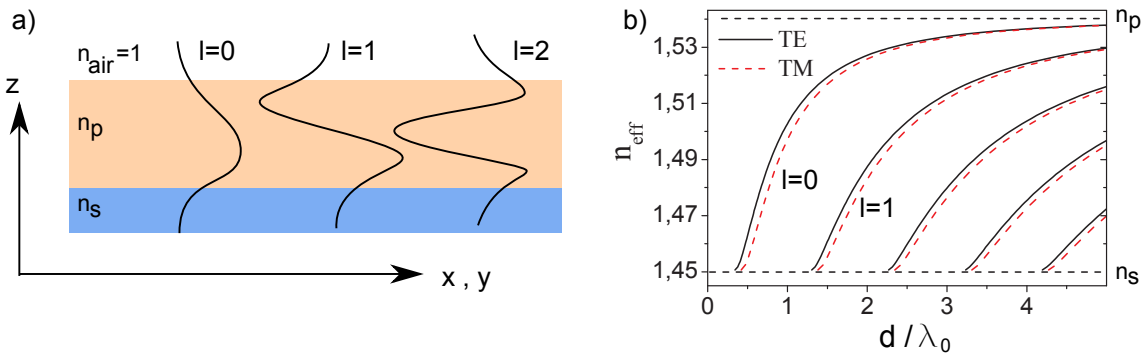


Figure 1.2 – Approximation de l'indice effectif. a – Distribution du champ $E(z)$ pour plusieurs modes TE dans un guide plan d'épaisseur supérieure à $2.5\lambda_0$. b – indice effectif en fonction de l'épaisseur du guide plan.

avec l un entier naturel, $\eta_1 = {n_\mathrm{p}^2}/{n_\mathrm{s}^2}$ et $\eta_2 = {n_\mathrm{p}^2}/{n_\mathrm{air}^2}$ pour le mode TM et $\eta_1 = \eta_2 = 1$ pour le mode TE. La valeur de n_eff est toujours inférieure à l'indice du polymère et supérieur à celui de l'air et de la silice, car un mode vit en partie dans les milieux environnants du polymère. Les solutions numériques sont présentés en figure 1.2.

Nous choisissons l'épaisseur de la couche de polymère telle qu'un seul mode électromagnétique TE et un seul mode électromagnétique TM existent, c'est à dire une épaisseur environ égale à une longueur d'onde de la lumière dans le vide.

Dans les directions x et y, la lumière est libre de se propager dans les limites du contour de la cavité en polymère. Malgré l'existence du contour qui engendrent des réflexions et empêchent ainsi la propagation à l'infini dans la couche, nous continuons à considérer seulement des modes guidés, oublions leur variations suivant z en ne gardant pour la propagation que les termes en x et y :

$$\left(\Delta_{xy} + n_\mathrm{eff}^2 k^2\right) \Psi(x,y) = 0 \quad \text{dans la cavité, et} \tag{1.9}$$

$$\left(\Delta_{xy} + k^2\right) \Psi(x,y) = 0 \quad \text{à l'extérieur.} \tag{1.10}$$

A sa frontière, les conditions de passage entre deux diélectrique dont l'un est le polymère et l'autre est l'air s'appliquent aussi. Il y a donc réflexion et dans certains cas transmission, qui sont des concepts bien définis dans le cas de surfaces infiniment grandes suivant z. Dans notre cas, l'incidence se fait sur la tranche d'une microcavité. Une partie de la lumière est réfléchie et reste alors à l'intérieur de la cavité ce qui est à l'origine du confinement et donc du nom de "cavité", tandis que l'autre partie de la lumière est transmise par réfraction.

Pour le mode TE, il est pratique de considérer $\Psi(\vec{r},t) = B_z(\vec{r},t)$. Les conditions de passage s'expriment alors pour $\vec{r}$ sur le contour par $\Psi_\mathrm{int}(\vec{r},t) = \Psi_\mathrm{ext}(\vec{r},t)$ car le champ magnétique est continu, et $\frac{\vec{n}\cdot\vec{\nabla}\Psi_\mathrm{int}(\vec{r},t)}{\epsilon_\mathrm{int}} = \frac{\vec{n}\cdot\vec{\nabla}\Psi_\mathrm{ext}(\vec{r},t)}{\epsilon_\mathrm{ext}}$, où $\vec{n}$ est le vecteur normal à l'interface en $\vec{r}$, car la composante du champ électrique, parallèle à l'interface, est continue et vaut $\frac{ic}{n^2 k}\vec{n}\cdot\vec{\nabla}\Psi$.

Pour le mode TM en considérant $\Psi(\vec{r},t) = E_z(\vec{r},t)$, les conditions de passage s'exprime par

$\Psi_{\text{int}}(\vec{r},t) = \Psi_{\text{ext}}(\vec{r},t)$ car E_z est une composante du champ électrique paralèle à l'interace donc continue. Et $\vec{n}.\vec{\nabla}\Psi_{\text{int}}(\vec{r},t) = \vec{n}.\vec{\nabla}\Psi_{\text{ext}}(\vec{r},t)$ car le champ magnétique est continu à l'interface.

Nous obtenons donc, dans le cadre de l'approximation de l'indice effectif, des équations couplées scalaires et bidimensionnelles. Ceci représente, par rapport aux équations de départ, vectorielles et tridimensionnelles, une simplification remarquable. En contrepartie, aucun effet dû au caractère tridimensionnel de la géométrie réelle, comme la diffraction par les bordures ou le mélange des deux polarisations TE et TM par les coins, n'est retenu. Ceci constitue les limites de l'approximation de l'indice effectif.

1.2.3 Traitements numériques des équations bidimensionnelles

Plusieurs méthodes numériques existent pour étudier les équations 1.9, scalaires et bidimensionnelles, assorties des conditions de continuité le long du contour également bidimensionnel. Analytiquement, le seul cas 2D analytique à ce jour est celui de la cavité circulaire, dont l'ensemble des modes TE et TM est dérivé par exemple dans [19] ou [40]. Le cas de la cavité de type Fabry-Perot 1D a aussi été étudié exhaustivement [23]. Pour le cas général, trois groupes de méthodes peuvent être distingués.

La méthode des éléments finis maille l'ensemble du plan (x,y) en accordant une attention spéciale aux bords du résonateur, de façon à transformer les équations de Helmoltz 1.9 (équations aux dérivées partielles sur x et y) en une équation discrète aux valeurs propres. Ces valeurs propres donnent directement les fréquences et les temps de vie des résonances. La précision des solutions approchées est d'autant meilleure que le maillage est plus fin. Comme un maillage typique a une taille d'environ $\lambda/10$, la dimension typique d'une matrice à inverser est $(20R/\lambda)^2 \sim 10^6$ où R est la dimension typique de la cavité.

La méthode FDTD (*Finite Elements Times Domain*) utilise aussi un maillage de l'espace complet. À partir des équations d'onde non-stationnaires et d'un champ initial $\Psi(x,y,t=0)$, l'évolution de $\Psi(x,y,t>0)$ est déterminée de proche en proche. La précision est d'autant meilleure que les mailles sont fines et que le pas temporel est court, mais le temps de calcul est aussi allongé d'autant. Cette méthode ne donne pas directement les résonances de la cavité, mais à partir de la réponse temporelle par exemple à une impulsion, la théorie linéaire nous permet de retrouver les spectres des cavités.

La méthode IBEM (*Integral Boundary Element Méthod*) est au coeur d'un code conçu par Charles Schmit, au LPTMS, que j'ai adapté et utilisé au LPQM. Ce code est bien décrit dans la thèse de Rémi Dubertrand [40]. La méthode est aussi appelée "méthode intégrale de Muller". Suivant cette méthode, notamment utilisée dans [41] ainsi que par Elena Smotrova dans un papier en collaboration avec nous [42], c'est le contour de la cavité qui est discrétisé, et le formalisme des fonctions de Green permet de retrouver, en tout point de l'espace, la valeur de la fonction d'onde,

à partir de ses valeurs au niveau de la frontière, du côté intérieur et du côté extérieur de la cavité :

$$\Psi(\vec{x}) = \oint_{\mathcal{C}} G_{\text{int}}(\vec{x},\vec{y})\Psi_{\text{int}}(\vec{y})d\vec{y} \qquad \text{pour } \vec{x} \text{ à l'intérieur} \tag{1.11}$$

$$\text{et } \Psi(\vec{x}) = \oint_{\mathcal{C}} G_{\text{ext}}(\vec{x},\vec{y})\Psi_{\text{ext}}(\vec{y})d\vec{y} \qquad \text{pour } \vec{x} \text{ à l'extérieur} \tag{1.12}$$

Les conditions de passages deviennent ainsi un système de deux équations intégrales valables pour tout $\vec{x}$ élément sur le contour $\mathcal{C}$:

$$\oint_{\mathcal{C}} G_{\text{int}}(\vec{x},\vec{y})\Psi_{\text{int}}(\vec{y})d\vec{y} = \oint_{\mathcal{C}} G_{\text{ext}}(\vec{x},\vec{y})\Psi_{\text{ext}}(\vec{y})d\vec{y} \tag{1.13}$$

$$\nu\vec{n}\cdot\vec{\nabla}_x \oint_{\mathcal{C}} G_{\text{int}}(\vec{x},\vec{y})\Psi_{\text{int}}(\vec{y})d\vec{y} = \vec{n}\cdot\vec{\nabla}_x \oint_{\mathcal{C}} G_{\text{ext}}(\vec{x},\vec{y})\Psi_{\text{ext}}(\vec{y})d\vec{y} \tag{1.14}$$

où ν vaut 1 pour les modes TM et ϵ_{int} pour les modes TE. Discrétisé sur le contour de la cavité, ce système se ramène à une équation matricielle de la forme $a(k)\mu = 0$, où k est un paramètre complexe dont dépend de manière compliquée la matrice a, et μ est un vecteur composé des valeurs du champ discrétisé sur l'interface côté intérieur et côté extérieur. S'il est possible de calculer entièrement la matrice $a(k)$ pour une valeur donnée de k, il n'existe pas de méthode pour inverser la relation (i.e obtenir $k = f(a)$) car la dépendance en k est fortement non-linéaire. En effet, les fonctions de Green intérieure et extérieure sont respectivement $G_{\text{int}}(\vec{x},\vec{y}) = \frac{1}{4i}H_0^{(1)}(n_{\text{eff}}k|\vec{x}-\vec{y}|)$ et $G_{\text{ext}}(\vec{x},\vec{y}) = \frac{1}{4i}H_0^{(1)}(|\vec{x}-\vec{y}|)$ où $H_0^{(1)}$ désigne la fonction de Hankel du premier ordre. En conséquence la seule approche envisageable est un tâtonnement numérique afin de trouver quelles valeurs complexes de k donne à la matrice a une valeur propre nulle (ce qui se traduit par un déterminant nul). Ainsi, bien que les matrices considérées soient beaucoup plus petites (de dimension typique $20R/\lambda \sim 10^3$ au lieu de $(20R/\lambda)^2 \sim 10^6$ pour la méthode des éléments finis), la dernière étape pour trouver les valeurs propres est très inefficace. De plus la convergence de cette méthode pour des formes de contour irrégulières pose toujours des problèmes. Cela est notamment le cas pour les coins [43, 44] au niveau desquels la normale n'est pas définie. Cependant, pour des formes hautement symétriques comme le carré ou le triangle équilatéral, il est aisé de mettre à profit la symétrie pour s'affranchir de l'existence de coins ce qui rend la méthode intégrale intéressante (cf figure 1.3-c,d,e et f).

Quoi qu'il en soit, ces trois méthodes fournissent des solutions résonnantes aux équations de propagation du champ, associées chacune à une fréquence, dont la partie réelle est la fréquence de résonance et la partie imaginaire est liée à l'amortissement du mode. La distribution de ces fréquences sur le plan complexe est intéressante car elle dépend spectaculairement de la forme du contour de la cavité. Dans de nombreux cas particuliers, cette distribution des résonances présente une organisation régulière en branches. C'est le cas des formes "simples" ou régulières comme par exemple celles présentées sur la figure 1.3. Dans le cas du disque, résolu analytiquement, les branches sont clairement identifiées et reliées à deux nombres entiers caractéristiques des résonances, appelés des nombres quantiques. Le détail des calculs dérivant ces nombres, ainsi que les fonctions d'onde associées, est fait par exemple dans [45] ou [40]. On obtient des fonctions d'ondes factorisables en

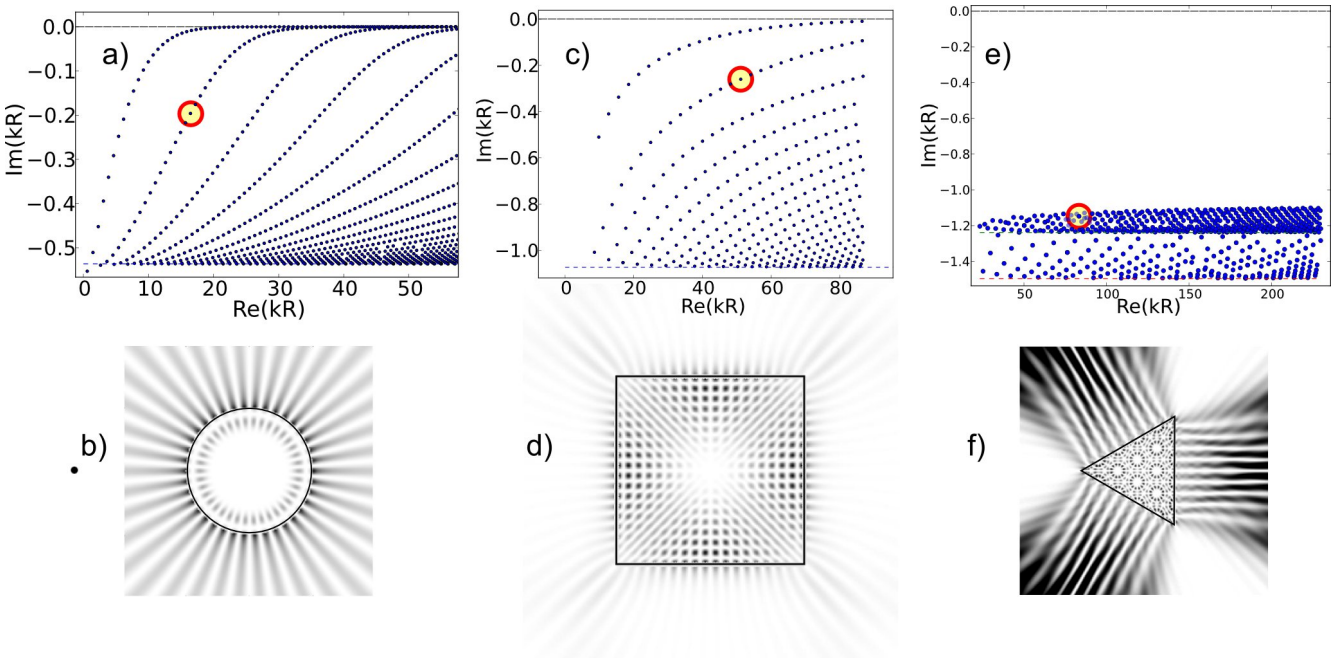


Figure 1.3 – Spectres et modes de micro-résonateurs bidimensionnels de trois formes différentes. L'indice optique est 1.5. a – disque de rayon R. Spectre calculé analytiquement [40]. b – exemple de mode du micro-disque. La fréquence associée est repérée dans le spectre (a) par le rond rouge. c,d – carré de côté R. Spectre calculé par la méthode IBEM et exemple de mode. e,f – triangle équilatéral de côté R. Spectre calculé par la méthode IBEM et exemple de mode.

dépendances angulaire et radiale. Un des deux nombres correspond alors à la fonction radiale. C'est le nombre de nœuds de cette fonction le long d'un rayon. Le deuxième est le nombre de nœuds de la fonction angulaire. Dans l'exemple tracé en figure 1.3-b, le couple est $(2, 38)$.

À notre connaissance , il n'est possible de dériver des nombres quantiques pour aucune autre forme de micro-résonateur, dans les conditions de conditions aux bords de type interface entre deux diélectriques. Les branches visibles par exemple sur le diagramme relatif au carré (figure 1.3) ne sont ainsi pas clairement identifiées. Toutefois, il existe un problème différent mais proche qui, lui, admet des solutions pour le résonateur carré ; c'est le résonateur métallique. En supposant que les bords du résonateur soient composés d'un métal parfaitement conducteur, les conditions aux bords pour le champ TM et TE sont respectivement celles de Dirichlet et de Neumann, ce qui rend le problème plus simple. Dans le cas du carré, le problème est même soluble analytiquement et c'est pourquoi on parle de *forme intégrable* pour le carré même si le problème n'est en réalité pas intégrable pour des conditions aux bords de type diélectrique. Les ellipses, rectangles et les polygones réguliers (dont fait partie le triangle équilatéral) sont des exemples de formes intégrables. Pour ces formes intégrables, les fonctions d'ondes associées à des conditions aux bords métalliques sont donc calculables analytiquement. Il est possible à partir de là, d'extrapoler des modèles de fonction d'ondes qui sans être des solution rigoureuses des équations de propagation, reproduisent bien les fonctions d'ondes calculées numériquement et mêmes mesurées [46].

1.2.4 Champ lointain

Lorsqu'une résonance est calculée numériquement par la méthode IBEM, la fréquence et le champ proche sont fournis. Le champ lointain est alors retrouvé à partir du champ proche par

$$\Psi(\vec{x}) = \oint_{\mathcal{C}} G_{\text{ext},k}(|\vec{x} - \vec{y}|)\Psi_{\text{ext}}(\vec{y})d\vec{y}\,. \tag{1.15}$$

Ceci est un résultat important car une des rares données accessibles expérimentalement est justement le champ lointain. Cependant un problème théorique apparaît en faisant cette opération : comme le vecteur d'onde a une valeur imaginaire négative, le champ lointain diverge exponentiellement car à la limite $|\vec{x} - \vec{y}| \to \infty$, la fonction de Green prend la forme asymptotique $G_{\text{ext},k} \sim \sqrt{\frac{2}{\pi z}} \exp(ik|\vec{x} - \vec{y}| - {}^{i\pi}/_{4})$ divergente. Ceci n'est évidemment pas physiquement acceptable, en tous cas du point de vue où le micro-résonateur est une source. Mais il faut garder à l'esprit qu'une résonance ne décrit pas le champ émis par une source mais seulement une solution aux équations de Helmoltz de la forme $\vec{E}(x, y, t) = \Re\left[\vec{\Psi}(x, y)e^{-i\omega t}\right]$.

Nous trouvons souvent des profils de champs lointains différents de tous ceux fournis par les calculs. Ceci est en particulier le cas pour l'émission par un microlaser carré. Cette différence est intéressante car elle suscite diverses tentatives d'explications dont aucune n'est triviale. L'une d'entre elle est en relation directe avec le caractère multimode des microlasers. Il pourrait y avoir des contributions cohérentes des divers modes lasant simultanément, dont les interférences en champ lointain mènerait à un profil d'émission différent de celui des champs lointains individuels. C'est le sujet du chapitre 6. Cette idée de cohérence est d'autant plus séduisante qu'elle reste aujourd'hui

en suspens, alors que le sujet des peignes de fréquence est bouillonnant [47, 48, 49]. Une autre piste, développée au chapitre 4, et à laquelle je donne plus de crédit, est de considérer pour l'émission des modes qui ne sont pas les mieux confinés. Ceci est contre-intuitif dans le cadre de l'effet laser, mais apporte un éclairage nouveau sur les données expérimentales.

1.2.5 Discussion sur le modèle 2D

La séparation des deux polarisations croisées est un point essentiel de l'approximation de l'indice effectif. Cette séparation se fait de manière exacte pour un plan infini. Mais l'existence de frontières verticales aux bords du résonateur remet en cause l'indépendance des modes TE et TM car les arêtes (et peut-être les coins) sont susceptibles de coupler les deux polarisations entre elles [50, 45]. Cette question sera abordée dans le chapitre 7.1 sur le coin de cube diélectrique.

1.3 Approches semi-classiques

La taille des cavités dans les deux directions du plan (x, y) étant grande devant la longueur d'onde de la lumière dans la plage spectrale considérée, une approche de type rayon est pertinente, bien que la lumière soit dans un régime guidé dans la direction z. C'est le concept fondamental de l'optique géométrique qui tire sa justification des équations de Maxwell via la formulation de l'eikonale $S(\vec{r})$.

1.3.1 Approximation eikonale

En considérant un champ de la forme $\mathcal{A}(\vec{r}) \exp\{-i(\omega t - kS(\vec{r}))\}$ où l'enveloppe $\mathcal{A}(\vec{r})$ varie lentement, le gradient de l'eikonale est relié à l'indice local du milieu $n(\vec{r})$ par $\left|\vec{\nabla} S\right| = n(\vec{r})$. L'eikonale donne la "direction" de la lumière car $\vec{\nabla} S$ est colinéaire à la moyenne temporelle du vecteur Pointing. La trajectoire du rayon est donc donnée en tout point par la ligne de champ de $\vec{\nabla} S$ et on montre qu'elle est reliée à l'indice local par :

$$\frac{d}{ds} n \frac{d\vec{r}}{ds} = \vec{\nabla} n \,, \tag{1.16}$$

où s est l'abscisse curviligne de la trajectoire. Dans notre cas l'indice étant supposé constant à l'intérieur de la cavité, l'équation du rayon se réduit à $\frac{d^2\vec{r}}{ds^2} = \vec{0}$ soit $\vec{r} = \vec{r}(0) + s\vec{u}$ qui est l'équation d'une droite. On retrouve bien que les rayons se propagent en ligne droite à l'intérieur de la cavité, ce qui fait lien entre l'électromagnétisme et l'optique géométrique. À la frontière diélectrique/air, le rayon est réfracté, menant à un rayon réfléchi et/ou un rayon transmis. Prenons une interface en $x = 0$ et un rayon de vecteur unitaire de propagation $\vec{u}(s)$. À la frontière $\frac{d}{ds}(n\vec{u}) = (n_+ - n_-)\delta(x)\vec{e}_x$, ce qui exprime que le produit $n \times u_y$ n'est pas modifié à l'interface : $n_+ u_{y+} = n_- u_{y-}$ dans le cas d'une transmission (loi de Descartes de la transmission), et $u_{y+} = u_{y-}$ dans le cas d'une réflexion (loi de Descartes de la réflexion).

1.3.2 Billards

Comme on le ferait pour une cavité uni-dimensionnelle standard comme une cavité en anneau ou Fabry-Pérot, il est possible de détecter les résonances par un tracé de rayon. Si la trajectoire du rayon, après plusieurs réflexions sur les parois de la cavité, boucle sur elle même à l'infini, on parle d'*orbite périodique* (op). La quantification se fait alors par la condition d'accord de phase après un tour soit $n(k_r)k_r L_{op} + \sum \varphi_i = 2p\pi$, où p est un entier, L_{op} est la longueur totale de l'orbite périodique et les φ_i sont les phases des coefficients de Fresnel induits par les réflexions à la frontière du diélectrique. La recherche des orbites périodiques s'apparente donc à une jeu de billard pour lequel la règle du jeu serait de fermer la trajectoire après un nombre fini de réflexions.

Le passage des orbites périodiques dans le billard aux vrais modes solutions des équations de propagation dans le résonateur ne se fait pas de manière directe et évidente. Dans certains cas, des modèles de modes sont directement reliés à une orbite. C'est le cas des scars et des superscars [51, 52], qui trouvent une certaine légitimité par leur grande ressemblance avec les solutions numériques et les mesures expérimentales [53, 21]. Mais en général il n'est pas possible d'extrapoler les modes de la liste des orbites périodiques. On verra même que dans certains cas apparemment anodins, comme celui des triangles (chapitre 5), c'est l'établissement même de la liste des orbites périodiques qui pose un problème. Les orbites périodiques peuvent être caractérisées par leur stabilité ou leur appartenance ou non à une famille.

1.3.3 Stabilité d'une orbite

La définition de la stabilité d'une orbite périodique dans un résonateur est la même que pour une cavité conventionnelle. Il s'agit de définir une trajectoire voisine de l'orbite périodique par le déplacement ds_0 de son point de départ pris sur le contour de la cavité et du décalage $d\sin\chi_0$ de sinus de son angle de départ. Après une première réflexion, la trajectoire est décalée par rapport à l'orbite périodique d'une longueur ds_1 et le sinus de l'angle est différent de $d\sin\chi_1$, différent en général de $d\sin\chi_0$ car la courbure de la frontière fait que la trajectoire voisine est déviée différemment de l'orbite périodique. Après un tour de cavité au voisinage de l'orbite périodique et N rebonds, le point de départ du deuxième tour ds_N et son angle $d\sin\chi_N$ sont a priori différents de ds_0 et $d\sin\chi_0$. En première approximation, ces nouveaux décalages sont proportionnels à ds_0 et $d\sin\chi_0$. La linéarisation s'exprime grâce à la *matrice de monodromie* $\mathcal{M}$ par

$$\begin{pmatrix} ds_N \\ d\sin\chi_N \end{pmatrix} = \mathcal{M} \begin{pmatrix} ds_0 \\ d\sin\chi_0 \end{pmatrix} . \tag{1.17}$$

La matrice de monodromie se détaille pour chaque rebond en un terme de propagation et un terme de réflexion. Au $i^{\text{ème}}$ rebond :

$$\begin{pmatrix} ds_i \\ d\sin\chi_i \end{pmatrix} = \mathcal{M}_{i,\text{refl.}}\mathcal{M}_{i,\text{prop.}} \begin{pmatrix} ds_{i-1} \\ d\sin\chi_{i-1} \end{pmatrix}, \quad \text{où} \tag{1.18}$$

$$\mathcal{M}_{i,\text{prop.}} = \begin{pmatrix} 1 & l_i \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{et} \tag{1.19}$$

$$\mathcal{M}_{i,\text{refl.}} = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ \frac{2}{\rho_i \cos\chi_i} & -1 \end{pmatrix}. \tag{1.20}$$

La matrice $\mathcal{M}_{i,\text{prop.}}$ exprime le fait que le décalage croît entre deux réflexions de $l_i d\sin\chi_{i-1}$. La matrice $\mathcal{M}_{i,\text{refl.}}$ exprime que l'angle de décalage est inversé en signe, et modifié en valeur absolue seulement si la surface est courbe, de rayon de courbure ρ_i au point de réflexion i.

La matrice totale est donc

$$\mathcal{M} = \prod_{i=N}^{1} \mathcal{M}_{i,\text{refl.}}\mathcal{M}_{i,\text{prop.}}\,. \tag{1.21}$$

De ses valeurs propres dépend la stabilité de l'orbite. Comme le déterminant est 1, quelques cas de figures sont discernables [54] : Si les deux valeurs propres λ_1, λ_2 sont réelles alors $\lambda_1 = 1/\lambda_2$ et par exemple $|\lambda_1| < 1$ et $|\lambda_2| > 1$. L'orbite est ainsi instable car selon un des deux vecteurs propres, la trajectoire voisine s'éloigne de manière exponentielle avec le nombre de tour. Si les deux valeurs propres sont complexes, alors $\lambda_1 = \lambda_2^\star$ et l'orbite est stable car la trajectoire voisine ne s'éloigne pas d'un tour sur l'autre. Les deux cas charnière sont $\lambda_1 = \lambda_2 = \pm 1$. La stabilité d'une telle orbite est dite *marginale*. L'éloignement de la trajectoire voisine se fait au plus linéairement avec le nombre de tour.

Cas des polygones

Pour les polygones, le rayon de courbure en un point sur un côté droit est infini. La matrice de monodromie se simplifie donc facilement :

$$\mathcal{M} = \begin{pmatrix} (-1)^N & (-1)^N L_{\text{op}} \\ 0 & (-1)^N \end{pmatrix} \tag{1.22}$$

où $L_{\text{op}} = \sum_{i=1}^{N} l_i$ est la longueur totale de l'orbite périodique et N le nombre de réflexions. Pour un nombre pair de réflexions, il existe deux valeurs propres égales à 1 mais associées à un seul vecteur propre $(ds, 0)$. Cela signifie que l'orbite est marginalement stable, et qu'une trajectoire voisine, se propageant selon le même angle à partir d'un point décalé de ds, est aussi une orbite périodique. On dit que ces orbites sont "en famille", comme dans les cas du Fabry-Perot (a), et du carré (b) sur la figure 1.4. Pour un nombre impair de réflexions, il existe une seule valeur propre -1, associé au vecteur propre $(ds, 0)$. Là encore, l'orbite est marginalement stable, mais la trajectoire voisine n'est

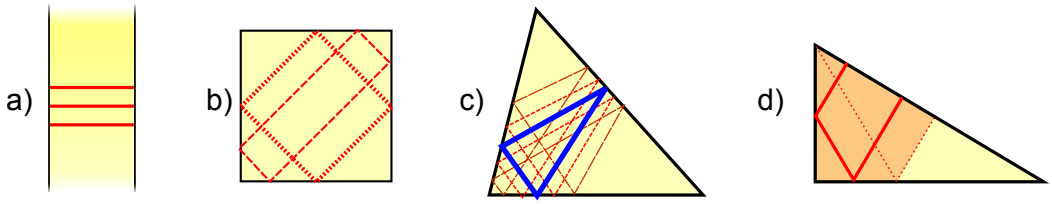


Figure 1.4 – Orbites périodiques dans des billards polygonaux. a – Fabry-Perot (ruban). Les orbites sont en famille. b – carré. Les deux orbites comptent 4 rebonds sont en famille. c – triangle. Les deux orbites rouges pointillées à 6 rebonds sont en famille. L'orbite pleine bleue à 3 rebonds est isolée. d – triangle rectangle. L'orbite rouge est *en famille*. L'aire couverte par la famille, en rose, n'est pas celle du triangle entier.

pas une orbite périodique puisque $ds_N = -ds_0$. Une telle orbite est donc isolée, comme l'orbite en trait plein sur la figure 1.4-c. En revanche, l'orbite double faisant un nombre pair de réflexions est en famille puisque $ds_{2N} = -ds_N = ds_0$ est "en famille". C'est le cas sur la figure 1.4-c de la famille à 6 rebonds dans le triangle, dont deux orbites représentantes sont dessinées en pointillés.

1.3.4 Orbites en familles / isolées

On vient de voir dans le cas des polygones la signification d'un famille d'orbites. Cette notion est un peu plus large que cela. On peut y ranger par exemple le cas des diamètres du disque. Typiquement, ces orbites sont marginalement stables [54]. Le cas le plus significatif est le ruban à bords parallèles aussi appelé Fabry-Perot. Toutes les orbites perpendiculaires au ruban, de longueur 2 fois la largeur du ruban, sont des orbites périodiques marginalement stables. Elles ont toutes la même longueur et constituent une famille. Le fait qu'une orbite soit en famille ajoute de l'importance à la contribution de cette orbite, ce qui est une notion prise en compte et bien quantifiée par la formule de trace (voir 1.3.6). Les orbites stables et instables sont généralement isolées.

1.3.5 Scars, superscars, et orbites pseudo-périodiques

Il a été montré [51, 52, 53, 21] que des modes appelés "*scars*" [55] peuvent être associés à des orbites périodiques instables. Cependant il n'y a pas de relation bijective prouvée entre modes et orbites en général et le lien, parfois ténu, ne se fait qu'a posteriori de manière visuelle et qualitative entre les orbites et les résonances mesurées ou calculées numériquement. Les modes scars tirent leur justification de la possibilité de propagation à l'intérieur de la cavité. Pour cela, il est indispensable que la cavité soit grande en comparaison des longueurs d'onde considérées, c'est à dire qu'on se place dans la limite semi-classique des petites longueurs d'ondes. C'est le cas de nos micro-lasers pour lesquels la taille est de l'ordre de 300λ.

Le cas des polygones est peut-être le plus propice à ce type d'étude. Les orbites en famille marginalement stables qui y vivent peuvent être reliées à des modes dits "superscars". Le principe est de considérer une onde plane se propageant le long de l'orbite périodique à l'intérieur d'un canal

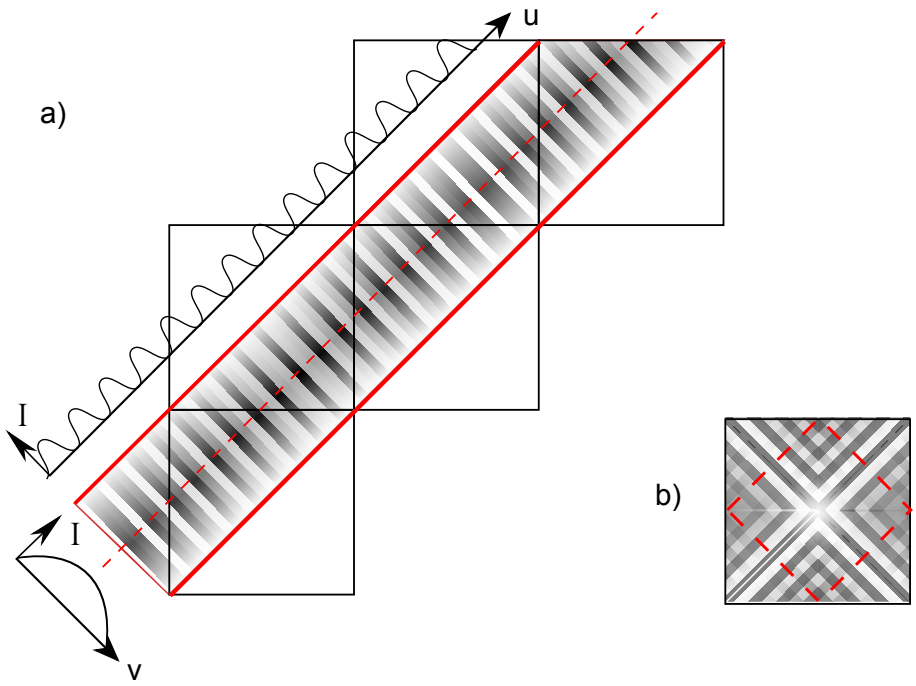


Figure 1.5 – Mode SCAR dans un résonateur carré. a – résonateur déplié : un onde plane se propage dans un canal limité par les lignes rouges passant par les coins du carré. b – onde *repliée*, superposition de l'onde plane avec ses propres réflexions sur les bords du résonateur.

(cf figure 1.5-a où l'orbite est tracée en pointillée). Le canal est la zone délimitée par les deux traits pleins rouges. Dans une famille, il existe deux orbites extrêmes (en traits pleins rouges sur la figure 1.5-a), typiquement contenant un coin du polygone, limitant la surface occupée par la famille. Ces deux orbites fixent la largeur du canal. L'aire du canal peut être l'ensemble de la cavité mais ce n'est pas nécessairement le cas comme on le voit dans le cas d'un triangle rectangle sur la figure 1.4-d. Ainsi les modes sont quantifiés longitudinalement par un vecteur d'onde $k_{l,n_l} = \frac{2n_l\pi}{L_{\text{op}}} + \phi$ et transversalement par $k_{t,n_t} = \frac{n_t\pi}{l_{\text{canal}}}$. L'argument pour des conditions de Dirichlet (champ nul) aux deux bords du canal est que les coins apportent de la diffraction tuant la propagation le long de l'orbite frontière. Toutefois la structure en $\sin(k_{t,n_t}v)$ perpendiculairement à l'orbite reste une approximation. Le mérite de ce modèle est qu'il décrit bien la structure spatiale des modes calculés, à un niveau qualitatif. De plus les fréquences résonantes sont bien approchées par ce modèle surtout dans le cas de cavités métalliques. Pour les cavités diélectriques, les fréquences sont moins bien approchées [21] mais surtout, ce modèle ne permet pas de calculer les pertes, puisque l'orbite losange, incidente à 45° sur chaque face, est confinée par réflexion totale interne.

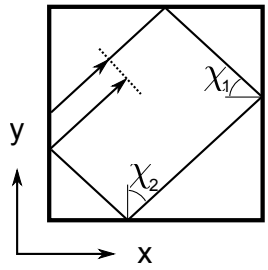


Figure 1.6 – Définition des orbites "pseudo-périodiques" dans un carré :

Cas du carré, orbites pseudo-périodiques

Une approche légèrement différente, valable pour les rectangles, est une quantification selon des trajectoires, nommées *"open rays"* dans [56], non pas périodiques mais qui ont la faculté de ramener, après un tour de cavité, le front d'onde en phase et parallèle à lui-même (cf figure 1.6). Ces modes sont aussi bien décrits dans [57] et [46]. Les orbites se réfléchissent sur les deux faces perpendiculaires avec deux angles complémentaires différents $\chi_1 < 45°$ par exemple et $\chi_2 = 90° - \chi_1 > 45°$. Les conditions pour les vecteurs d'onde à l'intérieur du carré sont alors les suivantes :

$$\begin{aligned} \exp(2ink_x a) r^2(\chi_1) &= 1 \\ \exp(2ink_y a) r^2(\chi_2) &= 1 \\ k_x &= \tfrac{2\pi}{\lambda}\cos(\chi_1) \\ k_y &= \tfrac{2\pi}{\lambda}\sin(\chi_1) \end{aligned} \tag{1.23}$$

Ces modes sont exactement dégénérés avec les modes symétriques $(k'_x, k'_y) = (k_y, k_x)$ (c'est-à-dire en inversant $\chi_1 \leftrightarrow \chi_2$). Mais la symétrie peut être rompue, par exemple en utilisant un pompage asymétrique comme on le verra dans le chapitre 4.4.3 consacré au carré.

Confinement des modes scars

Lorsque qu'une orbite est incidente sur une face avec un angle inférieur à l'angle critique de réflexion totale, une partie de la lumière est transmise hors du résonateur et donc perdue. L'angle critique est défini par

$$\chi_C = \arcsin\left(\frac{1}{n}\right) \simeq 42° \quad . \tag{1.24}$$

Les pertes d'une orbite sont ainsi déterminées par les coefficients de Fresnel de transmission, qui prennent deux formes différentes pour les modes TE et TM. La validité de cette approche trouve une certaine légitimité dans la prédiction des pertes, calculées à partie des valeurs expérimentales des seuils lasers [58]. Pourtant, il n'est pas du tout évident que les coefficients de réflections et de transmission soient les mêmes dans le cas de Fresnel, quand onde plane tombe sur une surface plane infinie, et dans le cas présent d'une lumière guidée, incidente sur une surface de largeur 700

μm ($\sim \lambda$). Encore une fois, la présence d'irrégularités dans la géométrie (les arrêtes du résonateur) empêche une résolution formelle de ce problème de diffraction.

Cette précaution prise, et tant qu'il n'est pas démontré que cette approche est fausse, nous utilisons les coefficients de Fresnel pour quantifier les réflexions et transmissions. Dans la vision des orbites strictement périodiques, tous les modes issus de la quantification longitudinale d'une même orbite ont les mêmes pertes donc le même taux d'amortissement, aux effets dispersifs près. Pour l'effet laser, et dans le cadre de ce modèle, à la limite semi-classique, on peut donc légitimement attendre des seuils égaux en absence de compétition. De là à conclure que des modes doivent co-exister, il reste toutefois un grand pas, celui du partage du gain et des couplages entre modes. En tout cas, c'est ce principe qui nous a guidé depuis le début de la thèse et aussi avant [21] pour l'analyse des spectres expérimentaux, sur lequel je reviendrai dans la section 1.5 consacré au micro-lasers proprement dits, c'est à dire un résonateur tel que décrit ici, mais auquel on ajoute un gain. Cependant, dans le cas particulier du carré, l'orbite losange est confiné par réflexion totale interne et pose problème car les pertes par réfraction sont nulles.

La vision des pseudo-orbites est équivalente à la quantification longitudinale-canal dans le cas du carré (et plus généralement des rectangles). Au lieu de deux nombres quantiques n_l et n_t, on obtient n_x et n_y tels que $n_x + n_y = n_l$ et $|n_x - n_y| = n_t$. Pourtant, on comprend plus intuitivement avec les pseudo-orbites que les angles d'incidences ne sont pas nécessairement égaux à 45°. Alors, pour les pseudo-orbites ayant un angle d'incidence supérieur à l'angle critique de réflexion totale $\chi_C = 42°$, il devient possible de calculer la perte par transmission et donc l'amortissement de cette orbite grâce aux coefficients de Fresnel. Un accord intéressant est trouvé entre les amortissements ainsi calculés et les modes calculés numériquement [46]. De plus – et surtout – grâce à cette approche et aux multiples données expérimentales, j'ai émis l'hypothèse en fin de thèse que les modes observés lors de l'effet laser ne sont pas nécessairement les mieux confinés, mais plutôt ceux qui possèdent un meilleurs équilibre entre un bon confinement et une transmission non-nulle. Il devient possible d'interpréter les directions d'émission en champ lointain, ce qui est traité en détail au chapitre 4.

1.3.6 Formule de trace

Lorsque $k_r R$ devient grand, c'est-à-dire pour des longueurs d'onde de plus en plus petites comparativement à la taille de la cavité, les modes deviennent de plus en plus denses en fréquences. En fait, on définit la densité de modes par $\rho(k) = \frac{dN(k)}{dk}$, où $N(k)$ est le nombre de modes pour lesquels $k_r < k$. La densité peut se décomposer en deux parties $\rho(k) = \rho^{\bar{\text{sc}}}(k) + \rho^{\text{sc}}_{\text{fluct}}(k)$, avec une densité moyenne donnée par la loi de Weyl, $\rho^{\bar{\text{sc}}}(k) = \frac{\mathcal{A}n^2 k}{2\pi} + \mathcal{O}(1)$ où $mathcal(A)$ est l'aire de la cavité [59]. Quant à la partie fluctuante $\rho^{\text{sc}}_{\text{fluct}}$, nulle en moyenne, le détail de cette distribution dépend très sensiblement de la forme du contour comme on le voit sur les spectres numériques calculés pour les formes du disque, du carré, et du triangle équilatéral sur la figure 1.3. La formule de trace est un outil puissant de physique statistique permettant d'approcher la distribution fluctuante des niveaux à partir de paramètres classiques [60]. Elle trouve son origine dans la théorie du chaos quantique, qui concerne des systèmes physiques divers dont la particularité est d'avoir une

dynamique chaotique et des spectres non-calculables analytiquement. La base de cette formule est la connaissance des orbites périodiques existant dans l'espace des phases du sytème. Il s'agit donc d'une formule semi-classique puisque la notion d'orbite est une notion complètement classique alors que celle de modes est quant à elle d'ordre purement quantique/ondulatoire.

D'abord dérivée pour des résonateurs métalliques et des billards fermés, la formule de trace a été ajustée [59] au cas des résonateurs diélectriques, l'ajustement consistant seulement en une prise en compte des coefficients de Fresnel induits par chaque réflexion. Elle prend la forme suivante :

$$\rho^{\mathrm{sc}}_{\mathrm{fluct}}(k) = \sum_{\mathrm{ppo}} \sum_{j=1}^{\infty} \mathcal{C}_{\mathrm{ppo},j} \cos\left[n(k) k j L_{\mathrm{ppo}} + \phi_{\mathrm{ppo},j}\right] , \tag{1.25}$$

où PPO indice les orbites périodiques primitives de longueur L_{ppo} et j est le nombre de répétitions pour chaque orbite. En considérant une orbite périodique primitive en particulier, sa contribution dans la densité totale est une somme de cosinus harmoniques de fréquence fondamentale $\frac{n(k)L_{\mathrm{ppo}}}{2\pi}$. L'importance relative d'une PPO dépend des coefficient $\mathcal{C}_{\mathrm{ppo},j}$.

Les coefficients $\mathcal{C}_{\mathrm{ppo},j}$ et les phases $\phi_{\mathrm{ppo},j}$ dépendent de coefficients classiques et sont détaillés dans [59, 61]. Pour des orbites isolées, ils s'écrivent

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_{\mathrm{ppo},j} &= \frac{n(k)L_{\mathrm{ppo}}}{\pi\sqrt{\left|\det\left(\mathcal{M}^j_{\mathrm{ppo}}-1\right)\right|}} R^j_{\mathrm{ppo}} \\ \phi_{\mathrm{ppo},j} &= -j\sigma_{\mathrm{ppo}}\tfrac{\pi}{2} , \end{aligned} \tag{1.26}$$

où M_{ppo} est la matrice de monodromie de l'orbite périodique primitive, R_{ppo} est le produit des coefficients de Fresnel associés aux réflexions de l'orbite et $\sigma_{\mathrm{ppo}}\frac{\pi}{2}$ est une phase dite "de Malsov" nulle dans le cas de billards polygonaux (cf par exemple [54]).

Toutefois, pour les orbites en famille marginalement stables (c.f. section 1.3.3), le coefficient diverge puisque $\det\left(\mathcal{M}^j_{\mathrm{ppo}} - 1\right) = 0$. Pour ces orbites les coefficients prennent une autre forme :

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_{\mathrm{ppo},j} &= \left(\tfrac{n}{\pi}\right)^{\frac{3}{2}} \mathcal{A}_{\mathrm{ppo}} \sqrt{\tfrac{k}{2jL_{\mathrm{ppo}}}} R^j_{\mathrm{ppo}} \\ \phi_{\mathrm{ppo},j} &= -j\sigma_{\mathrm{ppo}}\tfrac{\pi}{2} - \tfrac{\pi}{4} , \end{aligned} \tag{1.27}$$

où $\mathcal{A}_{\mathrm{ppo}}$ est l'aire occupée par la famille de l'orbite périodique. Donc le poids de l'orbite est proportionnel à l'aire de sa famille.

La transformée de Fourier. En considérant qu'il n'existe qu'une seule orbite périodique dans notre billard et que la dispersion n'est pas importante ($n(k) = n$), la transformée de Fourier de la densité de mode $\hat{\rho}^{\mathrm{sc}}_{\mathrm{fluct}}(l) = \sum_{j=1}^{\infty} \hat{\mathcal{C}}_{\mathrm{ppo},j}\delta\left(l - jnL_{\mathrm{ppo}}\right))$ fait donc apparaître de manière immédiate la longueur de l'orbite périodique multipliée par l'indice du milieu. C'est ce qu'on obtient aussi dans le cas où une orbite domine nettement sur les autres. Ceci se manifeste dans les coefficients $\mathcal{C}_{\mathrm{ppo},j}$ lorsque les pertes par transmission de l'orbite sont plus faible que pour toutes les autres orbites.

Dans le cas de nos microlasers, on observe parfois une seule famille. Cela est donc caractéristique de l'influence d'une seule orbite. Il est alors possible d'effectuer exactement la même opération de

transformée de Fourier sur un spectre expérimental comme celui montré en figure 1.8-a [21, 62]. Je reviendrai sur cela en section 1.5 consacré à l'effet laser. Mais le principe n'est pas différent de celui exposé dès à présent. Et la transformée de Fourier du spectre constitue en fait, dans l'étude expérimentale, l'outil majeur pour la compréhension du laser en terme d'orbites périodiques.

1.4 Milieu amplificateur

Le milieu amplificateur est un ensemble de molécules organiques bien choisies, réparties et orientées aléatoirement dans une matrice polymère. Le colorant que nous avons utilisé principalement est le DCM, dont la formule est donnée sur la figure 2.1. Ces molécules ont la faculté d'absorber une lumière de pompe (ici expérimentalement à $\lambda_p = 532$ nm) et de ré-émettre de la lumière à une longueur d'onde supérieure, et cela dans des conditions favorables à l'émission stimulée. Ces propriétés très particulières s'expliquent par la structure électronique des molécules que je vais brièvement décrire au début de cette partie. Je montrerai comment on comprend ainsi le décalage de Stokes et le gain optique. Au passage, je parlerai de l'anisotropie des molécules, indispensable pour comprendre l'effet de la polarisation de pompage. Ceci nous amènera naturellement à l'effet laser qui est le sujet de la section 1.5.

1.4.1 Structure électronique

L'absorption d'un photon se fait lors du passage de la molécule d'une configuration électronique fondamentale S_0 à un état excité S_i, plus énergétique. Une molécule colorante est choisie pour sa forte conjugaison (elle comporte souvent des cycles aromatiques), de façon à ce que la fréquence lumineuse correspondant à la différence d'énergie entre l'état fondamental et le premier état excité S_1 soit une fréquence visible. L'état S_1 correspond ainsi à l'état $\Pi^\star$ du système conjugué. S_0 et les S_i sont en réalité des bandes de niveaux électroniques regroupant des sous-niveaux vibrationnels et rotationnels. Les largeurs de ces bandes et leurs peuplements sont responsables d'effets importants. La structure électronique d'une telle molécule est représentée par le diagramme de Perrin-Jablonski représenté en figure 1.7. En outre les niveaux sont largement influencés par l'environnement de la molécule. Ainsi, suivant le solvant ou la matrice qui contient les molécules, ou encore leur concentration dans cet environnement, les propriétés optiques sont sensiblement différentes, ce qui est facilement observable par exemple sur le spectre de fluorescence.

Les processus par lesquels une molécule est amenée à changer de niveau sont de natures variées et ont des probabilités différentes, ce qui influe sur la dynamique d'évolution des population des niveaux. L'absorption d'un photon amène le système dans un niveau d'énergie supérieure (état excité). Cela peut se faire vers la première bande S_1 si l'énergie du photon incident coïncide exactement avec la différence entre l'énergie d'un état de S_0 occupé et un état de S_1 vacant. Dans le cas du DCM un tel photon a une longueur d'onde d'environ 500 nm. L'absorption est aussi possible directement vers un état supérieur mais nécessite un photon d'énergie plus grande , et donc de longueur d'onde plus faible (autour de 400nm pour le DCM). Elle peut aussi résulter d'un processus multiphotons, dont la section efficace est plus faible, mais qui peut présenter des avantages

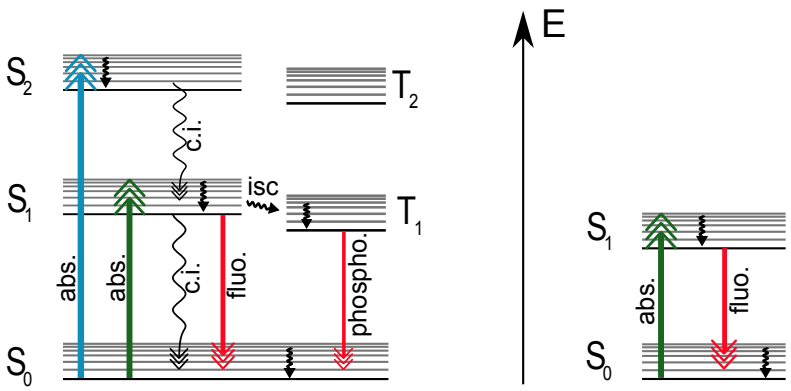


Figure 1.7 – Gauche – diagramme de Perrin-Jablonski. (fluo :fluorescence, phospho :phosphorescence, abs :absorption, c.i. conversion interne, isc : inter-sytem crossing.) Droite – diagramme simplifié en un système à 4 niveaux.

spectroscopiques (accès à des niveaux interdits par transition à un photon) ou technologiques (cf chapitre 8 sur la réalisation de structures 3D par absorption à deux photons). D'un point de vue microscopique, le processus d'absorption est très bref, quasiment instantané et "vertical" dans un premier temps, selon un processus purement électronique n'impliquant pas de changement de structure (transition dite de Franck-Condon). D'un point de vue d'ensemble, en considérant le grand nombre de molécules, le nombre d'absorptions est proportionnel à la fois au nombre de molécules se trouvant dans l'état fondamental et au flux des photons incidents. Le coefficient de proportionnalité est nommé section efficace d'absorption et noté σ_a. Le nombre de molécules excitées par seconde est donc :

$$-\left[\frac{dN_0}{dt}\right]_{\text{abs}} = \Phi_\varphi \times N_0 \times \sigma_a \tag{1.28}$$

où N_0 est le nombre de molécules éclairées se trouvant dans l'état fondamental, nombre amené à diminuer par le processus d'absorption, d'où le signe moins dans l'équation 1.28. Le flux de photons est relié à l'intensité de pompe par l'énergie des photons $\Phi_\varphi = \frac{I_P}{\hbar\omega}$ et s'exprime donc en $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. La section efficace a donc bien la dimension d'une aire en cm^2. Et le temps caractéristique de pompage de la population N_0 qui ressort $\tau_a = \frac{\hbar\omega}{I_P\sigma_a}$ est d'autant plus petit que le pompage est fort. Expérimentalement, l'intensité de pompage est le seul paramètre qu'il est facile de faire varier.

La relaxation vers l'état d'équilibre thermique se fait par divers processus. Tout d'abord le processus d'absorption ne peut pas être décorrélé de celui d'émission stimulée. Ce mécanisme stipule que la probabilité pour une molécule de passer d'un état $|f>$ à un état $|e>$ en absorbant un photon de fréquence $\frac{E_e-E_f}{h}$ sous l'incidence d'un flux lumineux Φ_φ est rigoureusement égale à la probabilité pour une molécule sous l'incidence d'un flux lumineux Φ_φ de passer de l'état $|e>$ à l'état $|f>$ en émettant un photon de fréquence $\frac{E_e-E_f}{h}$. Cela conduit, dans le cas d'un système à deux niveaux, à l'impossibilité de réaliser une inversion de population, c'est à dire d'obtenir

un état du sytème où plus de molécules sont dans l'état $|e>$ que dans l'état $|f>$, permettant alors de transférer de l'énergie à un deuxième faisceau, alors amplifié, comme c'est le cas dans les lasers. Cependant ici, les molécules ont plus que deux niveaux et les conditions de réalisation des autres processus sont, de manière heureuse, compatibles et même favorables à la réalisation d'une inversion de population. Les colorants lasers sont, de fait, considérés comme des systèmes à quatre niveaux.

Les relaxations intra-bandes entre niveaux vibrationnels sont très rapides. Leurs temps caractéristiques sont entre 1 et 100 ps, soit largement inférieurs à ceux des relaxations inter-bandes. Ces derniers sont de deux types, radiatifs ou non. Lorsque une radiation est émise, c'est par phosphorescence ou par fluorescence. Cette dernière se fait sur la transition à l'origine du gain, donc c'est celle qui nous intéresse pour l'effet laser dans le microlaser. Le temps de relaxation spontanée est de l'ordre de 0.1 à 100 ns. Celui des relaxations non-radiatives est aussi du même ordre de grandeur.

La population N_{1k} d'un état $|S_{1k}>$ de la bande excitée S_1 voit donc sa population évoluer suivant 4 facteurs :

$$\frac{dN_{1k}}{dt} = \left[\frac{dN_{1k}}{dt}\right]_{\text{abs}} + \left[\frac{dN_{1k}}{dt}\right]_{\text{ém.stim.}} + \left[\frac{dN_{1k}}{dt}\right]_{\text{relax.>k}} + \left[\frac{dN_{1k}}{dt}\right]_{\text{relax.<k}}, \tag{1.29}$$

$$= WN_0 - WN_{1k} + \sum_{j>k}\Gamma_{1j1k}N_{1j} - \sum_{i<k}\Gamma_{1k1i}N_{1k}\,, \tag{1.30}$$

dont le premier correspond à l'excitation depuis un niveau de la bande S_0 par absorption d'un photon, le deuxième à l'émission stimulée vers ce même niveau sous l'effet de la même pompe et avec la même section efficace. Le troisième correspond éventuellement à des relaxations intra-bandes vers $|S_{1k}>$, pour lesquelles il est difficile de vérifier si les transitions associées ont vraiment lieu, mais qui ne sont pas a priori interdites et ne changent pas l'évolution du problème. Le dernier terme est au contraire primordial puisqu'il décrit le dépeuplement du niveau $|S_{1k}>$ vers des niveaux plus bas de la bande S_1 et ce avec un taux Γ_{1k1i} très grand devant le taux de pompage W. En régime stationnaire $\left(\frac{dN_{1k}}{dt} = 0\right)$ on obtient donc

$$N_{1k} = \frac{W}{W + \sum_{i<k}\Gamma_{1k1i}}N_0 + \frac{\sum_{j>k}\Gamma_{1j1k}N_{1j}}{\sum_{i<k}\Gamma_{1k1i}} \tag{1.31}$$

avec $\Gamma_{1k1i} \gg W$ et donc N_{1k} est très petit devant N_0. Ceci constitue une situation favorable, car la pompe trouve une forte population de molécules dans l'état fondamental ce qui produit une absorption efficace. De plus l'état du haut se vide rapidement, avant que le processus d'émission stimulée n'ait lieu ; ce qui est heureux car nous n'avons pas intérêt à amplifier la pompe.

De même, un état S_{0k} du haut de la bande S_0 est peuplé par les désexcitations provenant des états de S_1, et dépeuplé très rapidement par les désexcitations intra-bandes vers les états du bas de S_0. L'équation d'évolution

$$\left[\frac{dN_{0k}}{dt}\right] = \sum_j \Gamma_{1j0k}N_{1j} - \sum_{i<k}\Gamma_{0k0i}N_{0k} \tag{1.32}$$

mène en régime stationnaire à

$$N_{0k} = \frac{\sum_j \Gamma_{1j0k} N_{1j}}{\sum_{i<k} \Gamma_{0k0i}}. \tag{1.33}$$

Ce niveau, bas pour la fluorescence, se vide très vite au profit des états inférieurs de la bande S_0. Ceci aussi est favorable à l'amplification nécessaire à l'effet laser. En effet, le faisceau microlaser peut autant créer des photons stimulés qu'être absorbé, à condition que les niveaux du bas soient remplis. Ce n'est pas le cas ici puisque les niveaux du bas sont vides. On a donc plus de stimulation que d'absorption ce qui est favorable à l'amplification.

Enfin, les états triplets (surtout le premier appelé T_1) qui sont en première approximation des états interdits par les règles de sélection, ont en fait une probabilité faible mais non nulle d'être atteints à cause de leur proximité énergétique avec S_1 et du couplage spin-orbite qui est un effet du deuxième ordre. Une conséquence de cette faible probabilité est la phosphorescence associée à un temps de vie caractéristique très long pour les états triplets. Ceci va à l'encontre de l'efficacité de notre milieu à gain car une molécule "coincée" dans l'état triplet ne participe plus à l'émission stimulée et donc à l'amplification. Ainsi, pomper en continu des molécules colorantes mène inévitablement à l'arrêt de l'émission laser car un nombre croissant, et à terme prohibitif, de molécules, se retrouve bloqué dans les états triplets. Deux stratégies sont couramment employées pour contourner ce problème. L'une est d'utiliser un flux de colorants ; les molécules sont en solution dans un circuit fermé qui recycle le colorant le temps que les molécules soient bien retournées à l'état fondamental. L'autre stratégie que nous utilisons est de pomper le milieu en régime impulsionnel, avec des impulsions courtes et surtout une cadence de répétition assez lente pour permettre à toutes les molécules de relaxer entre deux impulsions de pompes. Dans ces conditions, le système peut-être considéré comme un système à quatre niveaux effectifs comme le montre le diagramme simplifié de la figure 1.7-b.

1.4.2 Décalage de Stokes

L'existence de ces bandes à la place de niveaux discrets donne lieu à des bandes d'absorption et d'émission larges, contrairement à une molécule isolé. Dans la bande S_0 et en absence de pompage, les niveaux sont peuplés suivant une distribution de probabilité Boltzmann liée à la température du système selon laquelle les niveaux bas sont les plus (sinon les seuls) peuplés. De plus les hauts des bandes sont plus denses en niveaux que les bas. En conséquence l'absorption se fait préférentiellement entre les niveaux bas de S_0 (plus peuplés) et les niveaux hauts de la bande S_1 (plus denses et vides). En pratique, cela se traduit par un spectre d'absorption en cloche centrée sur une fréquence ν_a supérieure à $\frac{E_{S_{00}} - E_{S_{10}}}{h}$.

Les processus de relaxation intra-bande non radiatifs, décrits par les forts taux Γ_{1k1i} dans l'équation 1.29, sont très efficaces et provoquent systématiquement la relaxation d'une molécule excité de l'état $S1, n$ vers l'état $S_{1,0}$. En ajoutant à cela que la bande S_0 est plus dense dans sa partie haute, on comprend pourquoi le spectre de fluorescence d'une molécule est centré sur une

fréquence ν_f inférieure à $\frac{E_{S_{00}}-E_{S_{10}}}{h}$. La différence entre ν_a et ν_f est appelée décalage de Stokes (*Stokes-shift*). Un grand décalage de Stokes est une propriété importante d'un bon colorant laser. En effet, les bandes d'absorption et de fluorescence se recouvrent d'autant moins que le décalage Stokes est grand. Ceci qui réduit le phénomène de réabsorption selon lequel un photon émis par une molécule peut être absorbé par une autre, nuisant ainsi la qualité du milieu à gain puisque le rôle voulu pour ces molécules est de transférer un maximum de photons de la pompe vers le mode microlaser.

Le DCM utilisé dans presque toutes les expériences de cette thèse a un décalage de Stokes de 160 nm d'après le fabricant, en solution dans le méthanol. Il faut garder à l'esprit que les longueurs d'ondes d'absorption et d'émission dépendent fortement du solvant ou de la matrice contenant les molécules [58]. De plus l'émission centrale de fluorescence est différente a priori de la fréquence centrale du gain laser.

1.4.3 Anisotropie des molécules

Ces molécules ne sont pas en général isotropes mais possèdent un dipôle d'absorption privilégié. Son origine se trouve dans la différence des répartitions spatiales des charges entre les niveaux S_1 et S_0. On le défini par $\vec{d_a}(f \rightarrow e) =< \psi_f|\hat{\vec{\mu}}|\psi_e >$, où $|\psi_f >$ et $|\psi_e >$ sont respectivement les fonctions d'ondes électroniques respectives d'un état $|f >$ fondamental et d'une état $|e >$ excité, et où $\hat{\vec{\mu}} = -e\sum \hat{\vec{r_i}}$ et l'opérateur dipôle électronique.

Un photon incident dont la polarisation fait un angle α avec $\vec{d_a}(f \rightarrow e)$ déclenche la transition de l'état f vers l'état e avec une probabilité proportionelle à $\cos^2\alpha$. De même que pour les différences entre les spectres d'absorption et d'émission, l'existence de bandes au lieu d'état discrets a pour conséquence que le moment dipolaire d'absorption n'est pas nécessairement aligné avec le moment dipolaire d'émission.

Toutefois, dans le cas du DCM, les moments dipolaires d'absorption et d'émission sont alignés. Lors d'un pompage sous polarisation $\vec{P}$ linéaire, les molécules orientées perpendiculairement à $\vec{P}$ ne seront pas excitées du tout. Comme ces molécules sont celles qui ont la plus forte probabilité d'émettre des photons dans la direction de $\vec{P}$, on en conclu que la lumière se propageant selon la direction de $\vec{P}$ sera moins amplifiée que la lumière se propageant perpendiculairement à $\vec{P}$. De tels effets ont été étudiés en détails dans [58]. Des expériences rapportées dans cette thèse y sont reliées, en particulier dans la partie 4. Cependant j'ai autant que possible utilisé une polarisation de pompage circulaire afin de m'affranchir de ce paramètre supplémentaire qu'est l'orientation du pompage. Il faut noter qu'en 2010 au début de la thèse, aucun effet dû à la polarisation n'était encore connu. Donc beaucoup d'expériences ont du être réinterprétées au cours de la thèse d'Iryna Gozhyk comme de la mienne.

1.4.4 Gain

Le gain est le taux d'amplification d'un faisceau lors de son passage à travers le milieu. Le phénomène responsable du gain est l'émission stimulée entre des niveaux bas de la bande S_1 et

des niveaux hauts de la bande S_0. La condition d'inversion de population est satisfaite grâce au système à quatre niveaux. Mais l'existence du faisceau amplifié modifie les équations puisqu'il faut compter l'absorption de ce faisceau et l'émission stimulée par lui et non pas seulement la fluorescence dans l'équation 1.29. On a donc un couplage entre les évolutions des populations et celle du champ électromagnétique. L'existence d'un grand nombre de niveaux dans chacune des bandes et la méconnaissance de la structure du champ électromagnétique rendent le problème hautement complexe. Cependant il est toujours primordial de connaître le cas simple de l'amplification d'un faisceau se propageant à travers le milieu amplificateur. Considérons donc un faisceau monochromatique à la fréquence ν accordée sur l'énergie de transition. D'intensité I, il traverse dans la direction z le milieu à gain de section Σ. Entre les coordonnées z et $z + dz$, l'émission stimulée et l'absorption se produisent simultanément avec un bilan de photons égal à

$$\delta_\varphi = \sigma\Phi_\varphi \frac{N_0}{\Sigma L}\Sigma dz - \sigma\Phi_\varphi \frac{N_1}{\Sigma L}\Sigma dz = \sigma\Phi_\varphi \frac{\Delta N}{L} dz \quad . \tag{1.34}$$

Il est donc du signe de ΔN qui est la différence entre le nombre total de molécules excitées et le nombre total de molécules dans l'état fondamental. Le flux de photons a ainsi gagné sur la longueur dz une quantité δ_φ/Σ ce qui lui donne une amplification linéaire $\frac{d\Phi\varphi}{dz} = \frac{\sigma\Delta N}{V}\Phi_\varphi$ amenant une croissance exponentielle du flux lors de la propagation dans le milieu à gain. Le coefficient $g = \frac{\sigma\Delta N}{V}$ est le gain linéaire qui s'exprime en cm^{-1}.

Dans nos expériences, avec du DCM dans le film de PMMA, nous avons à notre disposition un gain linéaire variant entre 0 et 500 cm^{-1} [58] proportionnellement à l'intensité du pompage. Dans le cadre de l'effet laser un mode s'allume seulement si le gain linéaire sur la trajectoire de la lumière compense les pertes de ce mode. En augmentant progressivement le gain linéaire jusqu'à l'apparition du premier spectre laser, il est alors possible de croiser les valeurs quantitatives des pertes et du gain. Ceci établit le lien avec la section 1.3 où on a donné une méthode pour évaluer les pertes de certains modes des résonateurs, ceux liés à une orbite périodique.

1.5 Effet Laser

Nous avons jusqu'à présent modélisé le résonateur et le milieu amplificateur séparément l'un de l'autre. Afin de décrire l'expérience, il reste indispensable de prendre en compte les deux à la fois. On attend du gain qu'il apporte une amplification du champ dans l'espace intérieur qui compense les pertes quantifiées par le taux d'amortissement des résonances, permettant ainsi au champ électromagnétique de subsister, voire d'être amplifié, à l'intérieur de la cavité. Cette amplification ne peut se faire indéfiniment car le gain sature, ce qui est un effet non-linéaire. On quitte alors le problème linéaire que j'ai décrit jusqu'à présent pour un problème non-linéaire, ce qui amène un degré de complexité supplémentaire.

1.5.1 Problèmes

Le processus d'émission stimulée introduit un couplage non-linéaire entre le nombre de photons dans un mode laser et l'inversion de population disponible dans le milieu à gain pour amplifier

ce mode. En effet l'amplification est proportionnelle à la fois à l'une et à l'autre de ces quantités qui sont par ailleurs liées dans leur évolution par le fait que le mode reçoit un photon lorsqu'une molécule se désexcite.

Pour un laser uni-dimensionnel, monomode, dont le mode est uniforme à l'intérieur du milieu à gain (par exemple un laser continu dans une cavité en anneau) et pour lequel la résonance a un très grand facteur de qualité, le mode laser est bien décrit par le mode résonant de la cavité. L'intensité et l'inversion de population locales sont aussi bien décrites par leurs valeurs moyennes. Toutes les grandeurs peuvent être considérées comme uniformes. Dans ce cas ultra-simplifié, la dynamique du laser, à savoir son existence (on ou off), et son régime de fonctionnement (continu ou instable) dépendent fortement des différents paramètres, à savoir le taux de pompage, le taux d'amortissement de la cavité, le taux de désexcitation non-radiative de l'inversion de population, et la section efficace de l'interaction champ / molécule. La physique d'un tel système est riche (nombreux sous-cas) et la physique de nos microlasers l'est encore plus puisqu'à ce modèle "simple" viennent s'ajouter d'autres phénomènes qui apportent chacun une part de complexité. Les caractères bi-dimensionnel et ouvert, qui ont déjà été discutés, empêchent une connaissance a priori de la structure spatiale des mode. A priori ces structures sont non-uniformes sur l'ensemble de la surface ce qui sature le gain de manière non-uniforme également. Le milieu à gain remplissant l'ensemble de la cavité, les variations d'indice provoquées par les variations de la partie imaginaire de la polarisabilité peuvent aussi avoir des effets sensibles sur la stabilisation d'un mode laser [63, 64]. En amont de cela, le pompage est éventuellement non-uniforme aussi. Le faible confinement des modes implique que les modes lasers sont différents des modes résonants dans la cavité passive, si tant est qu'on ait pu calculer ces derniers. Le caractère multi-mode implique nécessairement un couplage entre les modes ne serait-ce qu'à travers le partage spatial du gain. Il n'est pas exclu en outre que des effets d'optique non-linéaire interviennent.

Il me semble à propos de remarquer ici que ce qu'on appelle "mode laser" ne trouve pas dans la littérature de description précise, en particulier dans le cas des lasers à faible confinement comme nos microlasers organiques, et encore moins pour les lasers aléatoires, le laser étant essentiellement un état hors équilibre d'un système matière/champ.

1.5.2 Utilisation des connaissances du problème linéaire et mise à l'épreuve de l'expérience

Une remarque préliminaire concerne les modes résonants calculés numériquement à partir de l'approximation de l'indice effectif. Pour certaines formes simples comme le carré et le disque de la figure 1.3, on trouve des modes dont les fréquences sont aussi proches de l'axe réel que l'on veut. Cela sous-entend des facteurs de qualité élevés et donc un laser quasiment sans seuil puisqu'il n'y a pas de pertes. En réalité l'expérience montre qu'il existe toujours un seuil significatif. Comme le calcul des modes, confirmé par plusieurs méthodes indépendantes, est fiable, c'est dans l'approximation de l'indice effectif qu'il faut chercher la cause de pertes manifestement oubliées. De plus, aucune des distributions de champ lointain des modes calculés ne correspondent en général aux diagrammes d'émission expérimentaux. En outre il reste un problème théorique peut-être important dans la

définition même des modes résonants du problème linéaire dont on a parlé au paragraphe 1.2.4 à propos du champ lointain des modes résonant.

Afin de fournir une solution à ce problème, Stone et al. [23] proposent de relâcher la contrainte d'une seule fréquence. Cela permet d'obtenir de nouvelles solutions de l'équation de Helmoltz. En pratique, ils partent d'une base de fonctions composée des résonances calculées par la méthode précédente. Par contre, ils considèrent, à l'intérieur de la cavité que le produit complexe nk n'est pas un indice optique associé à une résonance amortie $\frac{n}{c}(\omega' + i\omega'')$ mais un indice complexe associé à une fréquence réelle $(n' + in'')\frac{\omega}{c}$ où $\frac{n''\omega}{c}$ correspond au gain linéaire. Cette vision, qui est aussi utilisée dans le cadre de la méthode IBEM (par exemple dans [42]), est totalement équivalente à la première vision. La méthode de Stone et al. reste cependant très lourde à mettre en œuvre numériquement. En outre dans le cas où des résonances sont proches de l'axe réel, les solutions trouvées pour les modes lasers diffèrent très peu des résonances. Ceci est cohérent avec le fait que la fonction de Green diverge d'autant "moins" que la partie réelle de k est petite en valeur absolue et n'explique donc pas la raison du seuil expérimental.

Une autre approche est d'utiliser les calculs numériques par la méthode FDTD en incluant le gain à l'intérieur de la cavité. Le groupe de Patrick Sebbah à l'ESPCI/Institut Langevin est spécialisé dans cette approche qui requiert une puissance de calcul importante [27, 26].

1.5.3 Apports de l'approche semi-classique

La vision classique des résonances supportées par des orbites périodiques à l'intérieur de la cavité, a été discutée en détail au chapitre 1.3.

Pour orbite périodique, la quantification longitudinale donne les fréquences complexes des modes scars, qui sont, encore une fois, seulement des modèles et non pas des vrais modes. Elles sont issues de la relation :

$$\exp(n_{\text{eff}} k L_{\text{op}}) R_{\text{op}} = 1 \quad , \tag{1.35}$$

où R_{op}, le produit des coefficients de Fresnel des réflexions, est un nombre complexe. C'est la phase $nk_rL + \phi(R) = 2p\pi$ qui donne la quantification longitudinale. Les modes sont donc équidistants en fréquence, d'une distance que l'on nomme *intervalle spectral libre* (ISL) et c'est ce que nous observons dans l'expérience comme le montre la figure 1.8. Une subtilité importante doit être considérée afin d'interpréter correctement les données acquises. L'indice n à considérer n'est pas seulement l'indice effectif du film en PMMA. En effet les travaux du groupe ont montré, depuis 2007 [21], que la dispersion ne doit pas être négligée. En supposant l'ISL δk_r faible et que l'indice effectif dépend de k_r, on obtient $\delta k_r = \frac{2\pi}{\left(n_{\text{eff}}(k_r) + k_r \frac{\partial n_{\text{eff}}}{\partial k_r}(k_r)\right) L}$. En appelant indice complet $n_{\text{comp}} = n_{\text{eff}}(k_r) + k_r \frac{\partial n_{\text{eff}}}{\partial k_r}(k_r)$, on obtient $\delta k_r = \frac{2\pi}{n_{\text{comp}} L}$ qui est l'outil dont nous servons véritablement pour analyser le spectre. Le force de cette formule est que l'indice complet peut être recoupé avec des mesures de dispersions réalisées par ellipsométrie, et ce avec un bon accord. En pratique, la méthode utilisée pour analyser le spectre de manière quasi automatique est de prendre sa transformée de Fourier (TF). Ainsi l'écart entre les pics apparaît directement car le premier pic de la TF est centré sur $n_{\text{comp}} L$. En faisant cela, nous reproduisons exactement la méthode présentée en section 1.3.6

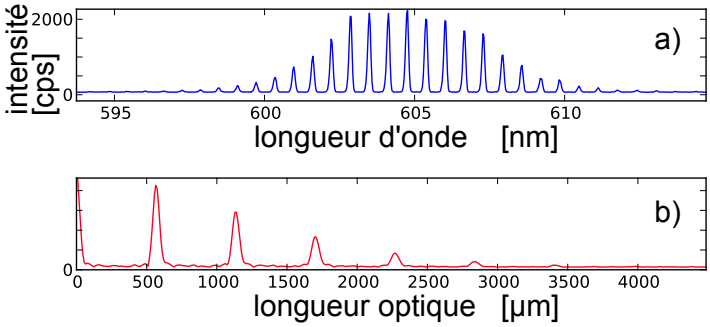


Figure 1.8 – Données expérimentales typiques, obtenues pour un microlaser de type Fabry-Perot de largeur 160 μm. a – spectre. b – transformée de Fourier du spectre (a). Comme l'indice complet est 1.64, on retrouve la longueur optique de l'orbite 160 μm $\times 2 \times n_{\text{comp}} = 525$ μm directement sur le premier pic de la TF.

pour l'analyse des spectres numériques des résonateurs passifs.

Par ailleurs, c'est le module de l'équation 1.35 qui donne l'information sur le seuil théorique des modes scars. Au seuil $\exp(\frac{g_{\text{seuil}}}{2} L_{\text{op}})|R_{\text{op}}| = 1$ avec $g_{\text{seuil}} = -2n_{\text{comp}}k_i$ et le facteur 2 provient du fait que le gain linéaire a été défini en intensité et non en amplitude dans la section 1.4.4. Lorsque plusieurs orbites sont identifiées, il est aisé de calculer le gain seuil des modes scars associés par $g_{\text{seuil}} = -\frac{2\ln|R_{\text{op}}|}{L_{\text{op}}}$. Ainsi ce modèle donne une prédiction de la *première famille* lasante, lorsque qu'on fait croître la pompe en partant d'une valeur inférieure au seuil le plus bas. Jusqu'à présent à ma connaissance, ces prédictions n'ont jamais été mises en défaut. On verra sur l'exemple des triangles au chapitre 5 qu'elle sont vérifiées dans les cas où elle sont applicables. Mais on verra aussi sur l'exemple des triangles que des modes lasers existent parfois en dehors du modèle des orbites périodiques.

Au dessus du premier seuil, ces approches ne sont a priori plus valables, car le gain est fortement non-uniforme à cause de la saturation. Pour autant, il existe des microlasers émettant un spectre contenant clairement deux ou plusieurs familles de modes avec des seuils éventuellement différents. Savoir quelle est l'influence de la compétition entre modes, à l'intérieur d'une famille ou entre modes de familles différentes reste un défi actuel. Nous observons toujours une famille de plusieurs pics ayant apparemment un seuil commun, et à ma connaissance jamais de pic isolé. Ce comportement ne s'explique pas de manière triviale aujourd'hui car l'argument du seuil identique n'est pas suffisant. Ces questions sont partiellement développées dans la partie 6 où l'on a cherché à approfondir l'éventuelle synchronisation de modes soutenus par une même orbite.

Chapitre 2

Techniques

2.1 Introduction

Les méthodes de fabrication et le montage de caractérisation optique ont été mis au point au long de plusieurs doctorats au LPQM. L'origine des méthodes de fabrication est l'ancien laboratoire du CNET de Bagneux. Quant aux montages optiques, ils sont inspirés des activités de Richard Chang à l'université de Yale aux USA, dont la collaboration avec Joseph Zyss, dans le domaine alors nouveau des micro-cavités en polymères, avait contribué à initier et implanter le domaine à Cachan au début de la précédente décennie. Les thèses de Tahar Ben Messaoud, Mélanie Lebental, Nadia Djellali, Sergey Lozenko, et Iryna Gozhyk ont chacune fait progresser le savoir-faire et la compréhension de l'équipe sur le sujet. Elles ont toutes bénéficié des moyens techniques du LPQM puis aussi de l'Institut d'Alembert avec en particulier la salle blanche et l'aide précieuse des deux ingénieurs qui en ont été responsables, Rolland Hierle et Joseph Lautru qui en a actuellement la charge. La technique de fabrication de nos lasers par lithographie UV est intégralement réalisable dans cette salle blanche. Cependant les échantillons utilisés dans cette partie ont presque tous été fabriqués par gravure par faisceau électronique au Laboratoire de Photonique et Nano-structures de Marcoussis. Ceci est rendu possible par une collaboration depuis 2008 avec Christian Ulysse.

Les techniques de fabrication présentées au début de ce chapitre concernent uniquement des résonateurs plans, que j'appelle aussi "*2D*", dont la géométrie a déjà été décrite sur la figure 1.1. La partie II de cette thèse est spécialement dédiée aux résonateurs *3D* alors que dans la partie I, tous les résonateurs sont *2D*. Je décris ensuite les montages optiques dédiés à la caractérisation de tous les microlasers, de structures *2D* ou bien *3D*. Un premier montage expérimental bien rodé, dénommé "montage 2D", permettant l'acquisition de diagrammes d'émission dans le plan des micro-résonateurs était en place à mon arrivée. L'équipe des thésards stagiaires et post-doctorants l'avons toutefois sensiblement amélioré tout au long de la thèse de manière à contrôler la polarisation du faisceau de pompage et à bénéficier d'une automatisation partielle de l'expérience grâce à un passage sous le logiciel d'interfaçage et de programmation Labview. Le deuxième montage de détection appelé "3D" ou "SAS" pour "Scanner à Angle Solide", permettant la collection de la

lumière dans toutes les directions de l'espace, y compris hors du plan de l'échantillon, a été conçu et fabriqué intégralement pendant ma thèse puis mis en œuvre. Un bénéfice collatéral aura été l'acquisition d'images de lasers grâce à une lunette d'imagerie, initialement dédiée au positionnement de l'échantillon dans le SAS, ce qui aura apporté d'importantes données supplémentaires pour la compréhension des modes lasers.

2.2 Fabrication de microlasers plans

Pour les microlasers plans, nous avons utilisé deux alternatives pour la procédure de fabrication : l'une est la lithographie UV qui est mise en œuvre en totalité à l'ENS de Cachan, la deuxième utilisant la gravure par faisceau électronique maîtrisée au LPN à Marcoussis. Avant de les détailler, je commente le choix des matériaux qui est évidemment crucial dans la fabrication de microlasers. Pour finir, je décris une étape facultative mais apportant plusieurs avantages importants, tant pour la performance que pour la compréhension fondamentale des microlasers, à savoir la mise sur piédestal.

2.2.1 Matériaux

Le matériau utilisé est le PMMA (poly-méthacrylate de méthyle) contenant des molécules d'un colorant organique laser (*laser dye* en anglais). On parle de "matrice" polymère hôte d'un colorant. On dit aussi que le polymère est "dopé" par le colorant.

Matrice polymère

Le PMMA est disponible sous forme de longues chaînes polymères en solution dans l'anisole. Nous utilisons la solution PMMA A6 commercialisé par la société Microchem. Elle contient 6% en masse de polymère et les chaînes ont environ une masse moléculaire de 495 000 g/mol. Le colorant sous formes solide (poudre) est dissout dans la même solution à hauteur de 5% en masse du polymère sec. L'opération de dissolution est faite par agitation magnétique durant 24 h. Le dépôt d'une couche de PMMA-colorant se fait par centrifugation sur un substrat en silice sur silicium. Acheté chez A.C.M. (78640) ces substrats en silicium, circulaires de diamètre 3" ont été oxydés thermiquement sur une épaisseur de 2 μm. L'indice optique dans cette couche est donc celui de la silice, soit 1.41 à la longueur d'onde 600 nm, ce qui est plus faible que celle du polymère (1.49), et autorise le confinement vertical par l'indice. Cette couche a donc un rôle primordial pour le guidage de la lumière.

Nous utilisons les paramètres de centrifugation suivants : lors d'une première étape le plateau tournant passe de 0 à 500 tours par minute en 1 s puis y reste 5 s, puis lors d'une deuxième étape il accélère jusqu'à 1200 tours par minute par une rampe de vitesse de 1200 tours/min par seconde puis reste sur ce plateau pendant 18 s. La couche est alors recuite à 120°C ce qui parachève la polymérisation de la couche et évapore toute trace de solvant. Les recuits de PMMA "pur" sont conseillés à 200°C mais cette température est trop élevée pour les colorants qui seraient alors

détruits. Nous choisissons donc un recuit à température moins élevée mais d'une durée d'environ 2 h. La dégradation des colorants est ainsi réduite. Des études précédentes par Nadia Djellali ont montré qu'au moins de 80% du colorant survit toujours à cette étape de recuit.

On considère que les molécules de colorant sont alors immobiles dans la matrice, réparties de manière homogène, selon une orientation isotrope. Cependant cette dernière hypothèse n'est pas vraiment confirmée car le dépôt par centrifugation est un procédé mécaniquement asymétrique si on se place en un point hors de l'axe de rotation [58, 65]. Des expériences de génération de seconde harmonique seraient souhaitables pour trancher cette question.

L'épaisseur de la couche ainsi déposée est environ 700nm d'épaisseur. Cela se mesure précisément avec un profilomètre Dektak : un stylet en contact avec la surface vient scanner le profil le long d'un segment, avec une faible pression, réglable et asservie. Sur la surface, on a préalablement fait une rayure dans la couche solide. Le déplacement vertical du stylet entre la silice du fond de la rayure et le haut de la couche donne la mesure de l'épaisseur.

La couche possède une très bonne qualité de surface. Des études précédentes ont optimisé tous ces paramètres. On a jugé qu'il n'était pas nécessaire pour notre étude de les remettre en question, sauf indication contraire. En particulier la dose de 5% en masse de polymère a déjà fait l'objet d'une optimisation dans le cas du colorant DCM. Une dose plus forte aboutirait à des effets intermoléculaires (le FRET par exemple) indésirables ici qui nuiraient à leur efficacité de fluorescence. Une dose plus faible réduirait le gain ce qui demanderait une intensité de pompage plus grande, qui n'est pas forcément disponible, ou qui risquerait d'endommager (brûler) le polymère. L'épaisseur de la couche de silice (2 μm) peut paraître faible devant la longueur d'onde mais des études comparatives avec l'épaisseur de 5 μm dans le groupe de Chi-Thanh Nguyen n'ont pas mis en évidence de différence dommageable. Enfin, l'utilisation de solutions de PMMA faites maison et moins onéreuses ne fournit pas la même qualité de surface que la solution de Microchem.

Molécules colorantes, milieu à gain

Les colorants utilisés sont le DCM , les rhodamines 590 et 640, les pyrromethènes 567, 597 et 605 et le MD7. Hormis ce dernier, qui appartient la famille des pyrromethène-body-Pi, synthétisé dans l'équipe de Rachel Méallet-Renault et Gilles Clavier au PPSM de l'ENS de Cachan [66], les autres colorants sont achetés à la compagnie Exciton (Daytown, USA). Leurs formules sont données en figure 2.1

Une ou plusieurs étapes de lithographie sont alors nécessaires pour structurer la couche jusqu'à l'obtention de micro-résonateurs.

2.2.2 Lithographie UV

La lithographie UV est une technique réalisée entièrement à l'institut d'Alembert. C'est la technique historique peu coûteuse et rapide qui est à la base de l'activité technologique du groupe. Elle comprend une étape de dépôt d'une résine photosensible par dessus la couche de PMMA dopée, son exposition aux Ultra-Violets sur un aligneur à travers un masque en chrome sur quartz. Lors du développement, le motif du masque est répliqué dans la résine, avant d'être répliqué à nouveau

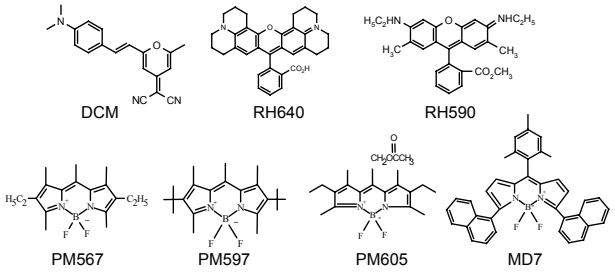


Figure 2.1 – Formules de Lewis des colorants utilisés. RH : rhodamine, PM : pyrromethène, MD7 : variété de PM synthétisé au PPSM

dans la couche de PMMA dopée par gravure au plasma d'oxygène. Je ne détaillerai pas plus ici la méthode de lithographie UV pour deux raisons. Tout d'abord, tous les échantillons planaires étudiés dans cette partie ont été réalisés par lithographie électronique qui offre une meilleure précision. De plus la lithographie UV sera décrite en détail dans la partie II de cette thèse consacrée aux micro-résonateurs *3D* puisque nous l'avons largement utilisée pour la fabrication d'échantillons épais.

2.2.3 Lithographie électronique

La lithographie électronique est, de notre point de vue, plus simple mais elle nécessite un équipement d'une complexité bien supérieure à celle de la première méthode, à savoir un faisceau d'électrons. La gravure se fait par balayage du faisceau à l'intérieur de la zone à éliminer, directement dans la couche de PMMA dopée. L'appareil utilisé est un système EPBG 5000+ de la marque Leica, au LPN. Un fichier électronique est édité à l'ENS Cachan par le logiciel *Layout Editor*, qui détermine la zone à graver. Comme c'est le temps de faisceau qui détermine le coût de la fabrication, et même si ce temps ne nous est pas facturé, nous préférons extruder une aire dont la la forme est décrite sur la figure 2.2, la zone effectivement éliminée entourant une cavité. La distance entre la cavité et le bord de la couche de PMMA environnante est choisie assez grande pour que lors du pompage optique décrit en partie 2.3.1, le faisceau de pompe puisse recouvrir la cavité sans éclairer la couche autour ce qui fournirai de la fluorescence parasite et éventuellement un effet laser également parasite suivant la géométrie globale de l'échantillon. Un fichier électronique décrivant ces formes géométriques simples, avec une précision de 1nm, est donc fourni à l'appareil de lithographie par faisceau électronique. Après l'exposition, le PMMA exposé est retiré par développement dans une solution maintenue à 20°C de Methyl-isobutyl-ketone mélangé à de l'isopropanol dans un rapport d'un volume pour 3. Le développement dure 45 secondes et le substrat est enfin séché. Le résultat est une gravure d'une précision nanométrique (cf photo au microscope électronique 1.1-b). Chaque forme de cavité est réalisée en trois exemplaires car il n'est pas rare d'avoir des défauts, en général visibles clairement au microscope.

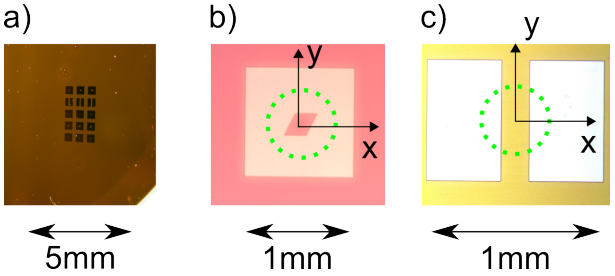


Figure 2.2 – Photographies au microscope optique de cavité fabriquées par lithographie électronique. a– wafer entier contenant 12 cavités. Les carrés blancs entourant chaque cavité correspondent à la zone où la couche a été gravée. La couleur jaune ou rose de la couche est due au colorant respectifs DCM et pyrrométhene b– cavité en forme de parallélogramme. c– cavité "Fabry-Perot" en forme de ruban. Les extrémités du ruban sont dans la couche résiduelle. Ainsi, il n'y a pas de réflexion sur les extrémités du ruban car la lumière se "perd" dans la couche. Les cercles en pointillés représentent les zones de pompage.

2.2.4 Mise sur piédestal

La mise sur piédestal se fait par gravure à l'acide fluorhydrique (HF) de la couche de silice sous-jacente. La silice située directement en dessous d'une cavité en polymères est protégée, le PMMA étant effectivement inerte à l'exposition au HF. En fait, la silice sous la cavité est attaquée lentement en commençant par les bords, menant au résultat exposé sur la figure 2.3. En jouant sur le temps d'immersion, on contrôle l'excursion de la gravure sous la cavité. En une dizaine de minutes, elle atteint environ 1.5 μm [67], laissant les bords de la cavité libres dans l'air. La qualité de gravure et la géométrie exacte de la silice après cette étape n'est toutefois pas exactement connue car la progression de la gravure se fait principalement par diffusion. Cette opération, relativement risquée de par la grande nocivité de l'acide fluorhydrique, a toujours été réalisée, avec toutes les précautions nécessaires, par Joseph Lautru, dans la salle blanche de l'Institut d'Alembert. Les études précédentes menées par Sergey Lozenko avaient montré que la présence d'un piédestal augmente très fortement l'efficacité de nos microlasers [68]. La raison de cette performance accrue doit être cherchée dans les problèmes de diffraction qui échappent par nature aux modèles 2D de l'approximation d'indice effectif. C'est pourquoi durant ma thèse nous avons étudié la diffraction de microlasers, par exemple à l'aide du scanner à angle solide dans le chapitre 3.2. On y montre que les microlasers sur piédestal présentent des diagrammes d'émission en latitude différents de ceux simplement posés sur substrat.

2.3 Montage expérimental de caractérisation optique

Le principe essentiel de caractérisation de nos activités est la détection de la lumière émise par les microlasers que l'on soumet à un pompage contrôlé par la puissance, la taille du faisceau et l'état de polarisation. Je décris d'abord le montage *2D*, que l'on utilise dans tous las cas ou la détection

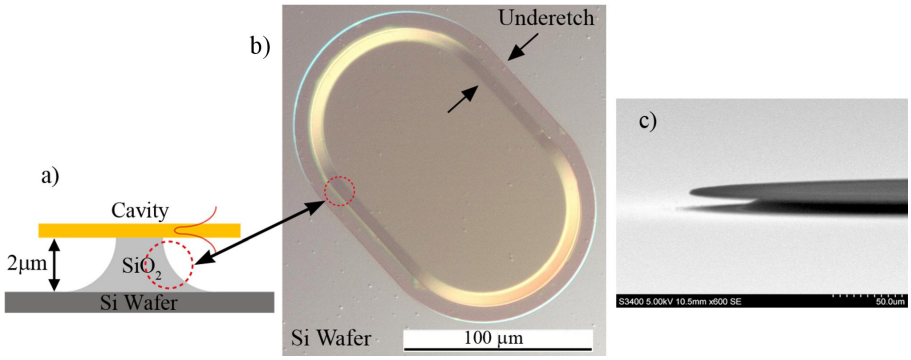


Figure 2.3 – Microlasers sur piédestal sur l'exemple d'un stade. a– schéma de principe b– photographie au microscope optique. La gravure est visible par transparence du pmma. c– photographie au microscope électronique à balayage. Photographies par Sergey Lozenko [67, 68].

de la lumière émise dans une direction appartenant au plan du substrat est suffisante. L'étude spectrale est systématiquement utilisée puisque le détecteur est presque toujours un spectromètre. Dans certains cas, nous avons recours à des photo-diodes et à des caméras CCD, par exemple pour l'imagerie directe, qui est une nouvelle technique assez simple que je décris ensuite. Le nouveau montage "3D" – le *SAS* déjà mentionné – est décrit dans une section à part 2.4, afin de détailler au maximum les caractéristiques ce nouvel outil, y compris les conditions de sa fabrication et son alignement. Le SAS présente une avancée par rapport au montage 2D au niveau géométrique. Sur la table optique dont des photographies sont présentées à la fin de ce chapitre en figure 2.12, un miroir amovible permet d'utiliser la même source pour l'un ou l'autre des deux montages mais pas les deux à la fois. Comme le spectromètre est fibré, nous l'utilisons également pour le montage 3D.

2.3.1 Montage "2D"

Le montage "2D" (voir schéma 2.4) permet le pompage d'un seul microlaser et la détection de la lumière émise dans une direction donnée.

Pompage

La pompe est fournie par un laser Nd :Yag doublé en fréquence, de la marque Teem'photonics. La lumière à 532 nm est pulsée à 10Hz, la durée d'une impulsion de pompe étant de l'ordre de 500 ps. La puissance de la pompe est ajustée entre 0 et environ 20 µJ par impulsion. Nous utilisons pour cela l'association d'une lame demi-onde et d'un cube séparateur de polarisation dont on ne garde que la sortie polarisée verticalement. La polarisation est aussi ajustée à l'aide de d'une lame demi-onde pour obtenir une polarisation linéaire orientée selon un angle arbitraire et éventuellement avec une lame quart-d'onde additionnelle pour circulariser la polarisation. La taille du spot au niveau de l'échantillon est ajustée par une lentille afin que le spot couvre l'ensemble du microlaser. Enfin le faisceau est rendu vertical par un miroir à 45° et vient éclairer un microlaser par dessus en incidence

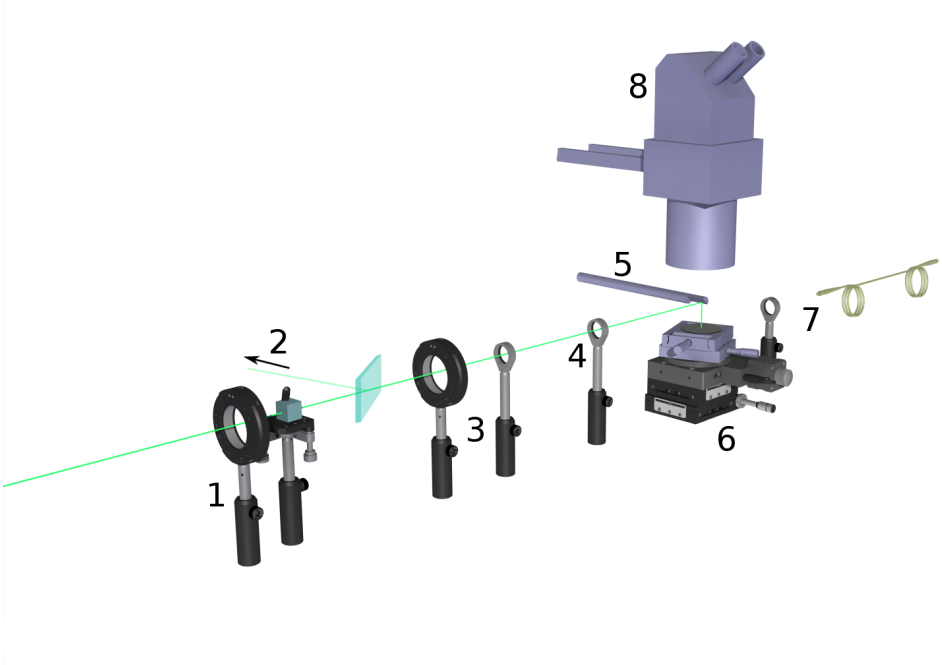


Figure 2.4 – Représentation du montage optique. 1– contrôle de puissance : lame demi-onde et cube séparateur. 2– vers le puissance-mètre 3– contrôle de la polarisation : lame demi-onde sur support rotatif et lame quart-d'onde 4– contrôle de la taille du spot de pompage, lentille. 5– miroir en argent à 45°. 6– support d'échantillon, platine de rotation motorisée et translations manuelles de centrage. 7– lentille de collection et fibre vers la fente d'entrée du spectromètre. 8– loupe binoculaire pour le positionnement de l'échantillon.

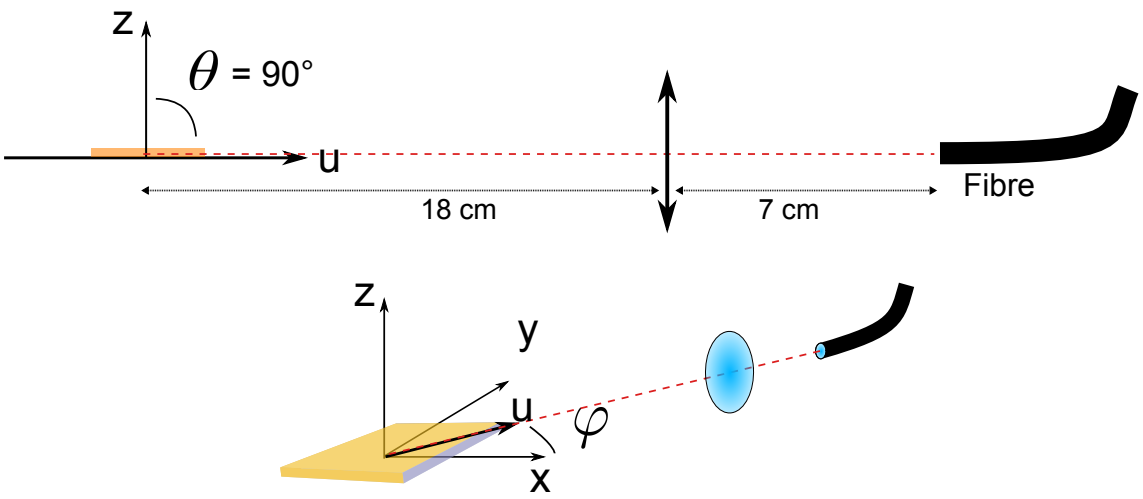


Figure 2.5 – Positionement de la lentille de collection : dans une direction φ ajustable par la platine de rotation et dont l'axe optique est dans le plan du substrat.

normale par rapport au substrat. Le diamètre du spot mesure typiquement 500 μm au niveau de l'échantillon. Cela a été mesuré par une caméra CCD positionnée directement à l'emplacement du microlaser.

La position du microlaser est ajustée manuellement par deux platines de translation. Celles-ci reposent sur une platine de rotation dont la position est aussi ajustée par deux platines de translation sous-jacentes. Ainsi les microlasers sont à la fois centrés sur le faisceau de pompage vertical et sur l'axe de rotation de la platine, vertical lui aussi. De cette façon, l'échantillon tourne tandis que le détecteur reste fixe. Cela induit deux biais : d'abord le spot n'étant pas beaucoup plus gros que la cavité et contenant éventuellement des tavelures à cause des imperfections des éléments optiques, il n'est pas certain que la géométrie du pompage reste strictement égale après une rotation de l'échantillon. De plus, une attention particulière doit être donnée à la polarisation qui dans tous les cas autres que circulaire, doit être tournée en même temps que l'échantillon afin d'étudier "le même laser".

Un point faible de ce montage est le miroir à 45°. En plus de la difficulté à l'aligner, ce miroir fait partiellement obstacle à la loupe qui sert à positionner l'échantillon. Un miroir diélectrique n'est pas envisageable car cela perturberait totalement le contrôle de la polarisation. Pour ces raisons il doit être petit et métallique. Nous avons donc utilisé des miroirs faits maison en salle blanche par dépôt de chrome ou d'argent sur des substrats de silicium. Aucun miroir commercial ne satisfait à la fois à ces contraintes géométriques et d'absence de couche diélectrique de protection.

Détection

Une lentille image la cavité sur la face d'entrée d'un faisceau de 19 fibres LG-455-020-1m qui est relié à la fente d'entrée d'un spectromètre à réseau ACTON SP 2500 i de la marque Princeton Instruments. Le spectre est acquis par une caméra refroidie PIXIS 100 également de la marque Princeton Instrument. Le spectre est discrétisé à 0.03 nm par pixel dans la région des 600nm. La résolution donnée par le constructeur est de 0.1nm. Le refroidissement de la caméra vers -70° C permet une détection peu bruitée. Chaque série d'acquisition commence par l'enregistrement d'un spectre "noir" qui est par la suite retranché au spectre d'intérêt de manière automatique par le logiciel. Un spectre "noir" présente environ 560 coups par secondes sur chaque pixel. Ensuite quelques spectres sont enregistrés (typiquement 10 à 30) et leur moyenne est effectuée, ce qui ne change pas la forme du spectre en peigne de fréquence, mais lisse par contre un peu l'enveloppe du peigne. En effet pour les impulsions de pompes successives, les intensités relatives des spectres varient sans que leur position ne soit modifiée. Le moyennage sur une dizaine de spectre suffit pour faire disparaitre les fluctuations d'amplitude.

La distance microlaser lentille est de 18cm pour des raisons d'encombrement. Le diamètre de la lentille est de 1 pouce, ce qui donne une ouverture numérique de 0.07, bien inférieure à l'ouverture numérique des fibres (0.22). L'image du microlaser, située à une distance de 7 cm de la lentille, est grossie 0,4 fois. L'image est plus petite que le microlaser lui même. Pour un gros microlaser de taille 500 μm l'image mesure donc 200 μm et pourrait donc rentrer dans une seule fibre du faisceau de 19 fibres de 200 μm de diamètre chacune (245 μm avec le revêtement protecteur). Avec le premier cercle autour de la fibre centrale, on obtient un diamètre de 700 μm et 1mm avec les 19 fibres. Cela permet une liberté assez importante sur le placement de l'entrée de la fibre ($\pm 6°$ en angle et un débattement de ± 0.5 mm en transversal autour de l'axe optique).

Ce système expérimental, somme toute assez épuré, permet d'avoir accès à des informations essentielles relatives aux microlasers telles que le seuil du laser, les fréquences des modes lasant, les directions d'émission.

Seuils laser

Une courbe de seuil représente la puissance de sortie en fonction de la puissance de pompe. Nous l'effectuons pour une direction d'émission donnée. La quantité choisie dans cette thèse comme représentante de la puissance de sortie du laser est l'amplitude du plus grand pic du spectre acquis, c'est-à-dire l'amplitude maximale du sectre.

Une quantité alternative représentant la puissance du microlaser est l'intégrale sur tout la gamme de longueurs d'onde du spectre acquis. En général, les deux quantités fournissent des résultats similaires mais cette dernière à l'inconvénient de donner plus de poids à une émission de spectre large telle qu'une émission de fluorescence. Comme nous nous intéressons à l'émission laser, la première quantité me semble plus pertinente. Encore une autre manière de procéder est de suivre l'amplitude d'un pic donnée. Mais cette méthode aboutit à légèrement moins de précision à cause de la fluctuation de l'amplitude relative des pics entre les différentes acquisitions. En effet entre deux impulsions de pompe, les spectres se ressemblent de par la positions des pics qui restent

rigoureusement centrés sur les mêmes longueurs d'ondes, mais ils diffèrent par les amplitudes relatives de ces pics. Le moyennage effectué systématiquement sur dix ou trente spectres atténue mais n'élimine pas ces fluctuations. Dans tous les cas, il n'est pas facile de relier le spectre à une puissance quantitative car les microlasers émettent dans plusieurs directions qui ne sont toujours pas exactement identifiées. De plus, le rendement de l'assemblage lentille-fibre-spectromètre-caméra refroidie n'a pas été établi.

Pour connaître la puissance de pompage, une partie du faisceau de pompe est prélevée par une lame de verre et mesurée avec un puissance-mètre. La mesure se fait en énergie par impulsion. Un seuil typique se situant en dessous de 5μJ par impulsion. De cette manière, il est possible de comparer des valeurs de seuils de microlasers différents entre eux. Mais dans le cas où on veut étudier la valeur absolue du seuil, une expression en fluence (W/cm^2) a plus de sens. La puissance à considérer alors n'est pas la puissance moyenne du laser de pompe, très faible à cause du faible taux de répétition, mais la puissance de crête qui est à peu près égale au rapport de l'énergie de l'impulsion et de sa durée (environ 500ps). On arrive à une puissance caractéristique de pompe typique de 10 kW et une fluence d'environ 4 MW/cm^2.

Diagrammes d'émission en champ lointain

Un diagramme d'émission représente l'intensité émise en fonction de la direction d'émission. L'intensité émise est évaluée par l'amplitude du pic le plus haut dans le spectre acquis ou bien par l'intégrale du spectre acquis. Ces deux versions conduisent à des diagrammes similaires, mais qui présentent cependant des différences. Dans le cas d'une fluorescence large par exemple, l'intégrale du spectre peut être plus importante que celle d'un peigne fin, même si les pics du peigne sont très intenses. C'est la première méthode que j'ai utilisée car elle me semble plus caractéristique de l'effet laser.

La position de la lentille est telle que son axe optique est dans le plan de l'échantillon. C'est l'échantillon qui est amené à tourner d'un angle φ alors que la lentille a une position fixe. Pour cela le porte-échantillon repose sur une platine de rotation. Nous choisissons l'origine de l'angle φ de manière arbitraire suivant un axe de symétrie ou une frontière de l'échantillon. Dans les schémas de cette thèse, par convention, les cavités sont représentées à deux dimensions avec le zéro de φ à droite, de telle façon que l'axe x est horizontal et que l'axe z pointe vers le lecteur perpendiculairement à la feuille.

Expérimentalement, l'axe de rotation de la platine est vertical et peut être déplacé de façon à être aligné avec le faisceau du laser de pompe. Comme déjà mentionné, tout mouvement de l'échantillon provoque inévitablement des modifications des conditions de pompage (distribution spatiale et polarisation). Pour éviter cela, le spot de pompage est aligné avec l'axe de rotation de la platine de rotation, et la polarisation est choisie circulaire. Cependant, l'effet important de la polarisation n'était pas connu au début de la thèse et les premiers diagrammes d'émission sont biaisés.

En considérant l'épaisseur des microlasers de l'ordre de $e = 1$ μm, on a un rapport $\frac{e^2}{\lambda D} = 8.10^{-6}$ ce qui indique qu'on est en régime de diffraction de Fraunhofer. C'est le cas pertinent dans la partie

3.2 qui concerne l'émission hors du plan de cavité en forme de ruban. Par contre, en considérant la dimension transversale d'un gros microlaser $a = 500$ μm, on arrive à $\frac{a^2}{\lambda D} \simeq 2$ donc on est en régime de diffraction de Fresnel (a et le diamètre de la lentille toujours $\ll D$) et non plus en régime de Fraunhofer. En réalité, puisque, vu du détecteur, la profondeur de la cavité est aussi de dimension a et qu'on tourne avec un grand angle autour d'elle, on est amené à sortir aussi de la zone de diffraction de Fresnel qui n'est pas d'un grand secours. Quoiqu'il en soit, la collection par la lentille se fait dans un cône de demi-angle au sommet d'environ 4°. La collection intègre donc le champ sur un angle solide de $2\pi(1 - \cos(4°)) = 0.005\pi$ sr.

Nous nous trouvons donc dans une situation un peu originale, où l'amplitude détectée peut être analysée comme un champ lointain dans la direction verticale mais pas dans la direction transverse. En outre dans la direction transversale, il est possible grâce à cela d'imager tout simplement une cavité dans une direction donnée, ce qui apporte de l'information nouvelle.

2.3.2 Images

Une avancée importante dans la compréhension des mécanismes d'émission de la lumière par les microlasers a été réalisée grâce à l'expérience pourtant simple que constitue l'imagerie des cavités en train de laser. L'acquisition d'une première puis d'une deuxième lunette optique de la marque Navitar conçues pour fonctionner à de grandes distances de travail, a permis de réaliser l'imagerie de manière assez aisée. La première lunette avait été initialement prévue comme simple outil pour positionner les microlasers sur le montage "3D" mais il est vite apparu évident en la manipulant que son intérêt pouvait être plus large. Avec cette lunette, l'expérience d'imagerie est rendue aisée par un système intégré de mise au point. Il s'agit du modèle Navitar Zoom 6000 avec comme adaptateur de sortie le modèle 5X. La première lunette a une mise au point de 3 mm et une optique d'entrée 0.5X qui lui donne une très grande distance de travail ajustable entre 143 et 187 mm. Ceci était nécessaire pour des raisons d'encombrement autour du montage 3D dont les bras ont une envergure considérable. Cette caméra sert d'outil de positionnement et de centrage du montage 3D et n'est jamais déplacée lors du réglage et de l'utilisation du montage. La deuxième lunette a une mise au point de 12mm ce qui rend son positionnement plus souple. Cela est appréciable car nous sommes amenés à bouger fréquemment cette caméra du montage 2D vers le 3D et vice-versa. L'optique d'entrée a un grossissement 1.5X ce qui permet une meilleure résolution, jusqu'à 1.57 μm limitée par diffraction et impose une distance de travail plus courte (de 48 à 52mm). Cette lunette est utilisée spécifiquement pour l'imagerie des cavités. L'acquisition est faite sur une caméra CCD en couleur (IDS UI-3240CP-C-HQ, USB). La lunette d'imagerie est positionnée sur le montage 2D légèrement en contre-haut du plan de l'échantillon (cf figure 2.6) et pointe vers le microlaser, de façon à pouvoir l'imager en perspective. Des essais avaient été faits en ce cens déjà presque dix ans auparavant par Tahar Ben-Messaoud dans sa thèse [69] et dans des travaux en collaboration avec l'équipe de Richard Chang à Yale. Les deux lunettes utilisées ici facilitent énormément l'expérience.

Des exemples de photographies sont exposées sur la figures 2.7 et d'autres seront exploités dans tous les chapitres de la thèse. On y observe que l'émission est distribuée non-uniformément sur les

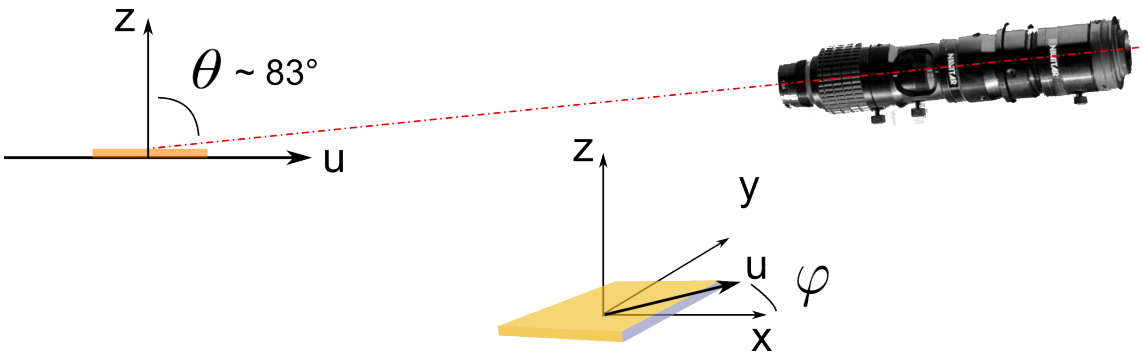


Figure 2.6 – Positionement de la lunette d'imagerie : dans une direction φ ajustable par la platine de rotation et visant le microlaser en contre-plongée d'environ 5°.

frontières de la cavité. Parfois on observe un spot et parfois un segment de bord illuminé. Dans tous les cas, si la résolution de la photographie le permet, on observe la cavité directement ainsi que sa réflexion sur le substrat en silice sur silicium. Dans le cas des microlasers plans de cette première partie de la thèse, on ne le distingue pas toujours car l'épaisseur totale de la cavité plus son image dans le miroir air/silice ne dépasse pas 1.5μm, ce qui est très proche de la résolution théorique possible avec la lunette. Pour les cavités sur piedestal, en comparaison, ceci est plus facilement observable car la cavité et son image sur le miroir en silicium sont séparées de 4μm. Dans le cas des microlasers 3D de la deuxième partie de la thèse il devient très évident que l'on observe bien la cavité et sa réflexion (cf figure 7.3-c).

2.4 Scanner à angle solide (SAS)

Bien que le SAS fasse totalement partie du montage expérimental de caractérisation optique, je le présente dans une section à part pour une meilleure organisation de la description et aussi car sa réalisation a constitué une partie importante de mon temps de thèse.

La nécessité d'un SAS vient de la diffraction par les bords des microlasers qui est à l'origine d'une distribution de la lumière largement hors des directions contenues dans le plan de l'échantillon. Cette étude constitue précisément la partie 3.2 de cette thèse. Pour mesurer la distribution spatiale de la lumière émise, il faut déplacer la lentille de collection sur une sphère centrée sur le microlaser, ce qui est précisément le but du scanner à angle solide (SAS).

Le but initial était de mesurer la distribution spatiale de la lumière émise par des microlasers tridimensionnels dont les modes ont une extension et donc une partie propagative suivant la direction z. A priori, la distribution spatiale de l'émission pour de tels microlasers se fait dans tout l'angle solide, d'où la nécessité d'un montage de type SAS. La fabrication des microlasers tridimensionnels est le sujet de la deuxième partie de cette thèse, des résultats sur leur distribution spatiale d'émission y étant aussi présentés. Ici, je me contente de détailler les solutions techniques retenues pour répondre point par point au cahier des charges que nous avons défini et qu'il nous a

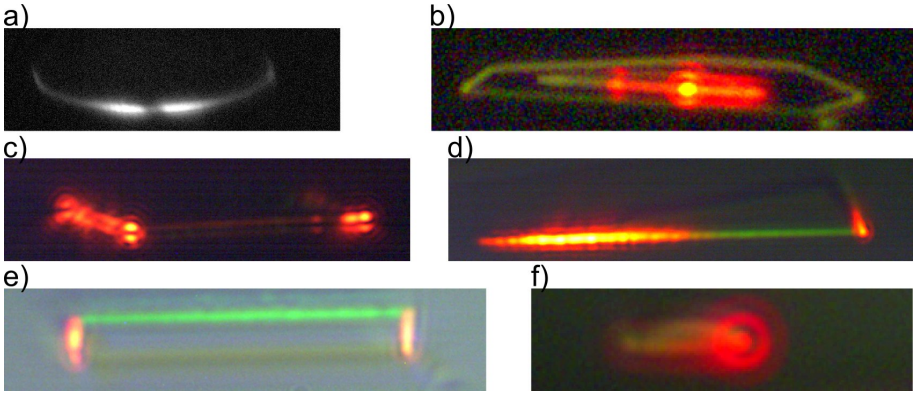


Figure 2.7 – Photographies de microlasers de formes variées prises à travers la lunette de visée et dans des conditions de pompage au-dessus du seuil. a – microdisque b – triangle isocèle d'angle au sommet 110° (étudiés spécifiquement en section 5.5). Les bords visibles sont ceux de la zone extrudée par le faisceu électronique et à l'intérieur, les bords même de la cavité dont la lumière sort. c – carré sur piedestal (étudiés en section4.5) d – triangle rectangle isocèle (cf section5.5) e – carré sur le substrat (cf section4) f – cerf-volant (cf [42])

fallu respecter. Puis j'expose la configuration géométrique finale. L'alignement du montage n'étant pas simple, je décris ensuite la procédure d'alignement que nous avons adoptée. Enfin j'introduis le diagramme d'émission en latitude qui est la nouvelle source d'informations apportée par le SAS.

2.4.1 Cahier des charges du SAS et choix techniques de réalisation

Un scanner à angle solide nécessite, pour être totalement général, 4 angles ajustables, soit 4 degrés de liberté : 2 pour le pompage et 2 pour la détection. Plusieurs configurations sont envisageables. Celle que nous avons choisie utilise un faisceau de pompe fixe. Pour ne rien perdre en généralité, il faut donc deux angles de rotation pour l'échantillon et deux angles de rotation pour la détection. C'est ce que permet notre SAS. Cependant, le cas du pompage sous incidence normale au plan du substrat est celui que nous avons principalement étudié jusqu'à présent. En conséquence les rotations de l'échantillon sont considérées comme optionnelles et laissées à un réglage manuel, alors que les rotations du détecteur sont quant à elles sujettes à une étude précise et donc assurées par des platines de rotation motorisées.

La fonction du bloc de détection est de déplacer la lentille de collection sur une demi-sphère entourant le micro-laser, tout en préservant l'alignement de l'axe optique de la lentille sur le microlaser. Une première platine de rotation (High Torque RV-200-PP) est fixée à la table optique avec un axe de rotation vertical. Sur cette platine est fixée une équerre (bras, repéré par le chiffre 2b sur le dessin 2.8) qui elle-même supporte une deuxième platine de rotation (2a) celle-ci d'axe horizontal. Sur cette deuxième platine est fixée une deuxième équerre (avant-bras, chiffre 3a sur le dessin 2.8) qui supporte la lentille de collection (3b).

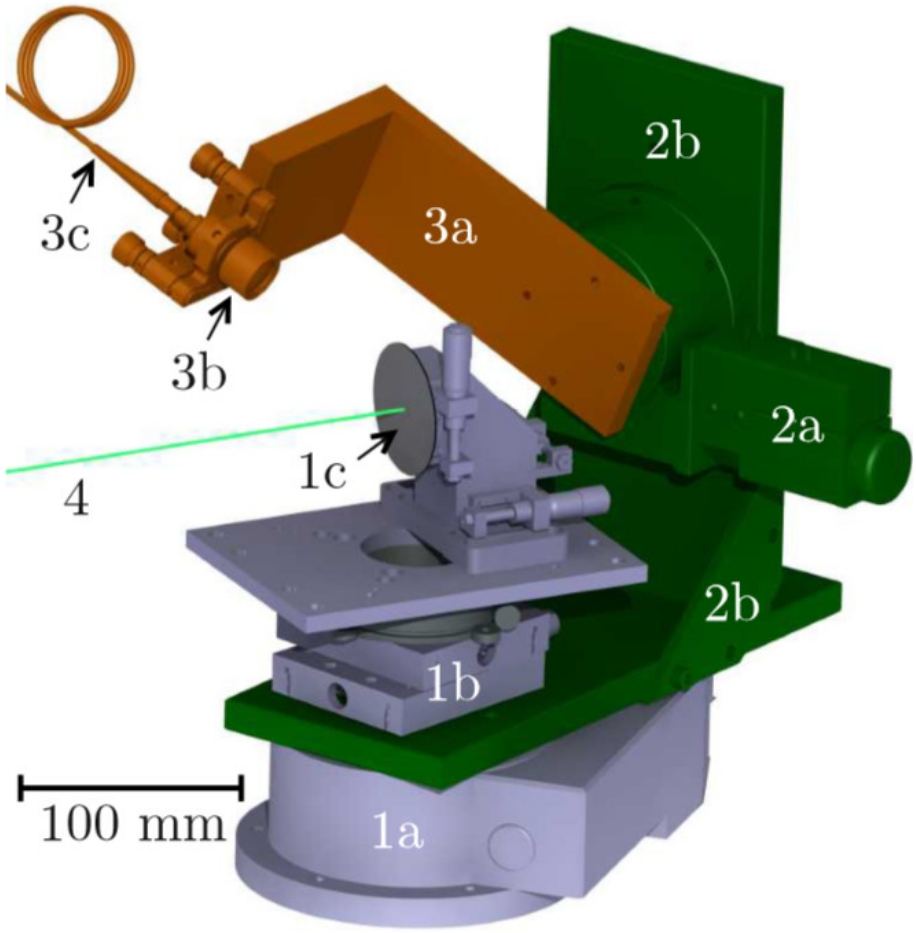


Figure 2.8 – Dessin de conception sous Catia du Scanner à angle solide. Les pièces 1 (grises) sont fixes. Les pièces 2 (vertes)sont en rotation autour d'une axe vertical. Les pièce 3 (oranges) sont en rotation par rapport à l'ensemble 2 autour d'un axe horizontal. 1a, 2a — platines de rotation motorisées. 1b -– platines de translation pour le positionnement du centre de l'échantillon au centre de rotation des moteurs. 1c — substrat avec des microlsaers. 2b, 3a -– Bras mobiles. 3b -– lentille de collection. 3c -– fibre optique. 4 -– faisceau de pompe.

Afin que le déplacement de la lentille se fasse effectivement sur une sphère, la contrainte principale est que les deux axes de rotation soient coïncidant en un point définissant le centre de la sphère. Pour s'en assurer l'équerre "bras" a été dessinée avec la spécification d'un tolérancement strict sur certaines cotes pertinentes. Nous avons bénéficié pour faire cela de l'aide de Christophe Cluzel Maître de conférence au Laboratoire de Mécanique et Technologie de l'ENS de Cachan. Le logiciel de CAO *Catia* a été utilisé pour la production des dessins techniques (cf annexe **??**) et du dessin de la figure 2.8. L'équerre est composée de deux plaques positionnées l'une par rapport à l'autre par des pions de centrage et fixées solidement par des brides latérales. La deuxième équerre "avant-bras" a aussi été conçue avec Catia mais la précision exigée n'est pas la même pour ce cas. L'enjeu est ici d'aligner l'axe optique de détection avec le centre de la sphère. L'ensemble des dessins techniques sont inclus en annexe **??**.

Le choix d'un collimateur connecté à la fibre de collection facilite la réalisation en réduisant l'alignement de la collection à celui d'un seul bloc lentille + fibre finalement assez léger et compact pour être positionné au bout des bras tournants sur une monture réglable. Ainsi la dimension de l'équerre "avant bras", qui sans monture réglable devrait tenir compte des tailles du moteur et du porte lentille, n'est pas critique puisqu'un faible décalage est rattrapé par ajustement de la monture réglable.

Afin de repérer à la fois l'échantillon et le spot du faisceau de pompe. Une lunette de visée Zoom 6000 de chez Navitar avec une caméra CCD (IDS UI-2230SE-C-HQ, USB) permet de visualiser la zone de l'échantillon. Une telle lunette avec à la fois une distance de travail importante (ici 21 cm) et un grossissement pas faible (ici x1 environ) est nécessaire pour laisser de la place au bras du SAS et permettre un positionnement précis du microlaser. Pour éclairer l'échantillon on utilise une source alignée de telle façon que la réflexion sur le substrat est dirigée vers la lunette (voir figure 2.12). En pratique on utilise une lampe halogène avec un bras semi-rigide (Gooseneck/ Volpi) afin de bénéficier d'une certaine liberté de mouvement.

2.4.2 Géométrie

Le faisceau de pompe reste horizontal et, comme pour le montage "2D", est contrôlé en puissance et polarisation. L'échantillon est donc positionné verticalement. Il est maintenu contre le porte échantillon par une lamelle élastique. Le porte échantillon est fixé sur une platine de rotation manuelle d'axe vertical, qui fournit un angle de rotation pour le pompage. Le deuxième angle s'obtient en tournant l'échantillon sur le plan contre lequel il est maintenu, ce qui nécessite dans la configuration actuelle de manipuler l'échantillon. Il n'est toutefois pas exclus d'intégrer une autre platine de rotation pour faciliter cette manipulation si elle devenait cruciale dans les expériences, ce qui n'a pas été le cas dans le cadre de ma thèse sur les microlasers.

L'axe z est défini comme perpendiculaire au plan du substrat. Dans tous les cas rapportés dans cette thèse, il coïncide avec la direction du faisceau de pompe, mais cela n'est pas nécessaire. La thèse d'Iryna Gozhyk [58] par exemple recense des expériences réalisées sous pompage oblique. Les axes x et y sont choisis dans le plan de l'échantillon, selon la forme du micro-résonateur étudié.

Pour la détection, les angles θ et φ respectivement azimut et longitude, définissent la position

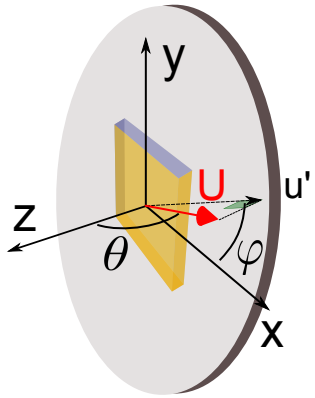


Figure 2.9 – Définition et positionnement des axes dans le montage SAS. L'axe z est horizontal et concorde toujours dans cette thèse avec l'axe du faisceau de pompage. Les axes x et y sont dans le plan de l'échantillon et définis arbitrairement par rapport à la forme de la cavité. Dans l'expérience l'orientation de l'axe x est horizontale et définit le zéro de l'angle φ. L'axe y est vertical.

de la lentille. L'angle θ est l'angle entre l'axe z et l'axe optique de la lentille. Ainsi, un angle $\theta = 0°$ correspond à la direction perpendiculaire au substrat alors qu'un angle $\theta = 90°$ correspond à une dircetion dans le plan du substrat. Les angles $\theta > 90°$ ne sont pas accessibles à cause de la présence du substrat qui occulte alors le microlaser pour la lentille de collection.

L'angle φ se mesure entre la direction x et la projection de l'axe optique sur le plan (x, y). Le choix de l'axe x dans le plan de l'échantillon est arbitraire et correspond souvent à une particularité géométrique de la structure en question (axe de symétrie, frontière rectiligne, ...).

Les angles θ et φ ne correspondent pas aux instructions angulaires données directement aux moteurs (α_1 et $\alpha_{1'}$ ou les indices font références aux dessins de la figure 2.8) mais une transformation simple permet de faire la conversion.

$$\alpha_1 = \tan^{-1}\left(\frac{\sin\theta.\cos\phi}{\cos\theta}\right) + \alpha_1^o \tag{2.1}$$

$$\alpha_{1'} = \cos^{-1}\left(\sin\theta.\sin\phi\right) + \alpha_{1'}^o \tag{2.2}$$

2.4.3 Alignement du SAS

Image de contrôle

Une lunette d'imagerie (marque Navitar), équipée d'une caméra CCD en couleur, permet de visualiser le microlaser, avec une distance de travail assez grande pour ne pas obstruer le passage des bras supportant la lentille de collection. L'image obtenue a une échelle connue. Il est possible de créer des repères fictifs sur l'image, qui servent pour l'alignement du SAS.

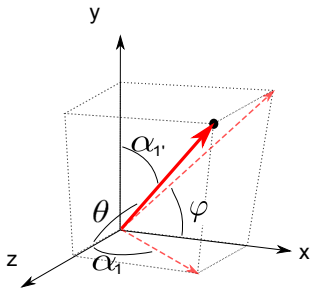


Figure 2.10 – Transformations des angles "moteurs" en angles "échantillon"

Lentille de collection

La lentille de collection est un collimateur de sortie de fibre (Thorlabs CFC-5X-A). La fibre est fixée et centrée sur la lentille, ce qui permet de réaliser l'alignement d'un seul élément. La distance focale de cette lentille est 4,6 mm, son diamètre 5,7 mm et la distance de travail est 10.5 cm. Afin de collecter le maximum de lumière émise depuis le microlaser dans la direction (θ, φ), l'entrée de la fibre est conjuguée avec le plan du microlaser. Pour réaliser cela, un pointeur laser est injecté dans la fibre de collection dans le sens inverse de la collection. L'image de la facette de la fibre est réalisée sur le plan du microlaser. Son diamètre d'environ 1,4 mm est plus gros que les microlasers, ce qui assure que, lors de la collection, toute la lumière émise par le microlaser est effectivement collectée.

Position du problème

Nous avons 4 éléments :

- Le centre de rotation des moteurs qui est fixe par rapport à la table optique. Par construction du SAS, il est défini par l'intersection des axes de rotation des deux moteurs (cf annexe **??**).
- L'axe de rotation du porte-échantillon, vertical, peut être déplacé horizontalement grâce à deux platines de rotations situés sous la rotation.
- L'échantillon. Pour l'alignement, nous choisissons un point (par exemple le centre d'une croix dessinée) sur un substrat.
- La caméra. Pour l'alignement, nous traçons un repère sur l'image, sous d'une croix.

A priori, ces 4 éléments sont désalignés. Le but de la procédure d'alignement est de les faire coïncider. La première étape va permettre d'aligner l'échantillon et la caméra sur l'axe de rotation de l'échantillon. L'alignement sur le centre de rotation des moteurs se fait dans un second temps. Cette procédure part d'une situation déjà "approximativement alignée", ce qui n'est pas trivial mais se fait à l'œil.

Alignement de l'axe de rotation du porte-échantillon

Il faut déplacer le plan de l'échantillon jusqu'à ce qu'il contienne l'axe de rotation de la platine. Pour ce faire, un seul réglage est nécessaire, celui qui déplace l'échantillon perpendiculairement à son plan. Pour vérifier si l'alignement est correct, on positionne l'axe z de l'échantillon à $+90°$ de la direction de la caméra. Le plan est alors une droite verticale sur l'image de la caméra. Puis, on tourne à -90°, et la droite à l'image doit se superposer parfaitement avec celle de l'image précedente. Si ce n'est pas le cas, on la déplace à l'aide de la platine "z" jusqu'à ce qu'elle soit au milieu des deux droites précédemment observées et on recommence la vérification. On positionne alors un repère sur l'image, centré sur cette droite. On positionne également un repère sur l'échantillon, coïncidant avec le repère sur l'image. L'alignement de la caméra, de l'échantillon et de son axe de rotation est alors complet.

Alignement du centre de la sphère

Le centre de la sphère de détection est fixe dans le plan du laboratoire. Ce sont donc les autres éléments qui doivent s'y aligner. La difficulté est que rien n'indique sa position a priori. La lentille étant montée sur une plateforme ajustable, elle ne vise pas a priori vers le centre mais c'est à cela que l'on doit parvenir.

Nous procédons comme suit : la collection est positionné en observation normale au plan de l'échantillon ($\theta = 0$) et la lentille est alignée sur l'échantillon. Pour ce faire, un pointeur laser est injecté dans la fibre de collection et est projeté par la lentille dans le plan de l'échantillon. On aligne le spot sur le repère de l'échantillon. Ensuite, on fait varier les angles de collection (par exemple $\varphi = 0$ et θ varie.) et on regarde comment évolue le spot dans le plan de l'échantillon. Plusieurs cas sont alors possibles, dont 3 caractéristiques sont schématisés sur la figure 2.11. On en déduit la position relative de l'échantillon, représentée par une croix sur la figure 2.11 par rapport au centre de la sphère (représenté par un point noir).

On peut corriger cela grâce aux deux platines de translation situées sous la platine de rotation. Ainsi, on garde le repère de l'échantillon dans son axe de rotation. Cela casse forcément l'alignement avec la caméra, mais ce dernier est facilement rattrapable par la suite car il s'agit seulement de bouger la lunette ou même de bouger le repère sur l'image.

Lorsque la rotation des deux moteurs laisse le centre du spot immobile dans le plan de l'échantillon, alors l'alignement est complet.

2.4.4 Diagrammes d'émission en latitude

De manière analogue à aux diagrammes d'émission acquis sur l'expérience 2D, nous pouvons tracer la dépendance entre la lumière collectée et le couple d'angles (θ, φ). L'expérience 2D, mise en perspective avec celle-là, correspond à un diagramme pour lequel l'angle θ prend la valeur fixe de 90° et où φ varie entre 0° et 360°. Sur le montage 3D, il n'est toutefois pas possible de faire varier φ entre 0° et 360° pour des raisons d'encombrement. En effet, la position $\varphi = 90°$ correspond

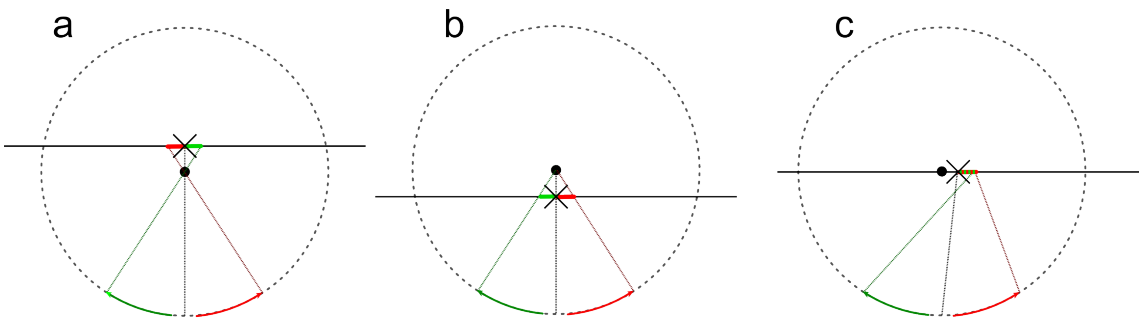


Figure 2.11 – Alignement de l'échantillon sur le centre de rotation de la sphère. a – l'échantillon (croix noire) est situé derrière le centre de rotation de la sphère (rond noir). Dans le plan de l'échantillon le spot laser se déplace alors en sens inverse de la lentille de collection. b – l'échantillon est situé devant. Le spot se déplace dans le même sens que la lentille. c – l'échantillon est situé à droite. Le spot se déplace à droite, quel que soit le sens de rotation de la lentille.

au bras vers le bas ce qui le fait renter en collision avec la table. La plage d'angles accessible est $\varphi \in [-220°, 40°]$ pour $\theta = 90°$. Pour $\theta < 40°$ toutes les angles φ sont accessibles.

Lorsque, à l'inverse, seul θ varie pour une valeur fixe de φ, on parle de diagramme d'émission en latitude.

Conclusion

Pour conclure ce chapitre, je dirai que j'ai participé pendant ces trois années et demi à développer les outils techniques à disposition pour étudier l'émission des microlasers. Cette démarche est passée via l'amélioration du montage existant et aussi par la création d'un nouveau montage. À cela s'ajoute le montage spécialement mis en place pour l'autocorrélation qui sera décrit dans le chapitre 6 s'y rapportant.

Ce long travail très manuel mêlant conception et "bricolage" m'a plu et nous en avons déjà tiré des informations importantes qui sont exposées et discutées dans deux chapitres suivants à propos des diagrammes d'émission en latitude de microlasers de type Fabry-Perot, et de l'émission par les microlasers carrés. En outre, le laboratoire est désormais doté d'un outil de caractérisation spatiale de la lumière émise, diffusée ou diffractée par un objet micrométrique. Ceci peut s'avérer utile pour des systèmes autres que des microlasers en matériaux organiques. En particulier, des mesures de diffraction/SHG par des cristaux photoniques non-linéaires, fabriqués au LPQM par Thi Thanh Ngan Nguyen et Ngoc-Diep Lai, sont à l'étude aujourd'hui. L'usage du SAS est aussi envisagé, dans le cadre d'un projet européen, pour l'étude de structures plasmoniques en réseaux.

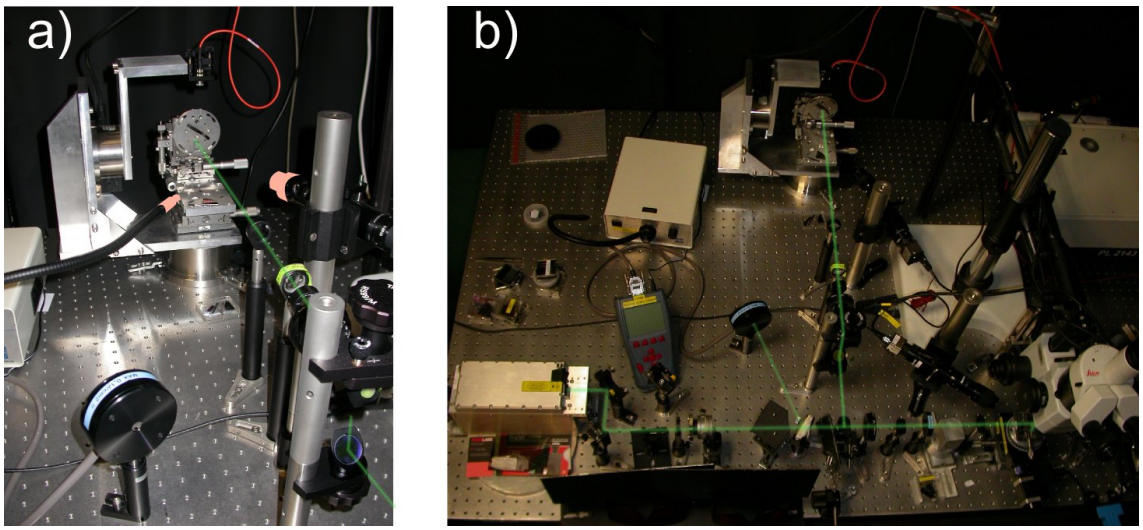


Figure 2.12 – Photographies de la table optique a– Scanner à Angle solide. Les éléments surlignés en orange servent à visualiser l'échantillon (à droite la lunette d'imagerie, à gauche une source lumineuse alignée telle que la réflexion sur le substrat éclaire la caméra) b– image de la table vu de dessus. En bas à droite, la loupe Leica et une deuxième lunette de visée (pour l'imagerie) pointent vers la position de l'échantillon dans le montage "2D".

Chapitre 3

Émission tri-dimensionnelle

3.1 Introduction

Nous avons longtemps pensé que l'émission des microlasers était principalement dirigée dans le plan de l'échantillon. Cela paraissait naturel car, dans la couche mince où la propagation est guidée, les vecteurs d'ondes sont toujours dans ce plan ; ils devaient l'être aussi après la transmission par les parois. Mais comme l'épaisseur des composants est de l'ordre d'une longueur d'onde, et la lumière, guidée dans la couche, est diffractée lorsqu'elle en sort. Cela amène une émission qui se déploie en dehors du plan de l'échantillon. De plus, la présence d'un substrat soutenant les cavités complexifie le schéma et doit être prise en compte pour décrire la lumière effectivement diffractée. Il est nécessaire de comprendre et de pouvoir prédire où et par où la lumière est effectivement émise, ne serait-ce que pour réaliser des applications efficaces. Nous proposons, dans ce but, une première caractérisation de l'émission hors-plan par des microlasers planaires. Le SAS décrit au chapitre précédent a été construit justement pour cela. Nous avons commencé par des cavités de type Fabry-Perot (FP) reposant sur un substrat de silice ou sur piédestal et avons expliqué les diagrammes d'émission obtenus grâce à un modèle simple de diffraction de Fraunhofer, ce qui a mené à la publication d'un article [70]. Puis nous avons travaillé sur d'autres formes de cavités, et avons obtenu des diagrammes d'émission différents qui ne satisfont pas au modèle valable pour les Fabry-Perot.

3.2 Diagrammes d'émission en latitude de cavités de type Fabry-Pérot

Les premières expériences ont été menées sur des FP sur un substrat de silice sur silicium. Un exemple de cavité FP est donnée en figure 2.2-c en page 47. Pompée juste au-dessus du seuil, une telle cavité émet dans deux directions principales à $\varphi = 0°$ ou $180°$ (cf photographie 2.2-c). Des comportements plus complexes se produisent sous fort pompage qui sont décrits dans le rapport

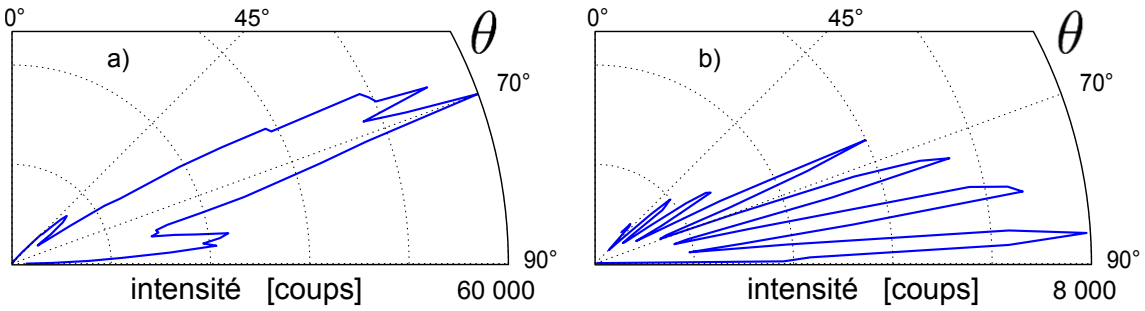


Figure 3.1 – Diagrammes d'émission en latitude de microlasers FP pour $\varphi = 0°$. a – FP sur substrat. b – FP sur piedestal.

de stage de Maxime Boudreau [71]. Dans ce chapitre, le pompage est pris juste au-dessus du seuil.

3.2.1 Expérience

La figure 3.1-a présente un diagramme d'émission. On y voit une émission largement distribuée entre $\theta = 90°$ et $45°$. L'émission se fait en moyenne autour de $\theta = 70°$ c'est-à-dire $20°$ au-dessus du plan de l'échantillon. De plus deux lobes latéraux évoquent une modulation.

La même expérience réalisée avec une cavité FP sur piédestal (cf 2.2.4) donne le diagramme d'émission 3.1-b d'aspect très différent du cas sur substrat. Ici l'émission est encore distribuée entre $\theta = 90°$ et $45°$ mais est modulée avec un fort contraste et un espacement entre deux maxima d'environ $9°$. Ce motif suggère un effet d'interférence. En effet le substrat composé de Silicium se comporte comme un miroir à 600nm. De plus, si l'intensité du spectre varie suivant θ, comme le montre la figure 3.1-a, la forme du spectre n'est pas modifiée. Les pics restent ainsi à la même position avec les mêmes intensités relatives. Enfin, ce diagramme ne dépend pas de la largeur du Fabry-Perot.

3.2.2 Modèle pour le Fabry-Perot sur piedestal

Le motif d'émission $I(\theta)$ est en effet le résultat des deux phénomènes que sont la diffraction par le bord de la cavité et les interférences causées par la réflexion sur le substrat. En conséquence, l'émission peut s'écrire comme un produit de deux termes :

$$I(\theta) = F(\theta) \cdot R(\theta) \tag{3.1}$$

Le terme $R(\theta)$ provient des interférences entre la lumière atteignant la lentille directement depuis le bord de la cavité et la lumière réfléchie sur le substrat de silicium, comme représenté sur le schéma 3.2-a. Il prend donc la forme

$$R(\theta) = \left|1 + r(\theta) e^{-2ikD\cos\theta}\right|^2 , \tag{3.2}$$

où D représente la distance entre la surface de silicium et le centre de la couche en polymère, k est le module du vecteur d'onde dans le vide, et $r(\theta)$ est le coefficient de Fresnel de la réflexion sur l'interface air/silicium avec un angle d'incidence θ, pour une polarisation s (i.e. perpendiculaire au plan d'incidence) puisque les cavités FP émettent une lumière polarisée dans le plan de la cavité [72]. Ce terme est responsable des oscillations dans le diagramme d'émission. Nous prenons comme valeur pour l'indice de réfraction pour le Silicium $n_{\mathrm{Si}} = 3.365$, qui nous a été fournie par des mesures ellipsométriques réalisées par Maxime Boudreau et Georges Badar à l'université de Moncton sur nos propres échantillons. L'autre terme $F(\theta)$, qui est lié à la diffraction par le bord de la cavité, est responsable de l'enveloppe du diagramme. C'est la transformée de Fourier (TF) du champ proche au bord de la cavité $E(z)$ qui n'est pas connu a priori. Cependant, l'épaisseur de la couche guidante étant d'environ 700 nm et la couche étant monomode dans la direction z, on s'attend à une extension de cette distribution sur une longueur l proche de l'épaisseur de la couche. En première approximation, on peut supposer que cette distribution est uniforme sur une longueur l. Cela reproduit le modèle de la diffraction par une fente d'ouverture l et aboutit à la formule bien connue du sinus cardinal, c'est-à-dire

$$F(\theta) \propto \mathrm{sinc}^2\left(\frac{kl\cos\theta}{2}\right) . \tag{3.3}$$

Le modèle total comporte donc deux paramètres dont l'un est D qui est un paramètre physique géométrique mesurable dans l'expérience, par exemple grâce à un profilomètre, et l'autre est l que l'on présume de l'ordre de l'épaisseur de la couche, également mesurable. Ces mesures se font sur un instrument de marque Dektak qui est un profilomètre à stylet, venant scanner une surface en s'appuyant dessus. La force d'appui est contrôlée par un asservissement afin de ne pas endommager l'échantillon. La résolution est liée au rayon de courbure de la pointe du stylet. On mesure, sur le bord d'un microlaser, par exemple, la hauteur de la marche que franchit le stylet, ce qui fournit la somme de l'épaisseur de la couche de silice gravée et de l'épaisseur de la couche de polymère. Pour avoir l'épaisseur du polymère seul et en déduire la valeur attendue de D, on raye la surface de polymère, à un endroit où elle est toujours soutenue par la silice. Alors la hauteur de la marche que franchit le stylet en scannant la rayure fournit la seule épaisseur du PMMA.

La figure 3.2-b montre que l'ajustement du diagramme d'émission expérimental par notre modèle est très satisfaisant. Nous avons mesuré dans cette expérience les épaisseurs respectives des couches de silice et de PMMA à 2.1 μm et 700 nm soit une valeur attendue de D à $D_{\mathrm{exp}} = 2.45$ μm. Les résultats de l'ajustement donnent $D_{\mathrm{fit}} = 2.55$ μm, ce qui ne diffère de la valeur expérimentale que de 4% en valeur relative. Quant au paramètre l, il est ajusté à $l_{\mathrm{fit}} = 556$ nm ce qui est légèrement inférieur à l'épaisseur de la couche guidante. Un ajustement par un modèle d'ouverture gaussienne pour le terme de diffraction $F(\theta)$ fonctionne également et fournit une extension caractéristique du champ proche $E(z)$ du même ordre que l_{fit} ici. En réalité, la forme exacte de l'enveloppe est difficile à obtenir car le comportement est ici nettement dominé par le terme oscillant. Cela nous empêche aussi de tirer de l'expérience de précieuses informations sur la structure du champ proche au bord de la cavité $E(z)$.

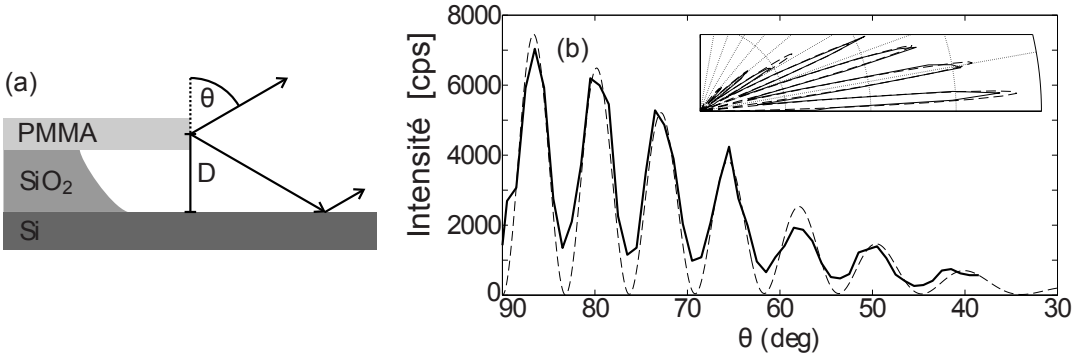


Figure 3.2 – FP sur piédestal. a - schéma de l'interférence entre rayon direct et rayon réfléchi à l'angle θ. b- ajustement (trait pointillé) du diagramme d'émission en latitude expérimental (trait plein) pour $\varphi = 0°$. Adapté de [70].

3.2.3 Fabry-Pérot sur le substrat

La même approche peut être appliquée de manière tout aussi satisfaisante au cas du FP reposant entièrement sur son substrat de silice. Dans ce cas, comme schématisé sur la figure 3.3-a, la présence de deux interfaces, air/silice d'une part et silice/silicium d'autre part, et donc de deux longueurs caractéristiques d_1 et d_2 au lieu d'une seule, rajoute de la complexité dans le rôle du substrat. Cependant, seul le terme $R(\theta)$ est affecté et son calcul est toujours possible. C'est un calcul de type cavité Fabry-Pérot en incidence oblique (θ) dont les réflexions des deux miroirs dépendent de l'angle θ et des indices de réfraction de l'air, de la silice et du silicium, soit respectivement 1, $n_{\mathrm{SiO_2}} = 1.46$ et $n_{\mathrm{Si}} = 3.365$. Ces coefficients sont, pour la première interface air/silice

$$r_{01}(\theta) = r_{10}(\theta') = \frac{\sin(\theta' - \theta)}{\sin(\theta' + \theta)} \quad , \tag{3.4}$$

$$t_{01}(\theta) = \frac{2\sin\theta' \cdot \cos\theta}{\sin(\theta' + \theta)} \quad \text{et} \tag{3.5}$$

$$t_{10}(\theta') = \frac{2\sin\theta \cdot \cos\theta'}{\sin(\theta' + \theta)} \quad , \tag{3.6}$$

où θ' (voir notation sur le schéma 3.3-a) est l'angle réfracté à l'intérieur de la couche de silice, défini par $\sin\theta = n_{\mathrm{Si0_2}} \sin\theta'$. Pour la deuxième interface silice/silicium

$$r_{12}(\theta') = \frac{\sin(\theta'' - \theta')}{\sin(\theta'' + \theta')}\,, \tag{3.7}$$

où de même θ' est l'angle réfracté à l'intérieur de la couche de silice défini par $= n_{\mathrm{Si0_2}} \sin\theta' = n_{\mathrm{Si}} \sin\theta''$. Le calcul donne finalement

$$R(\theta) = \left| 1 + r_{01}(\theta) e^{-ik\delta_1} + t_{01}(\theta) t_{10}(\theta') \frac{e^{-ik(\delta_1+\delta_2)} r_{12}(\theta')}{1 - e^{-ik\delta_2} r_{12}(\theta') r_{10}(\theta')} \right|^2 , \tag{3.8}$$

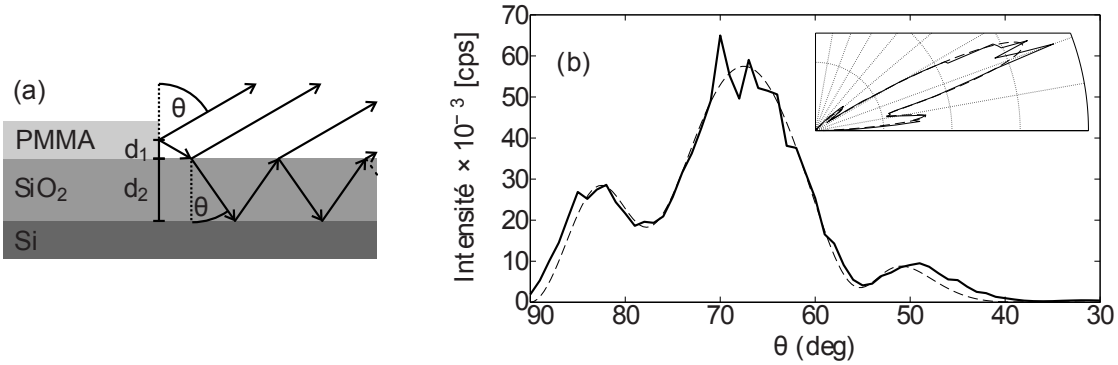


Figure 3.3 – FP sur substrat. a – schéma de l'interférence entre le rayon direct et ses multiples réflexions à l'angle θ. b – ajustement (trait pointillé) du diagramme d'émission en latitude expérimental (trait plein) pour $\varphi = 0°$. Adapté de [70].

avec $\delta_1 = 2d_1 \cos\theta$ et $\delta_2 = 2d_2[n_{\mathrm{SiO_2}} - \sin\theta \sin\theta']/\cos\theta'$. C'est ce modèle qui est utilisé pour ajuster le diagramme expérimental sur la figure 3.3-b avec un accord satisfaisant.

Les valeurs utilisées pour l'ajustement de la figure 3.3-b sont une distance entre le milieu de la couche guidante et la première interface $d_{1,\mathrm{fit}} = 347$ nm, $d_{2,\mathrm{fit}} = 2.118$ μm, et $l_{\mathrm{fit}} = 697$ nm. On remarque que $d_{1,\mathrm{fit}}$ est très proche de $2 \times l_{\mathrm{fit}}$. L'écart est toutefois dû au fait que le paramètre l n'est pas simplement l'épaisseur de la couche de polymère mais l'extension du champ proche $E(z)$ dans la couche. Ce champ est guidé dans la couche et fuit à l'extérieur. Son évaluation, qui n'a rien de trivial, a été faite dans la thèse de Sergii Lozenko pour le cas d'une couche infiniment étendue. Il n'y a toutefois aucune garantie pour que ce calcul décrive ce qui se passe effectivement au bord de la cavité. Les valeurs mesurées expérimentalement sont $2d_{1,\mathrm{exp}} = 680$ nm et $d_{2,\mathrm{exp}} \approx 2.1$ μm qui n'a pas été mesurée sur le même échantillon puisque la couche de SiO_2 n'a pas été gravée. Ces mesures confirment la pertinence du modèle que nous avons pris.

3.2.4 Reproduticilité, sensibilité aux paramètres

Le modèle est très sensible aux valeurs des paramètres, particulièrement dans le cas de la cavité sur substrat, ce qui est encore en accord avec les résultats expérimentaux. La figure 3.4 montre plusieurs expériences réalisées sur plusieurs échantillons. Les valeurs des paramètres ajustés, bien que très proches, conduisent à des allures de diagrammes d'émission assez variées.

3.3 Diagrammes d'émission en latitude de cavités de formes variées.

Nous avons adopté la même approche expérimentale pour d'autres cavités que des rubans, toujours bi-dimensionnelles mais de contours variés. Plusieurs cas de figures sont apparus. Le

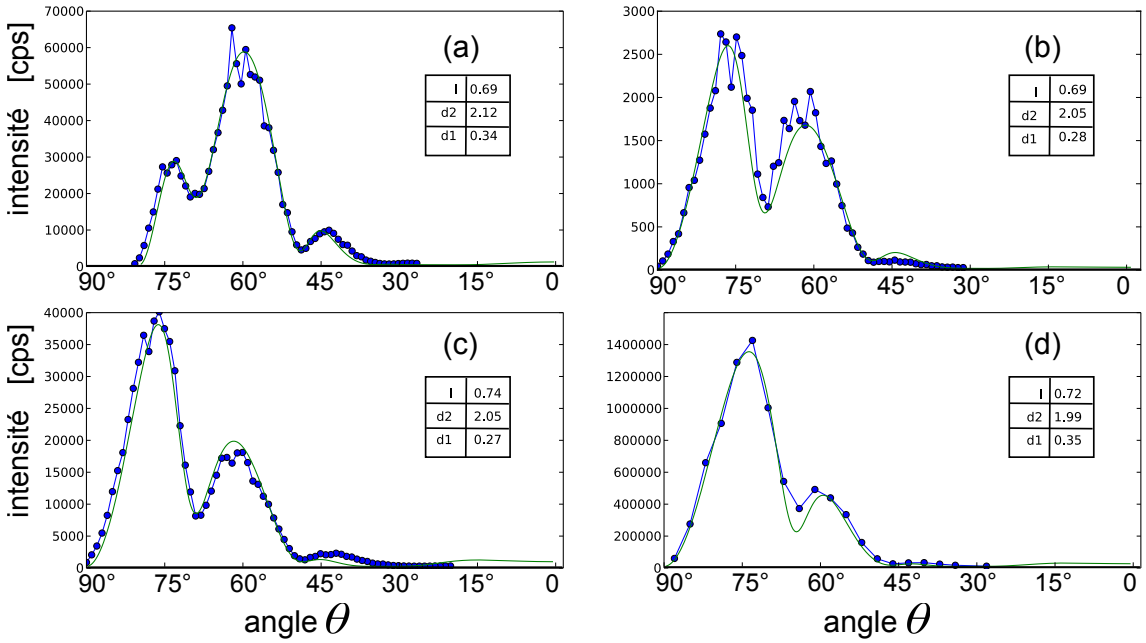


Figure 3.4 – Diagramme d'émission en latitutde pour plusieurs FPs sur substrat, et toujours $\varphi = 0°$. Résultats expérimentaux et ajustements par notre modèle pour 4 échantillons différents. Les paramètres ajustés sont encadrés sur chaque graphe. Les variations relatives de l (largeur de la fente), $d1$ (distance entre le centre de la fente et la première interface) et $d2$ (distance entre le centre de la fente et la seconde interface) sont de l'ordre de 7% , 6% et 15%.

comportement de type FP bien ajusté par notre modèle a été retrouvé dans les cas d'émission réfractive à incidence nulle. Ceci n'est pas un cas réservé au FP. Cependant lorsque l'incidence change, le diagramme d'émission en latitude s'en retrouve nettement modifié.

3.3.1 Emission 3D pour des orbites de type FP dans des cavités de contours différents

Dans les cas où l'émission se fait par réfraction avec une incidence normale à la face de sortie, on retrouve une configuration semblable à l'émission par un ruban. Parfois, la géométrie présente deux faces parallèles face à face, mais l'orbite FP qui les relie ne lase jamais car une autre orbite mieux confinée est prédominante. C'est le cas de la forme carrée notamment (cf chapitre 4). Parfois, la géométrie est telle que le laser se fait sur une orbite à N réflexions dont une paire se fait sous incidence normale. Nous retrouvons souvent ce cas dans des formes triangulaires (cf chapitre 5) ainsi que pour le disque. Je présente ici des diagrammes en latitudes obtenus sur quatre géométries particulières :

- Le triangle équilatéral (figure 3.5-a). L'orbite lasante dessinée en insert existe avec 6 symétries. L'observation perpendiculairement à un des côtés permet d'observer la lumière diffractée après une incidence normale. Nos observations anticipent ici sur une analyse plus complète en termes d'orbites qui sera donnée au chapitre 5.
- Les triangles isocèles obtus (un exemple d'angle au sommet 100° est présenté sur la figure 3.5-b). Une orbite à 4 réflexions existe perpendiculairement aux deux petits cotés de longueurs identiques : elle est donc observable perpendiculairement à l'un de ces deux côtés.
- Les disques peuvent laser suivant des modes de type Fabry-Perot ou des modes de galerie. Un exemple d'émission de type Fabry-Perot est présenté sur la figure 3.5-c.
- Les triangles rectangles (un exemple, le triangle rectangle "345" est présenté sur la figure 3.5-d). L'observation perpendiculairement à l'hypoténuse permet d'observer l'orbite à 6 réflexions représentée (cf section 5). Ce diagramme en latitude a été acquis pour une valeur de φ égale à 53° soit la direction perpendiculaire à l'hypoténuse du triangle.

Cependant, le scanner à angle solide n'était pas forcément bien aligné au moment de l'acquisition de ces spectres. En effet, nous nous sommes vite aperçus qu'il est possible d'avoir un alignement du SAS correct, préservant l'alignement de la lentille sous rotation d'angle θ pour certaines valeurs de φ, sans que cela soit nécessairement le cas pour toutes les valeurs de φ. C'était probablement le cas lors de l'expérience sur le triangle rectangle (figure 3.5-d) pour laquelle la valeur $\varphi = 53°$ a été utilisée. Pour les autres diagrammes, le substrat a été tourné pour que la direction de la flèche rouge corresponde à l'horizontale sur la table. L'alignement de la lentille de détection était alors stable pour la rotation suivant θ.

3.3.2 Émission par réfraction en incidence oblique

Lorsque l'incidence sur la face de réflexion n'est pas normale, et qu'elle est aussi inférieure à l'angle critique de réfraction totale, il y a forcément une partie de la lumière transmise hors

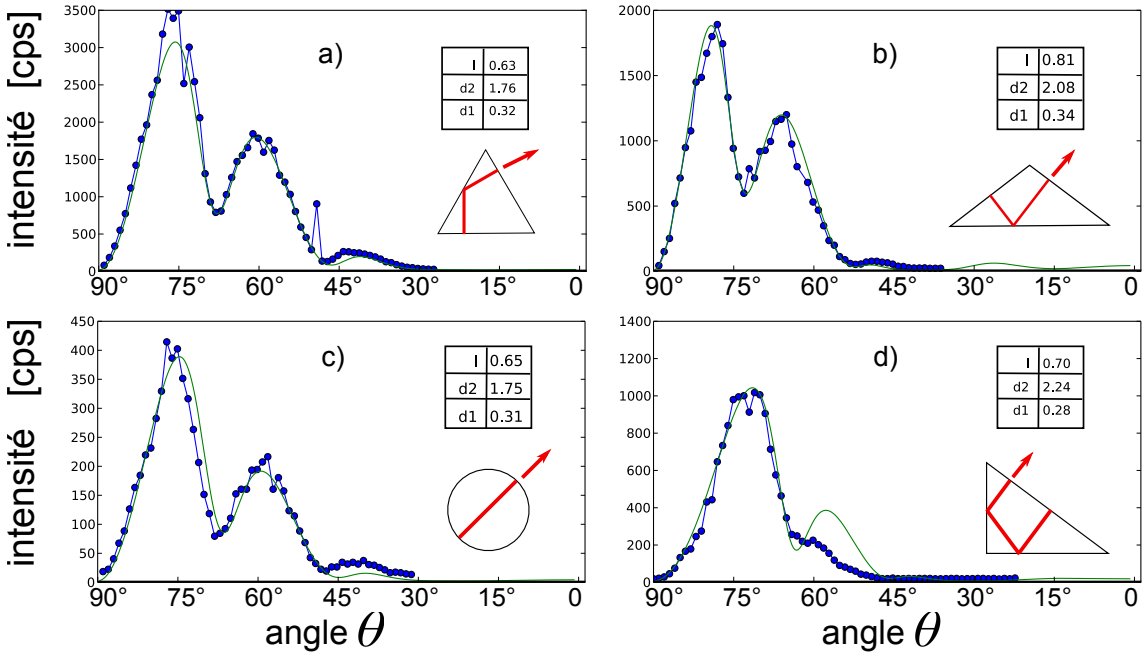


Figure 3.5 – Diagramme d'émissions en latitude de microlasers sur substrat présentant des orbites lasante de type Fabry-Perot, dans les directions φ indiquées par les flèches rouges. Résultats expérimentaux et ajustement par notre modèle. Les paramètres ajustés sont encadrés sur chaque graphe. a – triangle équilatéral ($\varphi = 60°$). b – triangle isocèle d'angle au sommet 100° ($\varphi = 50°$). c – disque ($\varphi = 0°$ mais le système est invariant par rotation suivant φ). d – triangle dit "345" ; la mauvaise correspondance de l'ajustement sur cette mesure est due à un biais expérimental ($\varphi = 53°$).

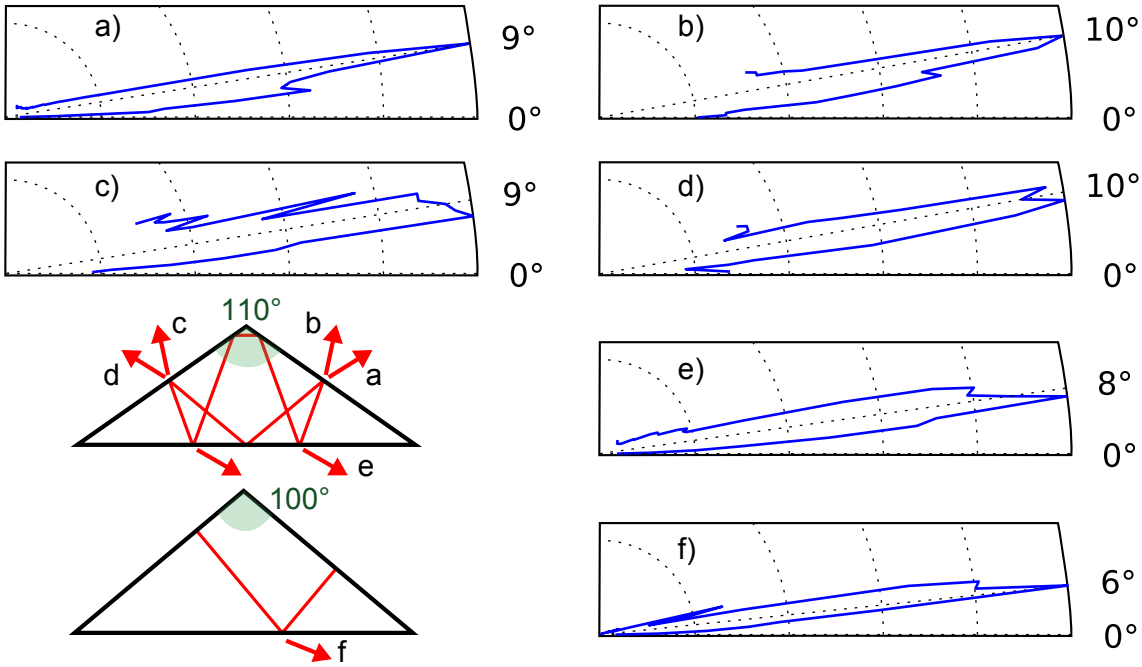


Figure 3.6 – Microlasers sur substrat présentant des orbites lasantes avec des réflexions en incidence oblique. Diagrammes en latitude expérimentaux. a,b,c,d – triangle isocèle d'angle au sommet 110° pour des φ respectivement égaux à $32°, 78°, 102°$, et $148°$. L'angle d'incidence est toujours le même dans ces quatre cas : $15°$. e – triangle isocèle d'angle au sommet 110° pour $\varphi = -30°$. L'angle d'incidence est $20°$. f – triangle isocèle d'angle au sommet 100° pour $\varphi = -22°$. L'angle d'incidence est $40°$.

du résonateur. Le cas s'est présenté dans certains triangles, ce qui sera le centre du sujet du chapitre 5, et dans certains parallélogrammes (cf annexe A). Comme on le sait depuis les travaux de Fresnel, les coefficients de transmission dépendent beaucoup de l'angle d'incidence. Dans toutes les cavités étudiées, la polarisation reste principalement TE, c'est-à-dire que le champ électrique est dans le plan du film. Il faut prendre ce résultat avec précaution, car Iryna Gozhyk a montré qu'il dépendait fortement de la nature de la molécule colorante utilisée [58]. De plus, la polarisation TE est celle de la lumière transmise, ce qui ne signifie pas pour autant que le champ intra-cavité soit exclusivement TE. Quoi qu'il en soit, avec le DCM, la lumière transmise est polarisée TE, et cela a pour conséquence qu'une orbite incidente à l'angle de Brewster $\chi_B = \arctan(1/n) = 33.7°$ a un coefficient de réflexion exactement nul, ce qui est rédhibitoire pour l'existence d'un effet laser. Ainsi, les études expérimentales préliminaires présentées concernent des incidences respectives de 15°, 20°, 40°, soit des angles assez éloignés de l'angle de Brewster. La figure 3.6 présente ces résultats qui ont été obtenus dans des microlasers triangulaires isocèles d'angles aux sommets de 100° et 110°. Ces microlasers sont étudiés plus en détails dans le chapitre 5.5.

Ces résultats devront être reproduits avant d'essayer de chercher des explications décrivant les données. En outre, une attention approfondie devra être accordée à l'alignement du SAS qui, jusqu'à présent, n'est pas garanti pour des angles $\varphi \neq 0°$. Par exemple, on pourrait utiliser des cavités étalons, comme plusieurs Fabry-Perot, dont l'émission est bien appréhendée par le modèle de la partie 3.2.2, orientés suivant plusieurs valeurs de l'angle φ sur le même substrat que le microlaser à étudier. Ainsi on s'assurerait que changer d'angle φ ne modifie pas la réponse du SAS sur l'alignement.

3.3.3 Émission de microlasers carrés

Il s'agit d'un cas particulier qui fait l'objet de la prochaine section. Le confinement par réflexion totale interne à chaque réflexion pose un problème évident quant à la compréhension de l'émission par ces cavités.

Conclusion

Nous avons pu, grâce au SAS, nous apercevoir que l'émission n'est pas dirigée dans le plan de l'échantillon comme nous le pensions auparavant. Pour les cavités Fabry-Perot sur substrat de silice, que nous utilisons le plus régulièrement, l'émission est même dirigée en moyenne 20° au-dessus du plan de l'échantillon. En comparant ces résultats et ceux obtenus pour des FP sur piédestal, nous avons établi un modèle simple, basé sur la diffraction par la bordure et la réflexion sur le substrat, qui fournit une description quantitative très correcte des expériences. Ceci n'est toutefois valable que dans les cas où l'incidence du mode laser est normale sur la bordure. Pour les autres cas, l'émission est plus resserrée vers le plan de l'échantillon. Le chapitre suivant en fournit une explication possible.

Chapitre 4

Émission du carré

L'orbite losange est confinée dans un microlaser organique carré par quatre réflexions totales internes. Les pertes de cette orbite sont, d'un point de vue strictement géométrique, nulles, puisqu'il n'existe pas de transmission. Cependant, la réflexion totale interne est un concept valable pour une onde plane incidente sur une interface plane théoriquement infinie. À l'intérieur d'une microcavité, l'interface a une dimension finie (taille du côté pour le carré) menant à des pertes que les règles de Stokes-Snell-Descartes ne peuvent pas prédire. Ce problème se retrouve aussi pour des polygones réguliers à plus de quatre côtés.

Cela induit plusieurs problèmes fondamentaux :

- comment prédire un seuil laser, ne sachant pas évaluer les pertes ?
- comment prédire la structure de l'émission en champ lointain ?

En outre, cette deuxième question est intimement liée à un vieux problème de l'optique mathématique : celui de la diffraction par un coin de cube. Si la diffraction par un coin métallique est un problème résolu totalement (en champ proche et lointain) par Sommerfeld dans les années 1890, la diffraction par un coin diélectrique reste un problème ouvert. L'existence de modes à l'intérieur de micro-cavités, c'est-à-dire de champs quasi-stationnaires, solutions de l'équation d'onde et supportés par des coins diélectriques, nous apparaît comme une situation inédite, qui renouvelle

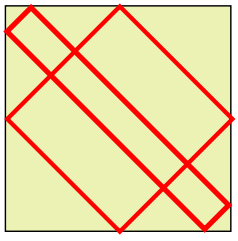


Figure 4.1 – Orbite losange dans un carré. Orbite en famille dont deux représentantes sont dessinées. Leurs longueurs sont égales et les angles d'incidences tous égaux à 45°.

l'étude du mécanisme de diffraction par ces coins. Non que nous ayons la prétention de le résoudre, mais l'apport de nouvelles observations dans un cas si particulier fournira peut-être un élément nouveau à la compréhension du phénomène. Nous avons, dans cette optique, étudié des cavités fabriquées par faisceau d'électrons, avec une résolution nanométrique, c'est-à-dire très inférieure à la longueur d'onde de la lumière, afin de nous rapprocher au maximum d'un système modèle à la géométrie euclidienne. La plupart des expériences ont été faites sur des carrés, mais aussi sur des pentagones et des disques. Ces expériences, dont les plus anciennes ont une douzaine d'années, ont mis longtemps à trouver une explication convaincante. Après avoir décrit ces expériences, nous apportons ici une nouvelle interprétation qui remet en cause l'association entre les modes lasers observés et l'orbite losange. Cette interprétation se base sur le concept de "pseudo-orbites" (cf section 1.3.5).

La forme carrée est peut-être, juste après le ruban, la plus facile à appréhender, car la liste de toutes les orbites périodiques s'obtient facilement. En effet, chaque orbite peut être décrite par deux nombres (m, n) étant respectivement les nombres de réflexions sur les faces parallèles à l'axe x et parallèles à l'axe y. Ainsi, les orbites $(1, 0)$ et $(0, 1)$ correspondent à des orbites de type Fabry-Pérot existant entre deux faces opposées, alors que l'orbite $(1, 1)$ appelée "losange" décrit la trajectoire d'incidence à 45° sur chacune des quatre faces. Plusieurs remarques sont intéressantes à ce stade :

- L'orbite losange est confinée par réflexions totales internes sur les quatre faces, dans les conditions d'indices réfractifs correspondant à nos expériences.
- L'orbite losange est "en famille" (cf section 1.3.4) car toutes les orbites parallèles ont la même longueur et les mêmes incidences. La famille occupe l'aire entière de la cavité carrée.
- Nous observons expérimentalement des spectres dont l'intervalle spectral libre est en parfait accord avec la longueur optique de l'orbite losange (cf section 1.5.3). Cela invariablement pour toutes les cavités carrées fabriquées avec une grande précision par faisceau électronique [21].

Les travaux rapportés ici concernent l'émission en champ lointain de cavités carrées. Nous avons acquis des diagrammes d'émission en longitude et latitude et pris des photos des microlasers dans des directions d'émission privilégiées. L'effet de la polarisation du pompage est aussi étudié, poursuivant les travaux d'Iryna Gozhyk [72]. J'en propose aussi une nouvelle interprétation basée sur les pseudo-orbites.

4.1 Émission en champ lointain

Un diagramme en longitude typique de l'émission d'une cavité carrée sur substrat présente 4 lobes d'émission dans les directions $\pm x$ et $\pm y$ comme on le voit sur la figure 4.2. À ce stade, qualifier ces directions par "perpendiculaires" ou "parallèles" aux bords du carré revient au même pour la description de ce diagramme. Toutefois, on verra que la qualificatif de "parallèle" correspond mieux à la physique de l'émission, ce sur qui est développé plus loin. Ces lobes sont très fins, ce qui pose un premier problème, car aucun calcul de mode (FDTD, IE de Muller) de cavités diélectriques carrées

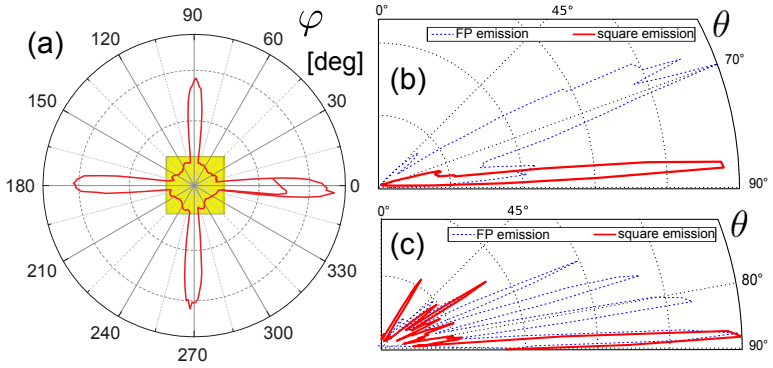


Figure 4.2 – Émission expérimentale en champ lointain du microlaser carré. a – diagramme en longitude d'un carré sur substrat acquis sur le montage "2D" avec la valeur de θ à 90°. (reproduction de la thèse de Sergii Lozenko). b – diagramme en latitude d'un carré sur substrat (trait plein rouge) et d'un FP pour comparaison (trait pointillé bleu), dans la direction $\varphi = 0°$ correpsondant à un maximum dans le diagramme a) en latitude. c – diagramme en latitude d'un carré sur piédestal (trait plein rouge) et d'un FP pour comparaison (trait pointillé bleu), dans la direction $\varphi = 0°$.

ne rend compte d'une directionalité aussi forte. Au contraire, les différentes méthodes de calculs numériques convergent vers des modes résonants dont l'émission en champ lointain est largement distribuée sur 360° avec des diagrammes très complexes.

Quant au diagramme d'émission en latitude, un exemplaire typique est présenté en figure 4.2-b qui montre bien que le cas est sensiblement différent de celui d'un Fabry-Pérot. L'émission est très concentrée au voisinage du plan de l'échantillon, autour de $\theta \simeq 85°$, mettant à mal le modèle de la diffraction par une fente qui nous a satisfaits au chapitre 3.2 précédent. En effet, l'épaisseur de nos échantillons carrés est exactement celle des FP. Quant à la dimension transverse du microlaser carré, elle est nécessairement inférieure puisque celle du FP n'est pas définie si ce n'est par largeur du faisceau de pompage. En partant donc d'une géométrie globalement plus fine, le modèle de la diffraction par une fente mène nécessairement à un diagramme d'émission plus étalé en angle. Pourtant nous observons exactement l'inverse expérimentalement. Un mécanisme de diffraction différent est donc à l'œuvre, dont nous proposerons une explication en section 4.4.2.

4.2 Images

Des images des microlasers carrés ont été prises dans une direction privilégiée de l'émission ($\varphi = 0°$ tel que défini sur la figure 4.2-a par exemple). Une photo d'un microlaser sous pompage au-dessus du seuil est présentée en figure 4.3. Cette photo est prise sous l'éclairage d'une lampe blanche afin de discerner les contours de la cavité carrée, vue en perspective sous incidence $\theta \simeq 90° - 7/8°$. On discerne la lumière verte du pompage diffusée par le bord de la cavité et enfin, deux spots brillants rouges qui constituent l'émission du microlaser. Une remarque préliminaire : il n'y a

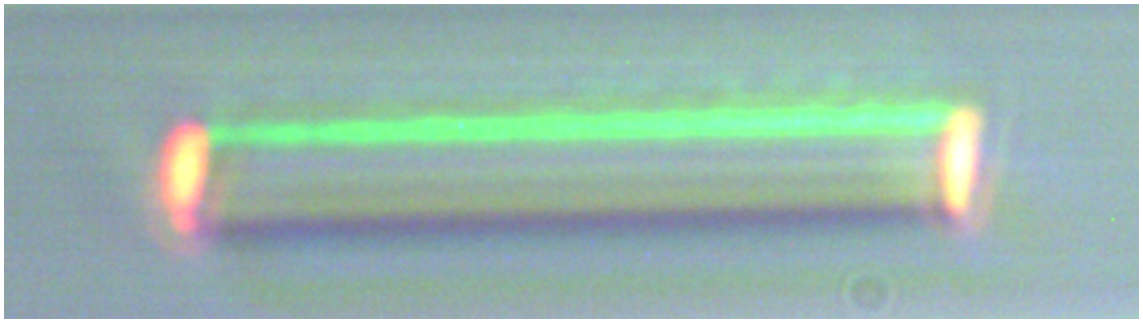


Figure 4.3 – Carré sur substrat sous éclairage blanc et pompage en polarisation circulaire à la fois. L'angle d'observation est proche de $\varphi = 0°$ mais pas exactement toutefois car on voit l'émission du coin droit légèrement plus fortement que celle du coin gauche. Le faible surplomb de la caméra correspond à un angle $\theta \simeq 83°$.

pas de lumière rouge se propageant vers la caméra sur tout le côté du carré perpendiculaire à la direction d'observation. Ceci est en accord avec l'hypothèse des orbites totalement réfléchies à l'intérieur du micro-résonateur. Au contraire, il semble que la lumière provienne des coins ou bien des bords parallèles à la direction d'observation.

4.3 Effet de la polarisation

En jouant avec la polarisation de pompage, nous avons observé des effets intéressants à la fois sur les spectres et les photographies. Nous avons montré que les effets de polarisation sont très dépendants de la nature du colorant [72] et je me limiterai ici au seul DCM, qui est un colorant laser présentant une forte anisotropie de fluorescence. Les effets de polarisation sur les spectres ayant déjà été rapportés dans la thèse d'Iryna Gozhyk [58], j'expose ici les effets visibles en imagerie, résumés sur la figure 4.4-b. La polarisation de la pompe, linéaire, est tournée à l'aide d'une lame demi-onde. L'angle α en ordonnée de la figure, est défini sur la figure 4.4-a comme l'angle entre l'axe x et l'axe de la polarisation. Ainsi α et $\alpha - 180°$ désignent exactement la même configuration de pompage, mais nous avons gardé une figure 4.4-b redondante pour tester et éventuellement montrer la reproductibilité du phénomène. Il apparaît que les coins du carré sont plus ou moins lumineux suivant l'orientation de la polarisation, et que, de plus, la dépendance en α n'est pas la même pour les deux coins. En résumé, les deux coins sont brillants simultanément lorsque $\alpha = 0°$. Pour $\alpha = -45°$, le spot de gauche est éteint. De manière quasiment symétrique, le spot de gauche est plus faible pour $\alpha = 45°$. La situation n'est toutefois pas tout à fait symétrique car la prise de vue est légèrement décentrée par rapport à $\varphi = 0°$, sur une valeur de φ légèrement négative, ce qui se voit bien aussi sur la figure 4.3 aux deux bords latéraux qui ne sont pas exactement parallèles. Enfin, les deux coins sont "éteints" (du moins très peu lumineux) pour $\alpha = 90°$. Sur les spectres, l'effet de la rotation de la polarisation se manifeste très nettement. À une puissance

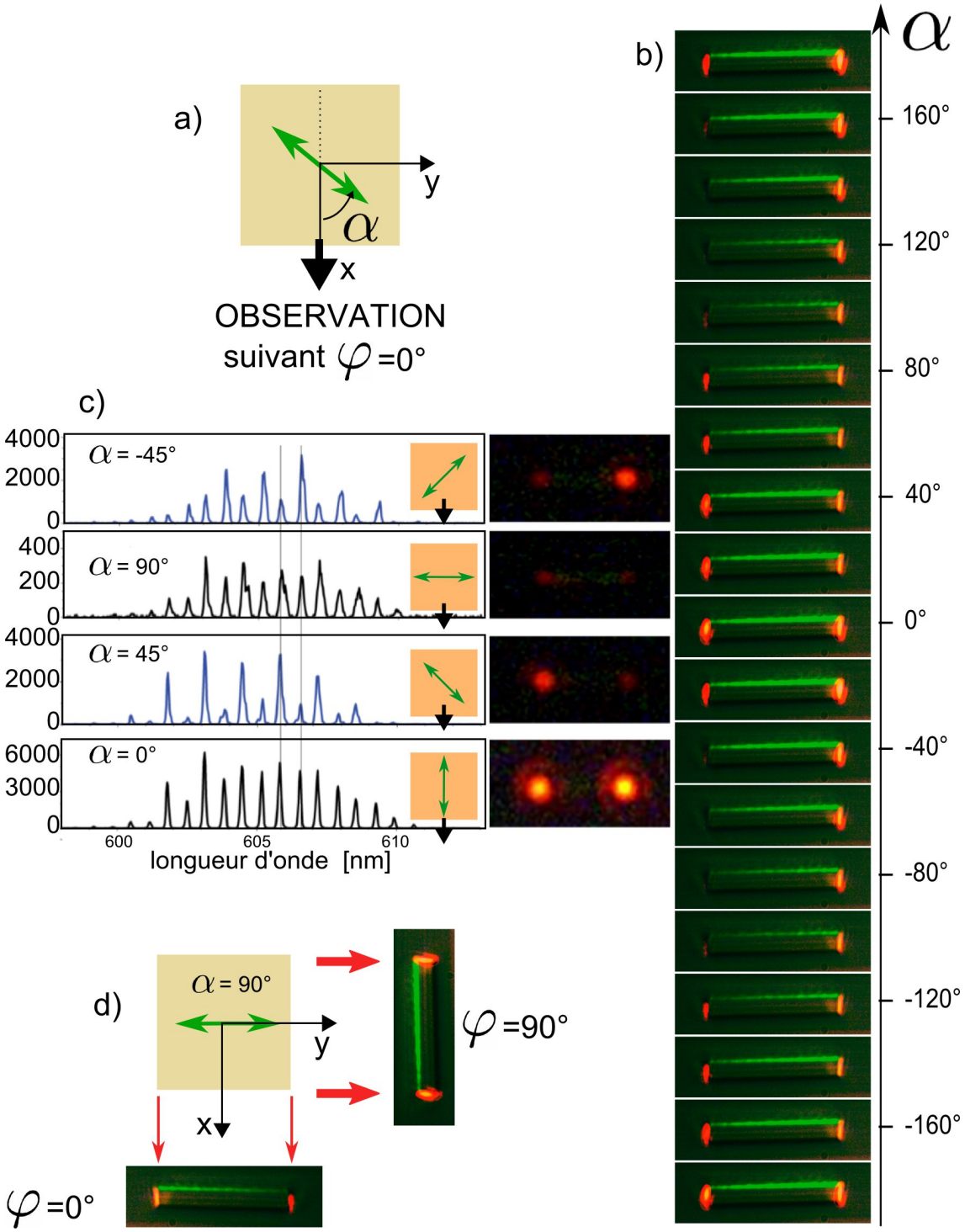


Figure 4.4 – Pompage sous polarisation rectiligne d'un micolaser carré. a – définition de l'angle α entre l'axe x et la polarisation de la pompe (flèche verte). b – images dans la direction $\varphi = 0°$ et $\theta \simeq 83°$ en fonction de α. c – Spectres acquis par Iryna Gozhyk. Le premier spectre et la première image correspondent à un pompage avec un angle $\alpha = -45°$. Les deuxième, troisième et quatrième lignes correspondent respectivement à $\alpha = 90°$, $45°$ et $0°$. θ vaut toujours 90°. On note que le spectre pour $\alpha = 0°$ est très intense en comparaison avec celui de $\alpha = 90°$. d – Autre vision du même phénomène physique : avec une polarisation fixée parallèlement à l'axe y ($\alpha = 90°$). Au milieu : schéma d'un microlaser carré avec la flèche verte représentant la polarisation de pompage. À droite : image du microlaser dans la direction d'observation $\varphi = 90°$. En bas, idem avec $\varphi = 0°$. L'intensité dans la direction $\varphi = 90°$ est beaucoup plus importante.

de pompe fixée on obtient pour $\alpha = 0°$ un spectre lumineux. Cette variation d'intensité des deux spots s'accompagne d'un changement de spectres dans leur intensité globale mais aussi dans les intensités relatives des pics. Comme ces résultats sont déjà rapportés par Iryna Gozhyk dans sa thèse [58], je ne décrirai pas plus en détail ces effets, qui sont bien résumés sur la figure 4.4-c.

Nous avons donc éventuellement une sélection de modes à l'œuvre, dépendant de la polarisation de pompage mais surtout un mécanisme d'émission spectaculairement directionnel et fortement influencé par la polarisation. En effet, comme résumé sur la figure 4.4-d pour $\alpha = 0°$ fixé, le même laser émet, apparemment par le même coin, dans la direction $\varphi = 0°$ alors qu'il n'émet que très peu dans la direction $\varphi = \pm 90°$. Toutefois, dans les deux cas, l'orbite lasante est la même puisque les spectres sont proportionnels. Ce phénomène,qui est aussi observé mais moins fortement avec le pyrrométhène PM605, est donc lié à l'anisotropie de fluorescence du colorant. Sans chercher à s'attarder sur le vaste sujet de l'anisotropie de fluorescence sur lequel Iryna Gozhyk a passé beaucoup plus de temps, le phénomène observé ici ajoute un élément au puzzle que constitue l'émission du carré. Une solution hypothétique à ce puzzle est apportée en partie 4.4.2.

4.4 Modèles et Discussion

La photographie de la figure 4.3 nous a laissé penser que l'émission pouvait être originaire de tout un bord de la cavité et non pas seulement d'un coin. De plus, l'hypothèse de l'émission originaire d'un coin n'est pas compatible avec la directivité observée des microlasers carrés. En effet, si un microlaser de type Fabry-Perot diffracte sur un angle total de 50°, pourquoi un microlaser carré de même épaisseur diffracterait-il moins ? L'émission par toute une bordure du carré pouvait en outre fournir des interférences expliquant le profil en champ lointain de l'émission. Tout d'abord, partant de l'hypothèse de modes lasers se propageant dans la direction des diagonales du carré, cette hypothèse aboutit a une impasse que je décris néanmoins dans la section 4.4.1. Puis, en relâchant la contrainte de l'orbite périodique losange, et en acceptant une émission par réfraction en transmission rasante, ce modèle est modifié sensiblement et acquiert une légitimité qui me semble honnête car l'accord avec l'expérience est meilleur.

4.4.1 Modèle de l'antenne dans l'hypothèse du losange

Nous considérons l'hypothèse de modes scars (cf chapitre 1.3.5) associés à l'orbite losange et montrons que cette hypothèse aboutit à une impasse pour la description du diagramme en latitude du carré.

Un bord de la cavité, parallèle à la direction d'observation, est considéré comme une antenne de longueur L composée d'émetteurs E qui ont une certaine relation de phase. Le mode scar associé à l'orbite losange prédit que la lumière se propage à l'intérieur de la cavité et est incidente sur une face avec l'angle 45° (cf. figure 4.6-a). Comme cet angle est supérieur à l'angle critique de réflexion totale, toute la lumière est réfléchie, et il existe du côté extérieur une onde évanescente qui se propage parallèlement à l'interface. La structure de cette onde évanescente donne aux émetteurs E leur relation de phase qui est donc la suivante : $\phi(x) = e^{-iq_x x}$ car l'onde se propage vers l'écran

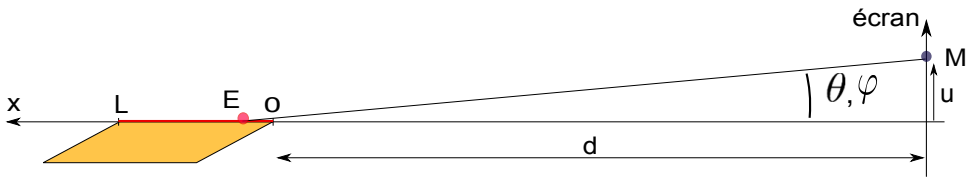


Figure 4.5 – Schéma de la géométrie considérée dans les calculs pour les modèles "de l'antenne" et "de la transmission rasante". La coordonnée u peut représenter y ou z. L'intégration se fait sur x entre 0 et L.

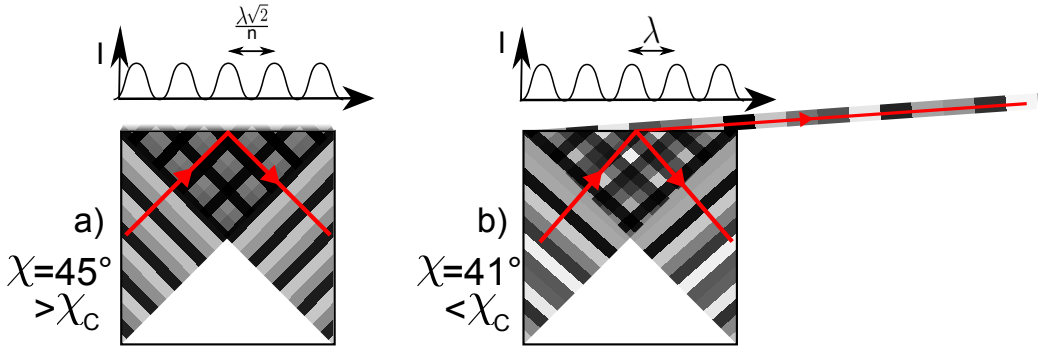


Figure 4.6 – Schéma des modèles a – de l'antenne créée par réflexion totale interne sous incidence 45°. b – de la sortie en transmission rasante sous incidence inférieure et proche de l'angle critique de réflexion totale.

(x négatif pour que le calcul soit plus facile, voir notation sur la figure 4.5) L'onde évanescente à l'extérieur est de la forme $E_0 e^{-iq_x x - y/\delta_y}$. Avec $q_x = nk_0/\sqrt{(2)}$ et $\delta_y = \frac{\lambda_0}{2\pi\sqrt{n^2/2-1}}$. L'amplitude totale en un point M de l'écran correspondant en champ lointain à la direction $\varphi = \arcsin(\frac{u}{d})$ est

$$\begin{aligned} A(M) = & \int_0^L dx.e^{-iq_x x}.e^{ik.EM}\,, \\ = & \int_0^L dx.e^{-iq_x x}.e^{ik.\sqrt{(d+x)^2+u^2}}\,. \end{aligned} \tag{4.1}$$

On se place dans la zone de Fresnel où $x, u \ll d$ et la racine devient à l'ordre 1 en x/d :

$$d + x + \frac{u^2}{2d} - \frac{u^2 x}{2d^2}\,. \tag{4.2}$$

Donc

$$\begin{aligned} A(u) \propto & \int_0^L dx.e^{-iknx/\sqrt{2}}.e^{ikd+ikx+ik\frac{u^2}{2d}-ik\frac{u^2 x}{2d^2}}\,, \\ \propto & e^{ikd+ik\frac{u^2}{2d}} \int_0^L dx.e^{ikx(1-n/\sqrt{2}-\frac{u^2}{2d^2})}\,, \\ \propto & \int_0^L dx.e^{ikx(1-\frac{n}{\sqrt{2}}-\frac{u^2}{2d^2})}\,, \\ \propto & \left[\frac{e^{ikx(1-\frac{n}{\sqrt{2}}-\frac{u^2}{2d^2})}}{ik(1-n/\sqrt{2}-\frac{u^2}{2d^2})}\right]_0^L\,, \\ \propto & \left[\frac{e^{ikL(1-\frac{n}{\sqrt{2}}-\frac{u^2}{2d^2})}-1}{ik(1-n/\sqrt{2}-\frac{u^2}{2d^2})}\right]\,, \\ \propto & \operatorname{sinc}\left(\frac{kL}{2}(1-\frac{n}{\sqrt{2}}-\frac{u^2}{2d^2})\right)\,, \\ \propto & \operatorname{sinc}\left(-\frac{kL}{2}(\frac{n}{\sqrt{2}}-1+\frac{u^2}{2d^2})\right)\,, \end{aligned} \tag{4.3}$$

L'intensité $I_A(u) = |A(u)|^2$ est tracée sur la figure 4.7 en trait fin bleu. Comme $\frac{kL}{2}(1-\frac{n}{\sqrt{2}}) \simeq 600$, on est dans une zone du sinus cardinal où la fonction $A(x)$ est bien décrite par une modulation à l'intérieur d'une enveloppe. La modulation de $A(u)$ à l'intérieur de l'enveloppe est de période variable $\frac{2d^2\lambda}{\pi L u}$. L'enveloppe (en pointillés verts sur la figure 4.7) a la forme $\frac{1}{1+\frac{u^2}{2d^2(\frac{n}{\sqrt{2}}-1)}}$ dont la largeur à mi-hauteur en intensité est δ telle que $\frac{(\delta/2)^2}{2d^2(\frac{n}{\sqrt{2}}-1)} = \sqrt{2}-1$ soit $\frac{\delta}{d} = 2\sqrt{2(\frac{n}{\sqrt{2}}-1)(\sqrt{2}-1)} = 0.47$ qui correspond à une ouverture de 28°. Cela ne correspond pas à nos expériences qui montrent, à la fois en longitude et en latitude, une émission beaucoup plus directive. Nous avons donc dû chercher un autre modèle.

4.4.2 Modèle de la sortie réfractive en transmission rasante

Ce nouveau modèle suppose que nous observons en réalité une onde rasante transmise par un bord du carré. Ceci est incompatible avec l'incidence à 45° et nécessite donc de renoncer à la description du laser par des modes scars associés à l'orbite losange. Nous discutons les implications de cette nouvelle approche dans la section 4.4.3 suivante. Le bord de la cavité parallèle à la direction d'observation est ainsi considéré comme une antenne de longueur L composée d'émetteurs E qui ont la relation de phase suivante $\phi(x) = e^{-ik_0 x}$ car l'onde se propage vers l'écran.

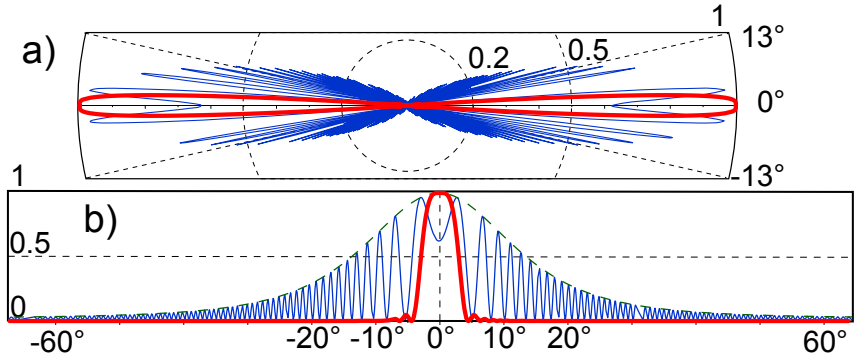


Figure 4.7 – Modèle de l'émission en champ lointain par une antenne parallèle à la direction d'observation. λ =600nm, longueur de lantenne $L = 100$ μm a – tracé en coordonnées polaires. La coordonnée angulaire peut représenter aussi bien φ que θ. b – tracé en coordonnées cartésiennes. Distribution des dipôles sur l'antenne en $\sin\left(\frac{n2\pi x}{\sqrt{(2)}\lambda}\right)$ trait fin bleu et enveloppe de cette courbe en trait pointillé vert. Largeur à mi-hauteur 28°. Distribution des dipôles en $\sin\left(\frac{2\pi x}{\lambda}\right)$ (modèle de la transmission rasante) en trait épais rouge. Largeur à mi-hauteur 8°, légèrement inférieure à la valeur expérimentale donnée par le diagramme expérimental 4.2-a.

L'amplitude totale en un point M de l'écran correspondant à $\varphi = \arcsin(\frac{u}{d})$ est

$$\begin{aligned} B(M) = & \int_0^L dx.e^{-ikx}.e^{ik.EM}\,, \\ = & \int_0^L dx.e^{-ikx}.e^{ik.\sqrt{(d+x)^2+u^2}}\,. \end{aligned} \tag{4.4}$$

On se place dans la zone de Fresnel où $x, u \ll d$, et la racine devient à l'ordre 1 en x/d :

$$d + x + \frac{u^2}{2d} - \frac{u^2 x}{2d^2}\,. \tag{4.5}$$

Donc

$$\begin{aligned} B(u) \propto & \int_0^L dx.e^{-ikx}.e^{ikd+ikx+ik\frac{u^2}{2d}-ik\frac{u^2 x}{2d^2}}\,, \\ \propto & e^{ikd+ik\frac{u^2}{2d}} \int_0^L dx.e^{-ik\frac{u^2 x}{2d^2}}\,, \\ \propto & e^{ikd+ik\frac{u^2}{2d}} \left[\frac{e^{-ik\frac{u^2}{2d^2}x}}{-ik\frac{u^2}{2d^2}}\right]_0^L\,, \\ \propto & e^{ikd+ik\frac{u^2}{2d}} \frac{2id^2}{ku^2}\left(e^{-ik\frac{u^2 L}{2d^2}}-1\right)\,, \\ \propto & e^{ikd+ik\frac{u^2}{2d}-ik\frac{u^2 L}{4d^2}} \frac{2id^2}{ku^2}\sin\left(k\frac{u^2 L}{2d^2}\right)\,, \\ \propto & \operatorname{sinc}(k\frac{u^2 L}{2d^2})\,, \end{aligned} \tag{4.6}$$

qui est une fonction piquée dont la demi-largeur $\delta/2$ du pic est donnée par $k\frac{(\delta/2)^2 L}{2d^2} = \pi$. Ce qui donne $\delta = d\sqrt{\frac{8\pi}{kL}} = d\sqrt{\frac{4\lambda}{L}}$ soit un angle $\alpha = \frac{\delta}{d} = \sqrt{\frac{4\lambda}{L}}$. À une longueur d'onde $\lambda = 600$nm et pour une longueur $L = 100\mu m$ correspondant au côté d'un microlaser, l'application numérique conduit

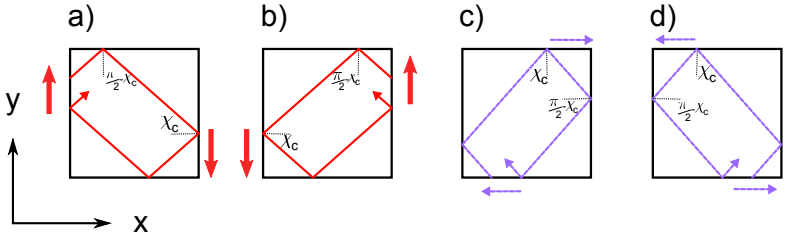


Figure 4.8 – Dessin des pseudo-orbites incidentes avec un angle égal à l'angle critique de réflexion totale. Quatre symétries sont représentées.

à une valeur $\alpha = \sqrt{4.600.10^{-9}/10^{-4}} = \sqrt{0.24} = 0.15\text{rad} = 8°$. Ce qui est proche des observations expérimentales.

4.4.3 Discussion

On a supposé que le bord entier parallèle à l'observation était une antenne à profil sinusoïdal de période λ. Ceci est faux si on considère le champ évanescent créé par la réflexion totale d'une onde incidente à 45°. Un tel champ a une période spatiale $\lambda\sqrt{2}/n$. Cependant en considérant une onde réfractée à l'angle transmission $\sim 90°$ soit une angle d'incidence $\sim \chi_C$, la période de cette onde suivant la direction x est bien la longueur d'onde λ de la lumière transmise. C'est la situation limite représentée sur la figure 4.6-b. La transmission se fait par les faces entières du carré et seulement dans la direction rasante. Ainsi, en regardant dans la direction $\varphi = 0°$, on observe seulement un spot, et les images donnent l'impression, à première vue, que l'émission provient seulement du coin.

Un tel mode est prévu par la théorie des trajectoires pseudo-périodiques (cf section 1.3.5). Parmi les orbites non-totalement confinées, ce sont les mieux confinées de toutes. Du point de vue des symétries, un tel mode émet seulement dans deux directions par deux coins/faces opposés, mais l'existence d'orbites symétriques, représentées sur la figure 4.8, rétablit la symétrie de l'émission, du moins pour un pompage isotrope (par exemple circulaire).

Retour sur l'influence de la polarisation de pompage.

En pompant les molécules avec une polarisation linéaire, parallèlement à un côté, on casse la symétrie, ce qui explique que le laser émette dans les directions parallèles à la polarisation de pompe, et non pas dans la direction transverse. Prenons par exemple une polarisation alignée suivant x, pour nous placer dans la situation de la figure 4.4-d.

La figure 4.8 montre quatre pseudo-orbites incidant sur les parois avec les couples d'angle χ_c et $\frac{\pi}{2} - \chi_C$). Ces deux familles ont exactement la même longueur et les mêmes pertes. Cependant, sous le pompage par une polarisation parallèle à x, elles ne subissent pas le même gain. J'ai expliqué dans le chapitre 1.4.3 que la propagation suivant la direction y est amplifiée dans ces conditions alors que la propagation suivant x (alignée avec la polarisation de pompe) ne l'est pas.

Suivant la configuration de la figure 4.8, la projection des pseudo-orbites a) et b) sur la direction y donne une longueur de chemin de $2L\sin(\chi_C) = 1.32L$. Ces orbites, incidant sur les parois parallèles à y avec un angle χ_C, sont susceptibles d'émettre en incidence rasante dans la direction y. En revanche, sur les parois parallèles à x, l'incidence se fait avec un angle $\frac{\pi}{2} - \chi_C > \chi_C$ donc la réflexion est totale. D'autre part, les pseudo-orbites c) et d), susceptibles d'émettre quant à elles dans la direction x par réflexions d'incidence χ_C sur les faces parallèles à x, ont une projection sur la direction perpendiculaire à la pompe de $2L\cos(\chi_C) = 1.50L$. Cette projection est supérieure à celle des orbites a) et b). Toutes choses étant égales par ailleurs pour ces deux familles de pseudo-orbites, l'asymétrie du pompage est donc responsable de la prédominance des unes c) et d) sur les autres a) et b). Cela n'est pas suffisant pour justifier l'extinction des pseudo-orbites a) et b), mais justifie que leur seuil laser soit plus élevé. En conséquence nous observons une émission très supérieure suivant la direction x, c'est-à-dire pour $\varphi = 0°$.

Autres mérites de l'hypothèse des pseudo-orbites

Cette nouvelle approche demande à être validée par des expériences-test qu'il nous faudra concevoir. Il y a de grandes probabilités qu'elle apporte enfin une justification solide à des comportements expérimentaux restant jusque-là inexpliqués.

Par exemple, les microlasers de formes rectangulaires émettent, sous pompage en polarisation circulaire, principalement dans la direction perpendiculaire aux grands côtés. Cela est déjà rapporté dans la thèse d'Iryna Gozhyk par exemple [58].

Par ailleurs, les formes carrées aux coins arrondis, étudiées par Nadia Djellali dans sa thèse [73], présentent plusieurs familles de modes ayant manifestement des pertes différentes, mais des longueurs optiques toutes proches de l'orbite losange.

Pour les pentagones, enfin, les diagrammes d'émission présentent, comme dans le cas du carré, dix pics d'émission dirigés de manière non-équivoque parallèlement aux 5 côtés du pentagone. Un modèle de scars associés à des pseudo-orbites est applicable au pentagone aussi bien qu'au carré.

4.5 Microlasers carrés sur piédestal

Mis sur piédestal, les microlasers carrés voient leurs propriétés d'émission modifiées en plusieurs points. La constante reste, dans tous les échantillons étudiés, l'observation systématique dans les spectres d'une longueur optique correspondant à l'orbite losange. Cependant la directionalité de l'émission selon 4 pics fins, dans le cas où le substrat n'a pas été gravé, n'est pas reproduite dans le cas sur piédestal [67]. Cela peut être imputable à la qualité de gravure de la silice qui est faite par voie chimique. En effet, les images de la figure 4.9 pour des angles φ de 20° à 50° montrent clairement une irrégularité de l'émission suivant la tranche. L'émission se fait pour autant toujours majoritairement depuis les faces latérales. Et le diagramme d'émission en latitude, dont un exemple est montré en figure 4.2-c, présente à la fois la forte concentration de l'émission dans la direction proche de $\theta = 90°$ et la modulation due aux interférences avec le substrat, comme dans le cas du FP sur piédestal (cf chapitre 3.2.2).

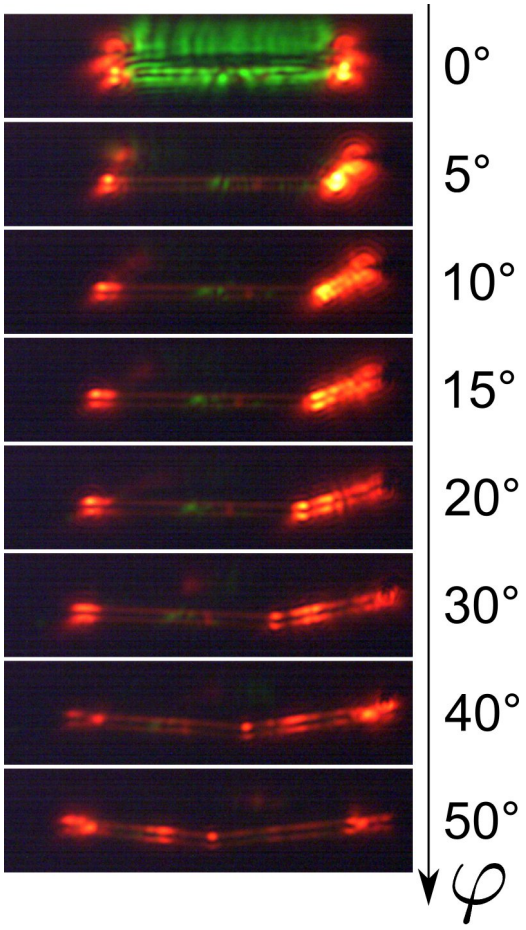


Figure 4.9 – Images d'un microlaser carré sur piédestal prises sous différents angles φ en contreplongée d'environ 7° au dessus du plan $\theta = 90°$. Pompage en polarisation circulaire.

4.6 Retour sur l'émission 3D en incidence oblique

Entre le cas des Fabry-Perot, pour lesquels l'incidence de la lumière est normale, et le cas du carré où l'angle d'incidence est probablement proche de χ_C, menant ainsi à une transmission rasante, il existe toutes les autres incidences possibles dont on a déjà étudié quatre exemples dans le chapitre précédent et plus particulièrement sur la figure 3.6. À première vue, les diagrammes en latitude obtenus sont plus proches du cas du carré que de celui du FP. Il sera intéressant de développer les calculs de la section 4.4.2, en les adaptant au cas de la transmission oblique. Il me semble probable que cela fournisse une description correcte de l'expérience.

Chapitre 5

Triangles

5.1 Introduction

La forme triangulaire est intéressante à plus d'un point de vue. Le plus étonnant de tous est peut-être le point de vue du billard. En effet, malgré la simplicité élémentaire du polygone à 3 côtés, une question mathématique fondamentale reste aujourd'hui en suspend :

Est-il possible de trouver au moins une orbite périodique dans un billard triangulaire ?

Bien sûr, il existe de nombreux cas particuliers pour lesquels des éléments de réponse sont disponibles. Ces éléments sont exposés dans la première section de ce chapitre. Parmi les cas particuliers, celui du triangle équilatéral occupe une place particulière. Cette forme, dont toute les orbites périodiques sont référencées, et qui est un cas intégrable, a fait l'objet de nombreuses recherches. Cela signifie que le problème du résonateur triangulaire équilatéral, pris avec des conditions de Dirichlet à la frontière (du type d'une paroi parfaitement conductrice), est solvable analytiquement, ce qu'il est intéressant de comparer avec les résultats de l'approche semi-classique [54, 74]. De plus, la réalisation expérimentale est accessible, par exemple dans le cas de VECSEL dont la frontière latérale est celle d'un triangle équilatéral [75, 76, 62].

Le cas des billards métalliques ayant la forme d'un triangle rationnel (la signification de *rationnel* est donnée à la section suivante) a souvent été étudié grâce à l'approche des superscars [77] et souvent dans le but de quantifier l'influence de la diffraction par les coins sur les spectres de résonances des résonateurs [78, 79, 80].

Les billards triangulaires diélectriques revêtent toutefois un intérêt particulier, puisqu'ils décrivent le cas, réalisable expérimentalement, des microlasers, qui sont au cœur de ce chapitre. Comme pour d'autres formes, les conditions aux limites de ces résonateurs, dues uniquement à la différence d'indice entre les matériaux intérieur et extérieur (souvent l'air), compliquent les approches formelles. Cependant, les matériaux semi-conducteurs d'indice optique souvent supérieur à 3, souffrent peu des pertes par réfraction. En effet, avec un angle critique de réflexion totale inférieur à 20° (si $n > 3.0$), beaucoup d'orbites restent confinées par réflexion totale dans les triangles.

Ainsi, les réalisations expérimentales de lasers en hétéro-structures semi-conductrices [81, 82] se prêtent bien à l'analyse par des modes superscars [83, 84, 85]. Toutefois, ces études se restreignent encore exclusivement au cas du triangle équilatéral. Une légère variante, concernant l'arrondi des coins, ouvre la voie au calcul numérique des résonances par la méthode IBEM (cf section 1.2.3) [86, 87]. En fait, les symétries du triangle équilatéral rendent l'application de la méthode IBEM possible, même sans arrondi des coins, ce qui est fait sur la figure 1.3, pour un indice optique de 1,5 correspondant au cas des matériaux organiques.

Avec les matériaux organiques, le problème se pose différemment car il n'existe aucune orbite confinée totalement par réflexion totale interne ($\chi_C = 41,8°$). De plus, l'existence de l'angle de Brewster à 33,7° tue l'effet laser sur les orbites ayant un réflexion trop proche de cet angle dans la polarisation TE. Nous avons mené une campagne d'expériences sur des échantillons classiques fabriqués en PMMA dopé en DCM à hauteur de 5%. La polarisation de sortie des lasers mesurés est toujours TE et aucun spectre n'a effectivement montré une orbite ayant une réflexion à l'angle de Brewster. En outre, une quantité de phénomènes originaux a été observée, dont l'étude et la compréhension ont enrichi notre palette, permettant ici ou là d'appuyer un peu plus les approches semi-classiques présentées au chapitre 1. Par exemple, la section 5.3 est consacrée au triangle équilatéral, théâtre d'une compétition de mode. La section 5.4 est consacrée à deux triangles rectangles qui apportent des informations complémentaires sur le cas de la réflexion par un angle droit, dont on a abondamment parlé dans le chapitre 4 précédent dédié au carré. Les triangles isocèles sont le sujet de la section 5.5 ; pour ceux-ci, il existe aussi une compétition entre deux orbites clairement identifiées, ce qui nous permet de tester le critère des pertes par réfraction sur la détermination du seuil laser. Enfin, le cas d'un triangle général de la section 5.6, dans lequel aucune orbite n'est identifiée mathématiquement, nous a fourni une démonstration inédite d'orbite lasante diffractive [78].

5.2 Orbites périodiques dans un triangle

On imagine aisément qu'une question comme celle énoncée plus haut, restant sans réponse, a de quoi aiguillonner la communauté mathématique. Cette section dresse une liste des différents cas pour lesquels des éléments de réponse existent. Nous avons été introduits à ce sujet par un mathématicien, Alain Grigis de l'université Paris XIII, qui a vu dans nos microlasers un moyen simple de faire apparaître des orbites cachées. En outre, les polytopes à plus de deux dimensions (il ne reste que trois pour nous malheureusement) constituent son principal intérêt [88]. Ainsi, il nous a encouragés à fabriquer des tétraèdres, ce dont il est un peu question dans la partie II de cette thèse.

Le premier cas particulier est l'ensemble des triangles rationnels qui fait déjà l'objet de nombreux articles de mathématiques (par exemple [89]). Pour être qualifié de rationnel, un triangle doit avoir trois angles $\gamma_i, i \in 1,2,3$ qui soient tous trois des fractions rationnelles de π, c'est-à-dire de la forme $\frac{p_i}{m_i}\pi$ où p_i et m_i sont des entiers premiers entre eux. Alors la méthode des dépliements assure l'existence, et permet de trouver, les orbites périodiques dans le triangle, comme montré en

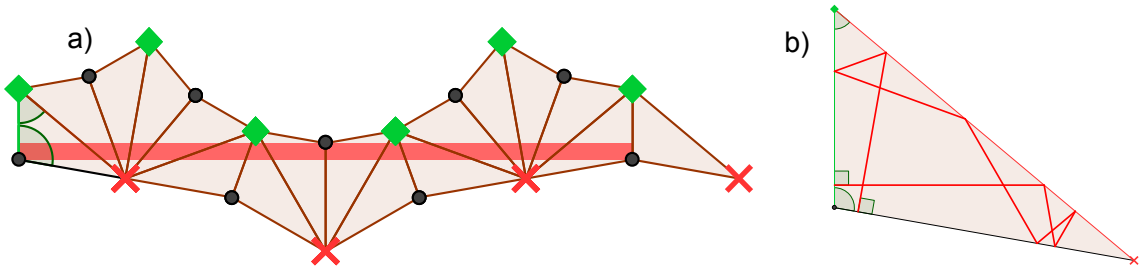


Figure 5.1 – Méthode du dépliement pour le triangle $(100°, 50°, 30°)$ soit $(\frac{5\pi}{9}, \frac{5\pi}{18}, \frac{\pi}{6})$. a – triangle déplié, l'orbite est une trajectoire rectiligne en famille, existant dans le canal représenté par le rectangle rosé. b – triangle replié, l'orbite satisfait aux réflexions spéculaires sur les bords.

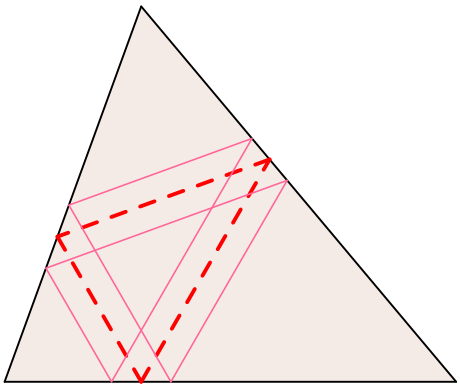


Figure 5.2 – Deux orbites dans un triangle aigu (i.e. dont tous les angles ont moins de 90°). L'orbite *de Fagnano* en pointillé, à trois rebonds, est isolée. L'orbite dédoublée, à six rebonds, en trait plein, est en famille.

exemple sur la figure 5.1. Ceci est d'ailleurs valable pour tous les polygones et pas seulement les triangles [90]. L'ensemble des triangles rationnels est dense dans l'ensemble des triangles. Mais si une valeur de m est trop grande, comme un nombre de réflexion de l'ordre de $\sum m_i$ est nécessaire pour fermer l'orbite, alors cette orbite ne présente en fait que peu d'intérêt pour l'expérimentateur, car il devient très improbable qu'elle soit assez confinée pour être à l'origine d'un effet laser.

Lorsque tous les angles d'un triangle sont inférieurs à 90°, alors il existe une orbite joignant les pieds des trois hauteurs. Cette orbite, dite "de Fagnano" [91], est une orbite isolée, mais il existe une famille d'orbites semblables (dont une représentante est tracée sur la figure 5.2) de longueur double et comportant 6 réflexions.

Dans le cas où tous les angles mesurent moins de 100°, cas un peu moins restrictif que le précédent, il existe encore une preuve formelle de la possibilité de trouver des orbites dans le billard.

Cependant, cette preuve fait appel à des arguments mathématiques théoriques [92], difficilement applicables à la recherche d'une orbite simple.

Enfin, dans le cas général, il n'y a pas de réponse quant à la possibilité de trouver une orbite dans un triangle. Dans le même esprit, et sans prétendre nous substituer à une démonstration mathématique en tout état de cause irremplaçable, cette indétermination nous a stimulés dans la recherche d'un éventuel effet laser dans des micro-résonateurs organiques triangulaires. Avec, en arrière-pensée, l'ambition d'identifier une orbite dans un triangle, de façon à guider les mathématiciens avec d'éventuelles solutions dont il leur appartiendrait de consolider l'existence par une démonstration appropriée.

5.3 Triangle équilatéral

Le cas du triangle équilatéral a été étudié intensivement et dans diverses configurations [75, 76, 62, 74, 81, 82, 83, 84, 93, 94, 85] ainsi que dans la configuration des microlasers organiques par Nadia Djellali pendant sa thèse [73]. Il s'agit en outre du seul cas où la méthode numérique de calculs de modes IBEM (cf section 1.2.3) est applicable de manière convergente. Cela est dû aux symétries qui permettent de séparer les modes en différentes classes de symétrie. En outre, dans les cas de conditions aux limites de Dirichlet ou de Neumann, le triangle équilatéral est une forme intégrable, dont tous les modes sont calculables analytiquement [54].

Orbites

Il en existe une infinité, mais deux se démarquent par leur simplicité et le faible nombre de réflexions qu'elles nécessitent. Elles sont représentées sur le graphique 5.3-a. La première a deux réflexions en incidence normale et une réflexion totale interne (d'incidence = 60°). On l'appelle quasi-Fabry-Perot (quasi-FP) car elle a les mêmes pertes qu'une orbite dans un Fabry-Perot. Sa longueur est égale à deux fois la hauteur du triangle, soit $\sqrt{3}a$, où a est la longueur du côté du triangle. Dans l'expérience exposée ici, a vaut 300μm, ce qui donne une longueur géométrique pour l'orbite quasi-FP de 519μm. La seconde est l'orbite de Fagnano, puisque le triangle équilatéral est aigu. Sa longueur est $\frac{3}{2}a = 450\mu$m.

Résultats expérimentaux

Le diagramme d'émission 5.3-b contient 3 directions principales d'émission, perpendiculaires aux côtés du triangle. Les spectres sont très propres, montrant un seul peigne avec un intervalle spectral libre (ISL) bien défini. La transformée de Fourier est très piquée sur une Longueur optique $L_{opt} = 825\mu$m. En prenant en compte l'indice optique complet défini au chapitre 1.5.3 $n_{comp} = 1.64$, on trouve une longueur géométrique de $L_g = 503\mu$m, assez proche des 519 μm du quasi-FP et bien loin de l'orbite de Fagnano, simple ou dédoublée. Ces deux éléments nous permettent de conclure quant au support de l'effet laser par l'orbite quasi-FP. En effet, les longueurs optiques

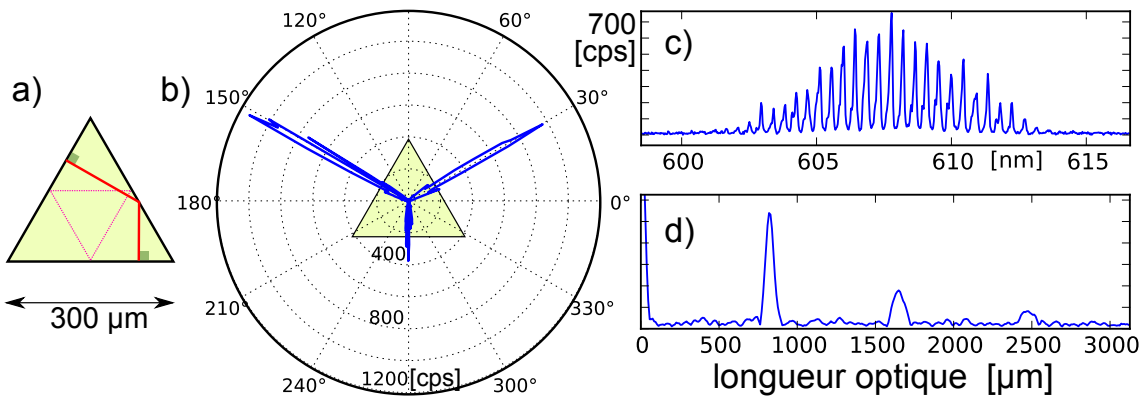


Figure 5.3 – Triangle équilatéral. a – deux types d'orbites sont supportés : l'orbite "quasi-FP" se bouclant sur elle-même et l'orbite de Fagnano. b – Diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$) . c – spectre acquis dans la direction $\varphi = 30°$. d – sa transformée de Fourier piquée à une longueur optique de 821 μm correspondant à la longueur de l'orbite quasi-FP.

correspondent, ainsi que les directions d'émission, car si la lumière est en incidence normale à l'intérieur de la cavité, la lumière réfractée à l'extérieur est aussi en incidence normale.

Discussion

L'orbite Fabry-Pérot connaît seulement deux réflexions qui ne sont pas totales. D'incidence normale, les coefficients de Fresnel pour la réflexion en amplitude sont de 0.2. Ce qui donne 4% d'intensité réfléchie par réflexion. Ceci correspond à un gain théorique (cf chapitre 1.5.3) $g_{th} = -\frac{\ln \Pi r_i}{L} = 62\text{cm}^{-1}$.

Quant à l'orbite de Fagnano, ses trois réflexions amènent beaucoup de pertes, de par la proximité de l'angle d'incidence avec l'angle de Brewster $\chi_B = \arctan(1/n) = 33.7°$. Pour une réflexion, le coefficient de Fresnel est de 0.0678 en amplitude et il y en a trois. Ceci donne un $g_{th} = 179\text{cm}^{-1}$. Considérer l'orbite double en famille de la figure 5.2 amènerait à la même valeur de g_{th} car la longueur est double, ainsi que le nombre de réflexions.

Ce simple calcul montre qu'un gain nettement plus important est nécessaire pour arriver à un effet laser sur l'orbite de Fagnano, et explique pourquoi l'orbite quasi-FP est la seule que l'on observe. En effet, malgré une augmentation de la puissance de pompe, l'orbite de Fagnano n'a jamais été observée au laboratoire. De plus, le profil de l'émission hors-plan, tracé en figure 3.5, est exactement celui qu'on obtiendrait avec un microlaser de type FP.

5.4 Triangle rectangle

Le triangle rectangle est un cas particulier, dont le billard associé a été étudié extensivement au point de vue mathématique [95, 96, 97]. Une propriété bien connue des opticiens est la faculté pour

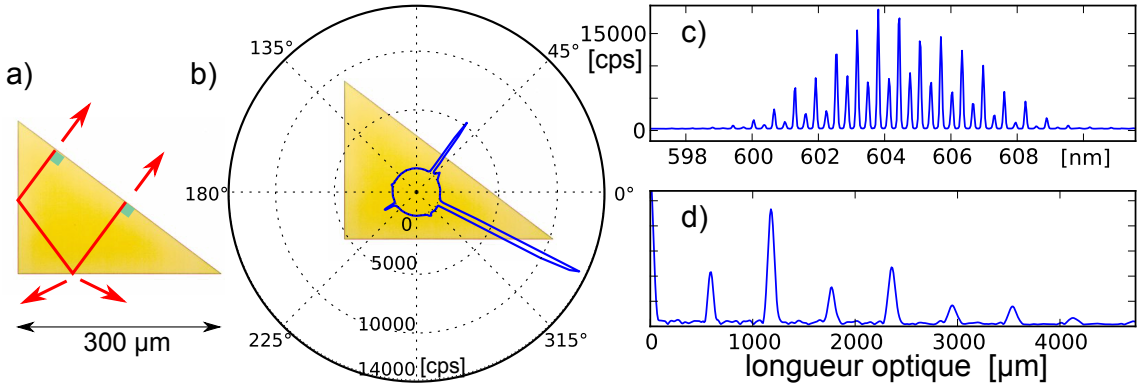


Figure 5.4 – Triangle rectangle "345". a – Photographie au microscope et dessin de l'orbite supportée. Les flèches indiquent les directions de réfraction associées. b – Diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$). 3 pics sont visibles dans des directions coïncidant avec les flèches de a). L'asymétrie entre les deux pics dirigés vers le bas est un artefact expérimental. En effet au moment de ces acquisitions le rôle de la polarisation n'était pas connu. Les spectres sont donc acquis pour chaque valeur de φ avec une polarisation tournante telle que l'angle $\alpha - \varphi$ entre la direction de collection et la polarisation du pompage (cf figure 4.4-a) est constamment égal à $90°$. c – spectre acquis dans la direction $\varphi = 53°$. d - Transformée de Fourier du spectre en c).

un coin de cube (dont l'équivalent 2D est l'angle droit) de renvoyer la lumière dans la direction inverse de la lumière incidente, quel que soit cet angle d'incidence. On en déduit que tout triangle rectangle est porteur d'une orbite perpendiculaire à son hypoténuse, que le triangle soit rationnel ou non. Cette orbite est représentée sur la figure 5.4-a. Elle est en fait un cas limite de l'orbite de Fagnano, marginalement stable [97].

5.4.1 Triangle "345"

L'orbite de la figure 5.4-a n'est pas la seule existante, mais elle est la plus simple et c'est bien celle que nous avons observée. La figure 5.4 rapporte les expériences réalisées sur un triangle "345", ce qui signifie que les côtés de ce triangle ont pour longueurs respectives $3a$, $4a$ et $5a$, où a vaut dans ce cas 75μm. La longueur géométrique de l'orbite est égale à 4 fois la hauteur du triangle soit $9.6a = 720\mu$m.

Le diagramme d'émission montre trois directions principales, correspondant aux trois directions indiquées sur la figure 5.4-a par les flèches. Le pic en direction normale à l'hypoténuse, soit $\varphi = 53°$ s'obtient par la réfraction sur l'hypoténuse. Les deux autres pics à $\varphi = 206°$ et $334°$ satisfont aux conditions de réfraction de Snell-Descartes au niveau du côté bas ($4a$) du triangle. En effet l'incidence de l'orbite sur cette face est de $\chi_i = 37° < \chi_C$ ce qui conduit à un déconfinement. L'angle transmis χ_t vérifie $\sin\chi_t = n_{\text{layer}} \sin\chi_i$ ce qui donne $\chi_t = 64°$ et est cohérent avec les valeurs mesurées $206° = 270° - 64°$ et $334° = 270° + 64°$. Enfin les spectres mesurés arborent de jolis peignes (voir par exemple la figure 5.4-c), dont la transformée de Fourier (figure 5.4-d) révèle

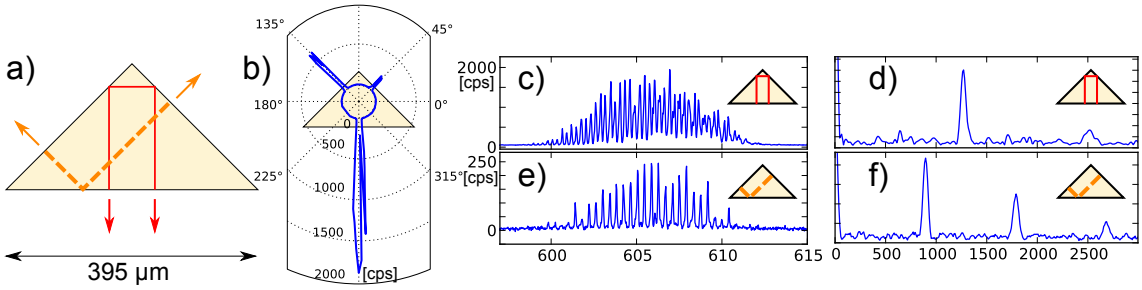


Figure 5.5 – Triangle "paveur". a – Dessin des deux orbites les plus simples. Les flèches indiquent les directions de réfraction associées. b – Diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$). 3 pics sont visibles dans des directions coïncidant avec les flèches de (a) . c,d – spectre acquis dans la direction $\varphi = -90°$ et sa TF. e,f – spectre acquis dans la direction $\varphi = 45°$ et sa TF

une longueur optique de 1160 μm. Ceci correspond à une longueur géométrique de 707 μm avec $n_{comp} = 1.64$ assez proche des 720 μm attendus. Le fait que le spectre semble dédoublé, un pic sur deux ayant une intensité plus faible, est un cas que l'on a déjà trouvé dans la forme carrée et sous certaines conditions de polarisation (cf figure 4.4-c). Le triangle rectangle partage avec le carré des réflexions sur deux côtés faisant un angle droit. Ici cependant aucune émission n'est détectée dans les directions parallèles aux bords. Ceci est encore cohérent avec la trajectoire de la figure 5.4-a car la réflexion sur le bord gauche étant totale, il n'y a pas d'émission dans cette direction. Quant à la réflexion sur le bord du bas, elle se fait dans les directions prédites par les lois de Snell-Descartes. Les pertes sont importantes à cause de quatre réflexions non totales et il n'y a pas besoin d'invoquer des orbites pseudo-périodiques comme dans le cas du carré pour comprendre tout cela.

5.4.2 Triangle "paveur"

Le triangle paveur est un cas particulier à l'intérieur du cas particulier des triangles rectangles car il est aussi isocèle. Avec le triangle équilatéral, ce sont les seuls triangles dont les dépliements finissent par paver l'ensemble du plan, d'où le nom de paveur. Deux orbites coexistent, qui ont exactement les mêmes pertes par réfraction mais des longueurs différentes. Le schéma 5.5-a montre ces deux orbites. La plus longue, représentée en trait plein rouge, est un cas particulier de l'orbite de Fagnano dédoublée, présente pour tous les triangles rectangles. Sa longueur est égale à 4 fois la hauteur du triangle. Il est facile de montrer que cela vaut deux fois la base du triangle, c'est-à-dire ici 2×395 μm $= 790$ μm. Et on retrouve cette longueur optique dans l'analyse du spectre selon la direction perpendiculaire à l'hypoténuse ($\varphi = -90°$) pour laquelle la TF du spectre révèle une longueur optique de 1270 μm et donc une longueur géométrique de 774μm ($n_{comp} = 1.64$). La réflexion d'incidence 45° n'amène aucune perte, car la réflexion est totale interne et donc les pertes par réfraction sont celles d'un Fabry-Perot.

L'orbite la plus courte est représentée en traits pointillés oranges. Elle est en incidence normale

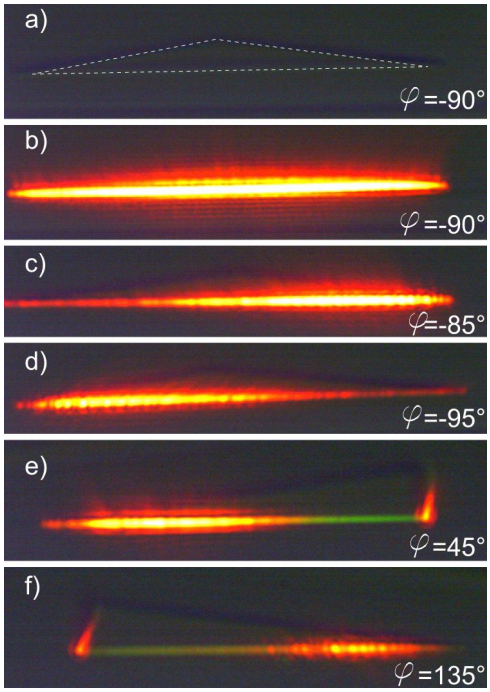


Figure 5.6 – Images du triangle "paveur". Le pompage est en polarisation circulaire et l'angle azimutal de la caméra est $\theta \simeq 83^\circ$. a – dans la direction $\varphi = -90^\circ$ sans pompage. b – dans la direction $\varphi = -90^\circ$ avec pompage. c – dans la direction $\varphi = 45^\circ$. d – dans la direction $\varphi = 135^\circ$

par rapport aux petits côtés du triangle. Elle a la particularité d'être présente dans tous les triangles isocèles. Sa longueur est deux fois la longueur d'un côté, soit $2\sqrt{(2)}$ fois la longueur de la base, soit ici $\sqrt{(2)} \times 395$ μm $= 558$ μm et ses directions d'émission sont perpendiculaires aux petits côtés du triangle ($\varphi = 45°$ et $135°$). On retrouve bien la trace de cette orbite dans le spectre à $\varphi = 45°$ dont la TF montre un pic à $L_{geom} = \frac{896}{1.64} = 545$ μm. Les pertes de cette orbite sont également celles d'un Fabry-Pérot, mais comme sa longueur est plus courte, elle est moins amplifiée, ce qui peut expliquer la différence d'intensité dans le diagramme d'émission 5.5-b entre le pic $\varphi = -90°$ et les pics $\varphi = 45, 135°$.

L'orbite en trait plein est un repliement de l'orbite losange existant dans le carré, comme le triangle paveur est un repliement du carré. Par contre, on ne retrouve pas cette orbite quasi-losange dans les spectres acquis dans les directions parallèles au coin d'angle droit (i.e. $\varphi = 45°$ et $135°$). Ceci semble normal car l'orbite quasi-losange n'est pas confinée totalement à cause de la réflexion sur le bord du bas en incidence normale. Il n'est pas nécessaire, à nouveau, d'invoquer des pseudo-orbites pour comprendre cela. Pour autant il nous reste à comprendre pourquoi, sur les images de la figure 5.6-e et f, le coin de l'angle droit apparaît brillant. Les pseudo-orbites peuvent nous aider ici. En effet les pseudo-orbites proches de l'orbite quasi-losange peuvent mener à des modes dont les pertes sont très proches de celles du quasi-losange. Ceci explique probablement pourquoi les photos 5.6-c et d, prises dans les directions $\varphi = -85°$ et $-95°$, pas si proches de $\varphi = 90°$, montrent une émission si importante et surtout de provenance inhomogène le long de la bordure hypoténuse du triangle. Cela signifie que plusieurs pseudo-orbites ayant des directions de propagation un peu différentes contribueraient en fait à l'émission laser.

La coexistence des deux orbites est aussi intéressant en soi. Le fait que les pertes soient les mêmes est insuffisant pour expliquer cela, car les longueurs sont différentes ce qui introduit un biais dans le cadre d'une compétition. Dans le carré par exemple, il n'existe pas de seuil pour l'orbite Fabry-Perot, car quel que soit la puissance de la pompe, nous observons toujours une orbite losange (ou pseudo-losange).

5.5 Triangles isocèles

Un triangle isocèle supporte toujours une orbite d'incidence normale par rapport à ses deux côtés égaux. De plus, pour un triangle isocèle dont l'angle au sommet est compris entre 90° et 111°, une deuxième orbite moins évidente est supportée dont nous montrons qu'elle peut dominer dans l'effet laser. Un échange de prédominance se produit, dépendant de la valeur de l'angle au sommet.

Triangle isocèle d'angle au sommet 100°

Dans ce triangle, l'orbite courte dessinée en trait plein sur la figure 5.7-a, de longueur 514μm, domine nettement. Les quatre pics dans le diagramme d'émission 5.7-b concordent avec les directions de réfraction et la longueur géométrique contenue dans l'ISL est $L_{geom} = \frac{834}{1.64} = 508$ μm, très proche de la valeur théorique. Cette orbite effectue en une boucle deux réflexions sous incidence normale et deux incidences à 40° auxquelles sont associés un coefficient de réflexion de Fresnel TE

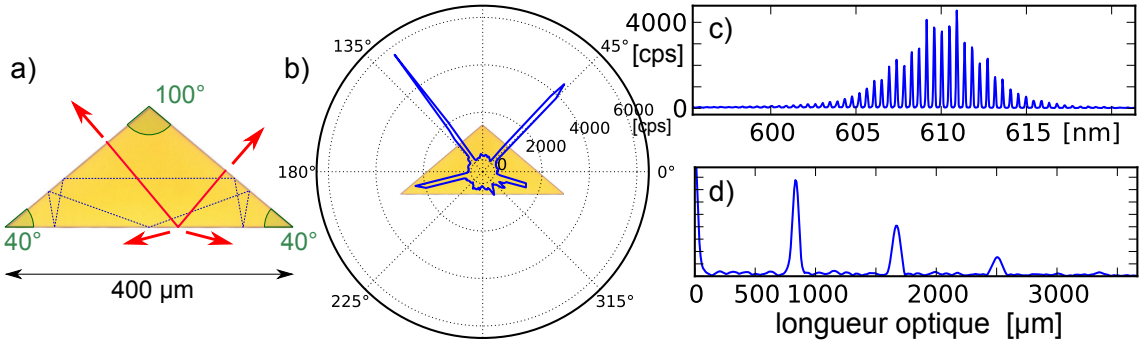


Figure 5.7 – Triangle isocèle d'angle au sommet 100°. a – Dessin des deux orbites supportées. Les flèches indiquent les directions de réfraction associées à l'orbite en trait plein rouge. b – Diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$). 4 pics sont visibles dans des directions coïncidant avec les flèches de (a) . c,d – spectre acquis dans la direction $\varphi = 50°$ et sa TF.

$r_{40°} = -0.316$. Le gain théorique associé est donc $g_{th} = -\frac{\ln(r_{90°}^2 r_{40°}^2)}{L_{geom}} = 107\text{cm}^{-1}$. La deuxième orbite n'a pas été observée. Avec une longueur de 775 μm et 7 réflexions à 50°, 10°, 30°, 70°, 30°, 10° et 50°, elle a un gain théorique de $g_{th} = -\frac{\ln(r_{10°}^2 r_{30°}^2)}{L_{geom}} = 112\text{cm}^{-1}$ légèrement supérieur à celui de l'orbite courte.

Triangle isocèle d'angle au sommet 110°

Dans le triangle isocèle d'angle au sommet 110°, les choses s'inversent. Avec une longueur de 458 μm, deux réflexions normales et une à 35°, l'orbite courte (représentée sur la figure 5.8-b) a un gain théorique $g_{th} = -\frac{\ln(r_{90°}^2 r_{35°}^2)}{L_{geom}} = 218\text{cm}^{-1}$.

Avec une longueur de 706 μm et 7 réflexions à 55°, 20°, 15°, 50°, 15°, 20° et 55°, l'orbite "longue" (représentée sur la figure 5.8-a) a un gain théorique de $g_{th} = -\frac{\ln(r_{15°}^2 r_{20°}^2)}{L_{geom}} = 101\text{cm}^{-1}$ cette fois-ci inférieur à celui de l'orbite courte.

La dominance de l'orbite longue est effectivement confirmée dans l'expérience. Dans le diagramme d'émission sur la figure 5.8-c, on discerne six pics directionnels qui correspondent aux angles réfractés de l'orbite longue. Ces directions sont représentées par des flèches sur le schéma 5.8-a. Les spectres, dont un est représenté sur la figure 5.8-d, sont moins "propres" mais la transformée de Fourier (fig. 5.8-e) révèle clairement un pic à $L_{opt} = 1146$ μm ce qui correspond à $L_{geom} = 699$ μm qui est assez proche de la longueur théorique de 706 μm. Une dernière preuve, et non la moindre, est constituée par les photographies 5.9 du microlaser prises sous pompage. Ces photos, prises dans cinq des six directions de sortie de l'orbite longue, font apparaître des points brillants localisés. Ceci est différent des images acquises par exemple pour le triangle paveur (figure 5.6) où un segment de la bordure est éclairé. La raison en est que l'orbite longue est une orbite isolée, ce qui donne une signification réelle à la position sur la bordure des points de réflexion de la figure 5.8-a. Ce sont ces points qui sont visibles sur les photographies 5.9, souvent un seul à la fois,

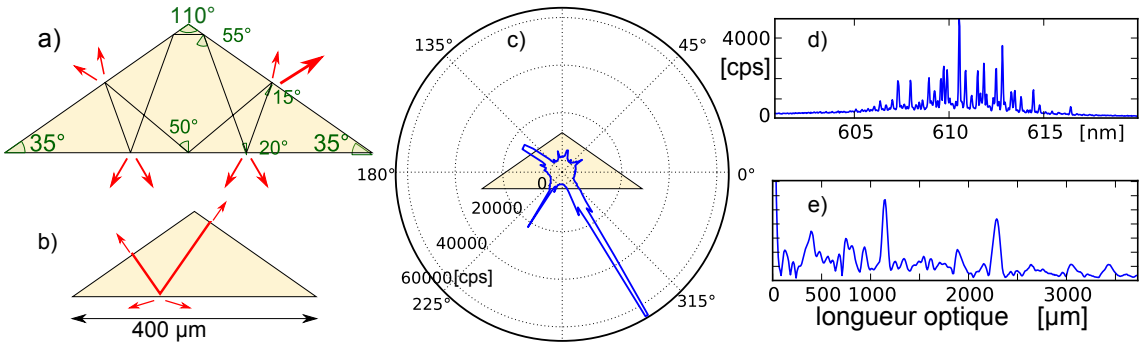


Figure 5.8 – Triangle isocèle d'angle au sommet 110°. a – dessin de l'orbite "longue". Les flèches indiquent les directions de réfraction associées. b – dessin de l'orbite "courte". Les flèches indiquent les directions de réfraction associées. c – diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$). Six pics sont visibles dans les directions coïncidant avec les flèches du diagramme a). d – spectre acquis dans la direction $\varphi = 32°$ correspondant à la flèche plus grosse dans a). e – TF du spectre en d).

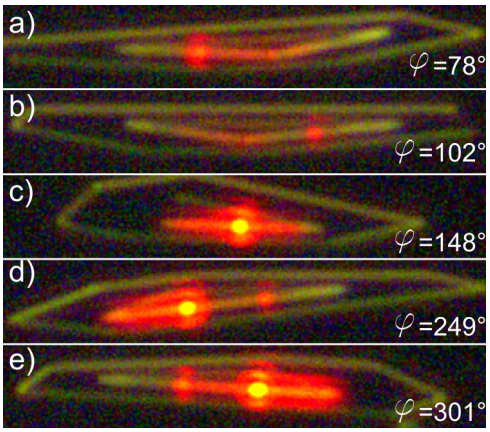


Figure 5.9 – Photographies du triangle isocèle d'angle au sommet 110°. Le pompage est en polarisation circulaire, l'ange azimutal de la caméra est $\theta \simeq 83°$ et les directions φ sont indiquées sur chaque image.

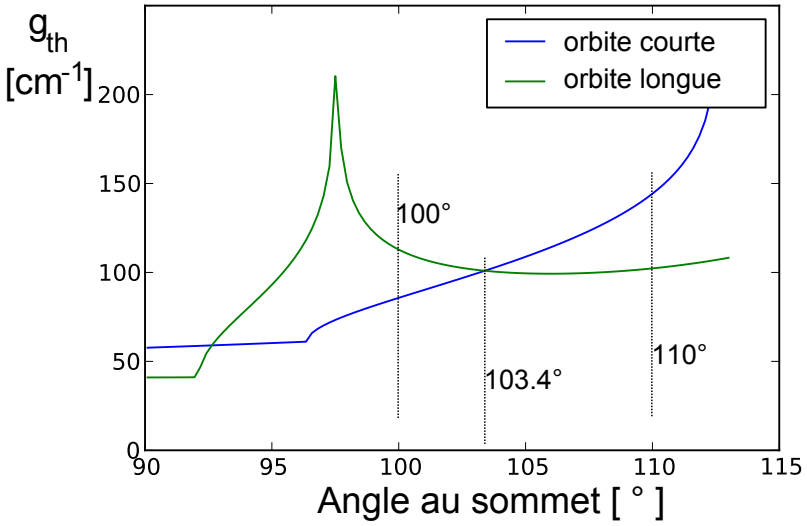


Figure 5.10 – Gain théorique en fonction de l'angle au sommet d'un triangle isocèle. Les deux cas expérimentaux, 100° et 110°, se situent de part et d'autre du cas limite à $103,4°$.

et parfois deux à la fois pour les angles $\varphi = 249°$ et $301°$, car les deux réflexions sur la bordure du bas émettent dans ces deux mêmes directions.

Triangle isocèle d'angle au sommet $\in [90°, 111°]$

Les deux expériences montrent deux cas différents, dont la configuration ne varie que par un paramètre : l'angle au sommet du triangle. D'après notre modèle, le cas limite est un triangle isocèle dont l'angle au sommet est tel que le gain théorique est égal pour les deux types d'orbites. La figure 5.10 montre que ce cas limite est atteint à 103.4°. Au-dessus de cette valeur sueil, c'est l'orbite longue qui domine, alors qu'en-dessous, c'est l'orbite courte. À noter que ce modèle prédit que pour des angles au sommet compris entre 90° et 92.5°, l'orbite longue est censée être plus favorable à nouveau, ce qui serait intéressant à vérifier.

5.6 Triangle général "quasi-isocèle", orbite diffractive

Ce triangle est une déformation du cas précédemment exposé du triangle isocèle d'angle au sommet égal à 100°. Il a été choisi dans le but de détruire l'orbite courte qui prédominait nettement dans le cas isocèle à 100°. La figure 5.11 montre le diagramme d'émission, ainsi qu'un spectre collecté dans la direction $\varphi = 89°$ et sa TF. La transformée de Fourier montre un pic à 556 μm, soit une longueur géométrique $L_{geom} = 339$ μm qui est une longueur courte comparée à l'envergure du triangle (le côté bas mesure 390 μm). Il se trouve que cette longueur correspond au double de la hauteur du triangle (c'est-à-dire exactement 336 μm). Cela est intéressant car un aller-retour le

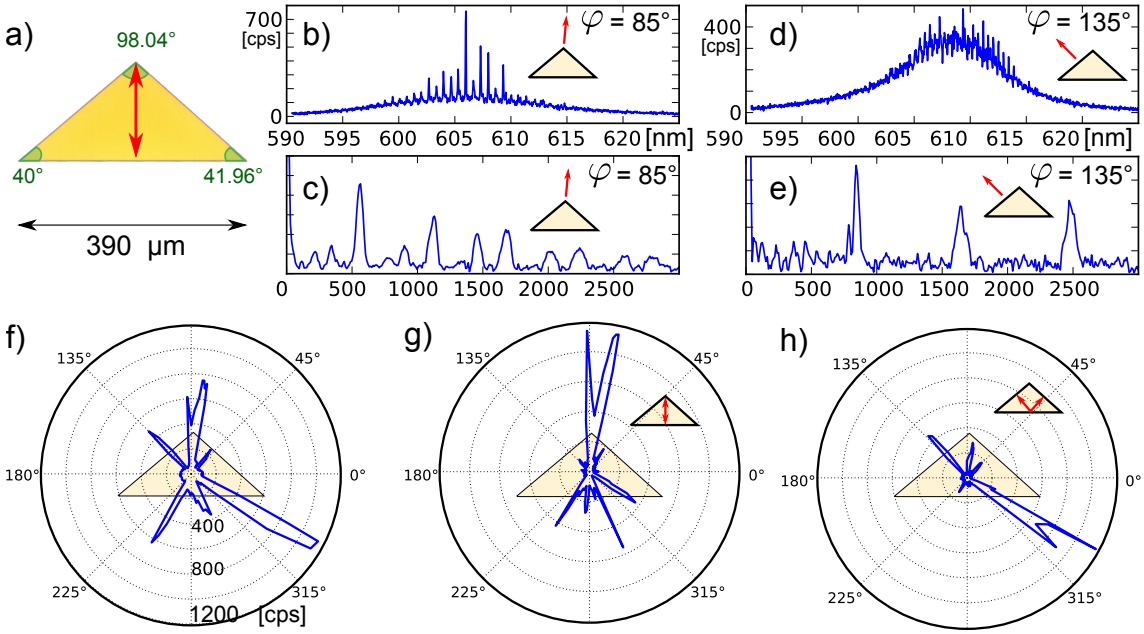


Figure 5.11 – Triangle général "quasi-isocèle". a – photographie au microscope. Il n'y pas d'orbites connues dans ce triangle. b – spectre acquis dans la direction $\varphi = 85°$. c – TF du spectre en b). d – spectre acquis dans la direction $\varphi = 135°$. e – TF du spectre en d). f – diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$). g – diagramme d'émission en longitude filtré sur la longueur de l'orbite diffractive. Pour chaque valeur de φ, on a pris la valeur de la TF pour une longueur optique correspondant à un aller-retour le long de la hauteur du triangle. h – diagramme d'émission en longitude filtré sur 834 μm, longueur de l'orbite courte dans le triangle isocèle d'angle au sommet 100°.

long de la hauteur n'est pas censé constituer une orbite périodique au sens mécanique classique que l'on a utilisé jusqu'ici. Cependant, ce coin diffracte de la lumière probablement dans toutes les directions dont celle de la hauteur. En l'absence d'orbite plus favorable à la création de l'effet laser, celle-ci l'emporte.

En fait, l'orbite du cas isocèle n'est pas totalement détruite et on en retrouve la trace dans les directions proches de celles que l'on avait dans le cas isocèle, à savoir $\varphi = 50°$, 130° et 335°. Un spectre obtenu pour $\varphi = 135°$ est exposé en figure 5.11-d . Ce genre de spectres a aussi été obtenu dans des cavités "FP-désalignées" dans le cadre du stage de Laura McGuire [98], la problématique est exactement transposable au cas de ce triangle quasi-isocèle, puisque l'orbite initiale est en incidence normale sur deux bords comme dans un FP.

Ayant un spectre par valeur de φ, il est aisé de tracer un diagramme d'émission sélectif en longueur d'orbite. Pour une valeur de φ, nous retenons de la TF du spectre sa valeur en une longueur optique donnée. Cela fournit un nouveau diagramme d'émission associé à cette longueur

optique particulière choisie. Sur la figure 5.11, le diagramme g) est celui associé à l'orbite diffractive. L'émission se fait surtout dans des directions proches de 90° et -90°, ce qui n'est pas surprenant, mais le détail du diagramme d'émission est complexe, et non expliqué à ce jour. Le profil est sûrement lié à la forme du coin d'angle 98.04° et à la diffraction qu'elle engendre. Le diagramme h) est associé à une survivance l'orbite courte existant dans un triangle isocèle. On y retrouve une certaine émission dans les directions 50°, 130° et 335° qui correspondent à peu près à des directions d'émission du triangle isocèle voisin, mais la symétrie de l'émission est largement brisée.

Conclusion

L'existence d'orbites dans les triangles est toujours une énigme mathématique, à laquelle nous n'avons pas apporté de réponse claire. Dans de nombreux cas, la règle "le plus petit gain l'emporte" a été vérifiée. Cette règle n'a d'ailleurs jamais été invalidée mais elle ne s'applique qu'aux cas où des orbites simples sont a priori identifiées. Nous nous sommes aussi intéressés aux autres cas, et cela nous a permis de découvrir que des orbites diffractives peuvent exister, et mener à l'effet laser dans nos composants organiques. Une étude plus systématique des seuils de lasers suivant des orbites diffractives pourra mener à une évaluation du "coefficient de réflexion" des coins diélectriques.

Chapitre 6

Synchronisation de modes

Une question fondamentale reste posée, relative à la nature du peigne de fréquences que nous observons dans les spectres des cavités : chacun de ces pics étroits en fréquence correspond-il à un mode indépendant des autres, comme une source laser parmi d'autres, ou bien existe-t-il une relation de phase entre ces modes, susceptibles en ce cas d'induire des propriétés temporelles bien connues dans le vaste domaine du "verrouillage en phase" ? Une synchronisation entre modes aurait pour conséquence que ceux-ci interfèrent en champ lointain, ce qui modifierait la structure des diagrammes d'émission. Cela serait une explication candidate pour tous les diagrammes d'émissions dont on ne sait pas rendre compte (cas des rectangles, et dans une certaine mesure les carrés malgré les ouvertures à la partie 4). Dans le cas d'une synchronisation des modes, cela signifierait que le profil temporel a une forme particulière, peut-être celle d'un train d'impulsion. En outre, il reste beaucoup de questions ouvertes sur la dynamique des microlasers, dont l'une d'entre elles concerne la description de la largeur réelle des pics du spectre laser. Une autre, plus liée au caractère organique, est la détermination de la largeur de gain homogène dans le milieu à gain.

Dans le cas général, pour une émission laser par un microlaser de type Fabry-Perot de largeur l, le profil temporel est de la forme $E(t) = \sum_p E_p \cos(\omega_p t + \phi_p)$ avec $\omega_p = \frac{2\pi nc}{2l} p$. Nous ne tenons pas compte de la dispersion par souci de simplification ici. Il est commode de ré-indexer les modes, de façon à ce que l'indice $q = 0$ corresponde à un pic central de l'enveloppe du spectre. Alors

$$E(t) = \sum_q E_q \cos(\omega_q t + \phi_q) \quad , \tag{6.1}$$

avec $\omega_q = \omega_0 + \frac{2\pi nc}{2l} q$. Étant donné le spectre d'un microlaser de type Fabry-Perot comme celui de la figure 6.1-b, plusieurs types de profils temporels sont possibles, tous en accord avec le théorème de Wiener-Khintchine. Dans un premier temps, je décris un profil particulier bien connu de la communauté des lasers femto-secondes : le train d'impulsion dans un laser à modes synchronisés. Je précise les quantités pertinentes pour l'application à notre système. Ensuite, je rapporte une expérience d'auto-corrélation linéaire réalisée avec le même microlaser Fabry-Perot que celui de la figure 6.1-b. Enfin, je décris la *vraie* expérience discriminante, que je n'ai malheureusement pas

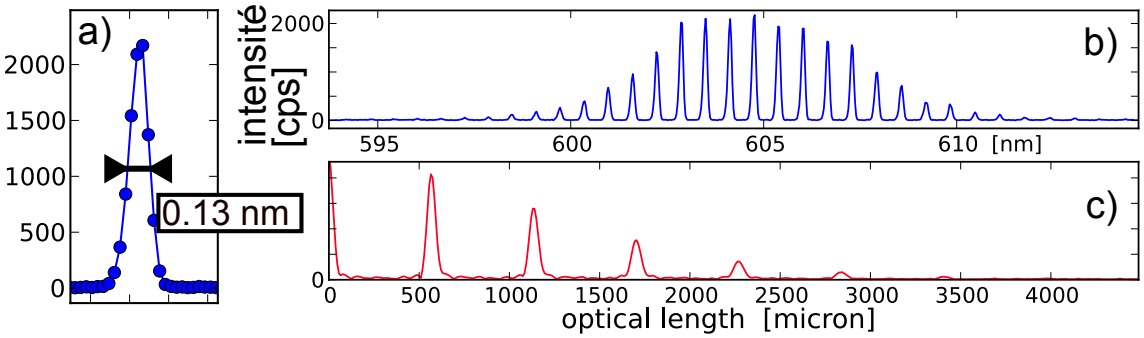


Figure 6.1 – Échantillon : Fabry-Perot de largeur 160 μm. a – zoom sur un des pics du spectre b). b – spectre du microlaser acquis dans la direction $\varphi = 0°$ et $\theta = 90°$. c – transformée de Fourier du spectre dont le premier pic est centré sur $2 \times 160 \times n_{\text{comp}} = 524$ μm.

pu réaliser durant ma thèse : l'auto-corrélation non-linéaire qui devrait permettre de conclure sur l'existence d'une éventuelle synchronisation des modes.

6.1 Modèle du train d'impulsions

Le domaine des peignes de fréquences et des trains d'impulsions est très riche et pleinement d'actualité. Il existe des voies différentes pour obtenir cet état de la lumière, la plus usitée étant sans doutes des lasers femtosecondes à verrouillage de modes, utilisant un matériau non-linéaire pour le verrouillage passif (effet Kerr ou absorbant saturable) avec des applications très variées. Dans notre cas, en l'absence de cristal non-linéaire pour créer la synchronisation, il se trouve que les molécules de colorant sont par elles-mêmes des systèmes souvent utilisés en optique non-linéaire (molécules aromatiques présentant des groupements électro-donneurs et électro-accepteurs) [99, 100, 101]. Quoi qu'il en soit, la dynamique de nos lasers étant largement incomprise pour le moment, il n'est pas impossible qu'un phénomène de verrouillage se produise dans la cavité. Dans cette hypothèse, le champ aurait le profil temporel suivant :

$$E(t) = f_{\tau_{tr}}(t) \times \sum_i g_{\tau_{puls}}(t - i\tau_{rep}) \times \cos(2\pi\nu(t - i\tau_{rep} + \phi_i)) \tag{6.2}$$

où $f_{\tau_{tr}}(t)$ est une enveloppe définissant la longueur du train d'impulsions, $g_{\tau_{puls}}(t)$ est le profil d'une des impulsions se répétant à la fréquence $1/\tau_{rep}$ et de largeur temporelle $\tau_{puls} < \tau_{rep} < \tau_{tr}$. Pour illustrer ceci on peut prendre un modèle de profils gaussiens :

$$E(t) = e^{-t^2/\tau_{tr}^2} \sum_i E_0 \exp\left(-\frac{(t - i\tau_{rep})^2}{\tau_{puls}^2}\right) \times \cos\left(\omega_0(t - i\tau_{rep} + \phi_i)\right) \tag{6.3}$$

Le spectre associé à un tel profil temporel est

$$E(\omega) \propto \sum_q e^{-\frac{\pi^2 \tau_{puls}^2}{\tau_{rep}^2} q^2} e^{-\frac{\tau_{tr}^2}{4}(\omega-\omega_q)^2} \tag{6.4}$$

avec $\omega_q = \omega_0 + \frac{2\pi nc}{L} q = \omega_0 + \frac{2\pi}{\tau_{rep}} q$, ce qui correspond à une série de pics de largeur à mi-hauteur en intensité $2\sqrt{2\ln 2}/\tau_{tr}$ séparés de $2\pi/\tau_{rep}$ et avec une enveloppe globale centrée sur ω_0 et de largeur $2\sqrt{2\ln 2}/\tau_{puls}$, conforme avec le spectre expérimental de la figure 6.1-b.

En confrontant ce profil de spectre aux données expérimentales, on aboutit à $\tau_{tr} \simeq 22.1$ ps, $\tau_{rep} \simeq 1.7$ ps et $\tau_{puls} \simeq 0.48$ ps. Il s'agirait donc d'un train d'une trentaine d'impulsions environ.

Pour trancher cette question, nous avons pensé effectuer une auto-corrélation non-linéaire du spectre. Cette opération nécessite un cristal doubleur de fréquence dont nous de disposions pas. Nous avons donc commencé par réaliser une autocorrélation linéaire du spectre, qui est décrite la section 6.2 suivante. Le théorème de Wiener-Khintchine prouve que l'auto-corrélation linéaire n'apprend rien de plus que le spectre de la lumière. Toutefois, en pratique, outre le bénéfice d'un entraînement en vue de l'expérience suivante (non-linéaire), l'autocorrélation linéaire nous renseigne sur la finesse des pics spectraux que nous ne pouvons pas mesurer avec une résolution inférieure à 0.1 nm, au spectromètre. Enfin je décrirai le principe de l'expérience à venir d'autocorrélation non-linéaire.

6.2 Autocorrélation linéaire

L'impossibilité de pomper avec une fréquence de beaucoup supérieure à 10Hz sous peine de dégrader très vite les composants rend cette expérience un peu délicate.

6.2.1 Description du montage

Le centre de l'expérience est un interféromètre de Michelson. Nous avons utilisé un michelson d'études du département de physique fabriqué par la marque SOPRA. Le chariotage du miroir en translation est assuré par un moteur à courant continu, tournant à une vitesse d'un tour en six minutes. La régularité de ce moteur est trop incertaine pour permettre l'enregistrement d'un interférogramme précis. Toutefois, l'allure de l'interférogramme acquis nous renseigne déjà sur le spectre de la lumière émise par le microlaser, et s'avère superposable avec l'interférogramme calculé, comme on le verra dans la section "Résultats".

La figure 6.2 schématise le montage expérimental. L'échantillon est positionné sur le Scanner à Angle Solide. Il s'agit d'un échantillon Fabry-Pérot dont le grand côté est tourné verticalement de sorte que l'émission a lieu horizontalement, et est centrée à environ 20° du plan de l'échantillon comme on l'a vu au chapitre 3.2. Une lentille de grand diamètre collecte l'émission issue du microlaser et la dirige vers l'interféromètre de Michelson. La focalisation de la lumière est faite en sortie du Michelson sur une photo-diode en silicium Thorlabs DET 10A.

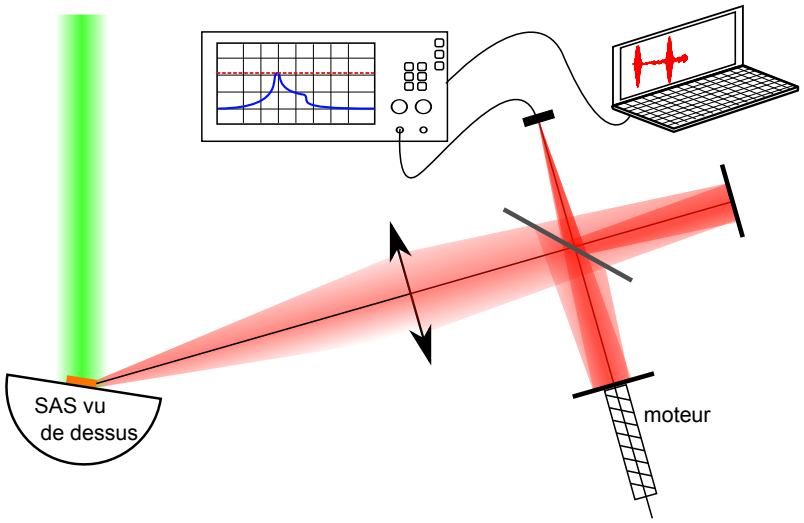


Figure 6.2 – Montage auto-corrélateur. L'émission d'un microlaser de type Fabry-Perot est collectée et injectée dans un interféromètre de Michelson dont la différence de marche est modifiée continûment par le déplacement du miroir d'un des deux bras. L'acquisition est faite par une photodiode et l'information est traitée en temps réel par un oscilloscope et l'ordinateur.

Tandis que le moteur translate le miroir mobile à la vitesse moyenne de 500 μm toutes les 6 min, nous attendons, pour l'interférogramme d'une source centrée à $\lambda = 605$ nm, des oscillations de période λ en différence de marche, c'est-à-dire, en temps réel, de période 216 ms. Pour acquérir un tel signal, l'échantillonnage doit comprendre au moins 4 points par période, donc on doit pomper le microlaser avec un taux de répétition au moins égal à 18Hz, ce qui m'a conduit à utiliser un taux de 20Hz.

À chaque impulsion de pompe, le signal de la photodiode est acquis par un oscilloscope Agilent DSO 5012. Le voltage maximum de la réponse de la photodiode est pris comme mesure-image de l'interférogramme, puis transmis à l'ordinateur. L'interfaçage est réalisé par le programme Labview. Un tel procédé est nécessaire, car même avec cet oscilloscope à forte profondeur de mémoire (1M-points) et une grande fréquence d'échantillonage (2G-points par seconde), il est impossible d'avoir la résolution nécessaire pour détecter précisément le maximum de la tension de la photodiode, et ce durant toute la durée de l'expérience qui est d'environ 40 minutes.

6.2.2 Résultats

L'interférogramme ainsi reconstruit est présenté en figure 6.3. Au cours de l'acquisition, le niveau de l'émission a chuté sensiblement. J'ai essayé de compenser cela en soustrayant aux données brutes de la figure 6.3-a une moyenne glissante. Le résultat est donné en figure 6.3-b. Il est superposé avec la transformée de Fourier d'un spectre acquis au spectromètre comme d'habitude. L'accord

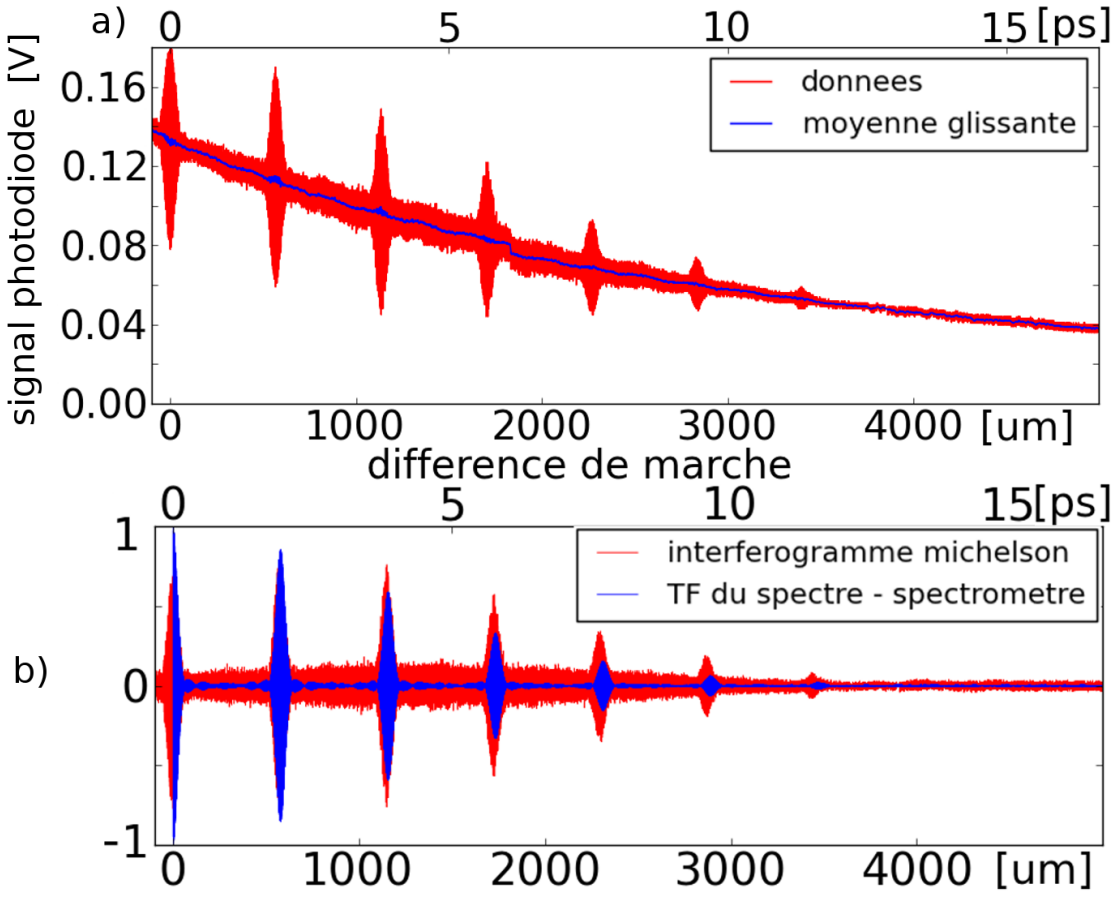


Figure 6.3 – Autocorrélation de la lumière émise par un microlaser de type Fabry-Pérot de largeur 160 μm. a– données expérimentales brutes montrant à la fois la dégradation du microlaser, et les interférences dépendant de la différence de marche optique. b– interférogramme après soustraction d'une moyenne glissante et renormalisation. Est superposée en bleu la partie réelle de la transformée de Fourier du spectre.

est globalement bon, ce qui n'est rien d'autre qu'une démonstration supplémentaire – si besoin en était – de la validité du théorème de Wiener-Khintchine. La mauvaise régularité du moteur introduit toutefois un bruit de phase important qui rend la transformée inverse de l'interférogramme inexploitable.

L'information importante est le nombre de pics visibles dans l'interférogramme, qui est le même par les deux méthodes. Ceci n'était pas forcément attendu, même en appliquant le théorème de Wiener-Khintchine. En effet, la résolution du spectromètre étant de 0.1nm d'après le constructeur, largeur correspondant environ à celle des pics du spectre acquis (cf figure 6.1-a), on pouvait attendre que la largeur réelle de ces pics soit en réalité beaucoup plus faible. Cela aurait eu pour conséquence que l'interférogramme eût été composé d'un plus grand nombre de répliques. Or nous avons trouvé deux interférogrammes similaires montrant six répliques. Cela suggère que la véritable largeur des pics lasers est effectivement de l'ordre de 0.1nm, comme la limite de résolution du spectromètre à réseau.

En revanche, le résultat de cette expérience est insuffisant pour conclure sur l'existence ou non d'un train d'impulsions, contrairement à ce qu'affirment certains articles [102], car une somme de modes totalement incohérents entre eux produit le même spectre et en conséquence le même interférogramme linéaire. Il faut avoir recours à l'autocorrélation non-linéaire pour se prononcer.

6.3 Autocorrélation non-linaire

L'autocorrélation est une opération sur le signal optique $E(t)$ de la forme

$$S(\tau) = \int \mathcal{A}\left[E(t) + E(t+\tau)\right] dt\,. \tag{6.5}$$

Pour l'aucorrélation linéaire, le signal utilisé est l'intensité lumineuse vue à travers une photodiode soit $\mathcal{A}[\epsilon] = \epsilon^2$. Cela ne donne toutefois pas accès à plus d'informations que n'en contient le spectre de $E(t)$. Pour cela, il faut utiliser une autre forme de signal détecté. Dans un cristal non-linéaire doubleur en fréquence, un signal optique $\mathcal{E}_s^{(2\omega)}$ de fréquence deux fois plus élevée (seconde harmonique) est généré avec une dépendance quadratique en champ $\mathcal{E}_i^{(\omega)}$ incident sur le cristal selon la double convolution ci-dessous.

$$\mathcal{E}_s^{(2\omega)}(t) = \int\int R^{(2)}(\tau_1,\tau_2)\mathcal{E}_i^{(\omega)}(t-\tau_1)\mathcal{E}_i^{(\omega)}(t-\tau_2)d\tau_1 d\tau_2\,, \tag{6.6}$$

où $R^{(2)}$ est la réponse du cristal non-linéaire. Cette expression, scalaire, est valable car nous utilisons un cristal doubleur de type I dans lequel 2 photons en polarisation ordinaire se combinent pour former un photon de fréquence double en polarisation extraordinaire. En plaçant le cristal à la sortie d'un interféromètre de Michelson par exemple, on éclaire le cristal avec le champ $\mathcal{E}_i^{(\omega)}(t,\tau) = E(t) + E(t+\tau)$. C'est la moyenne du carré du signal doublé qui est effectivement détectée par une photodiode, soit

$$S(\tau) = \int \left|\mathcal{E}_s^{(2\omega)}(t,\tau)\right|^2 dt \tag{6.7}$$

Dans le cas simplifié d'une réponse instantanée ($R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) = \delta(\tau_1).\delta(\tau_2)$), le signal intéressant se réduit à $S(\tau) \propto \int dt I(t)I(t+\tau)$. On a donc une corrélation temporelle de l'intensité et non plus du champ. Pour le modèle du train d'impulsions, on attend toujours un signal d'autocorrélation présentant des pics séparés par $^{2\pi}/_{\tau_{rep}}$. En revanche, dans le cas de modes non-synchronisés, le signal est censé être nul. Cela signifie que le champ garde toujours sa périodicité temporelle de période τ_{rep}, intrinsèquement due à son spectre, mais qu'il ne présente pas de phénomène d'impulsion pour autant. S'il existe vraiment un train d'impulsions, le signal $S(\tau)$ prendra des valeurs différentes de sa moyenne pour des valeurs de τ centrées sur les multiples de τ_{rep}, ce qui signifie que deux impulsions arrivent en même temps dans le cristal, en ayant emprunté chacune un bras de l'interféromètre. Pour les autres valeurs de τ, il restera le signal S moyen, dû à la réponse du cristal à un seul pulse après l'autre.

À la suite d'une discussion avec Manuel Joffre, que je remercie pour cela, nous avons commandé un cristal de Béta Borate de Baryum (BBO) car c'est celui qui nous a paru le plus adapté à la génération de seconde harmonique à des longueurs d'ondes autour de 605 nm. Le logiciel libre SNLO permet de calculer l'angle d'accord de phase, pour la longueur d'onde désirée. Ce logiciel tient compte de la dispersion et de l'anisotropie dans le cristal. La société Altechna propose une coupe sur mesure d'un cristal obtenu par croissance CVD. Avec une largeur de 2mm et une coupe à 39,7°, l'efficacité de conversion calculée par SNLO est de l'ordre de 10^{-4}. En partant d'un microlaser pompé fortement, fournissant une puissance de lumière rouge de 10 pJ par impulsion de pompe, on peut espérer environ 1500 photons à 300 nm, ce qui peut être détecté par un photo-multiplicateur. Cependant, la réalisation expérimentale risque de poser des difficultés car il n'y a pas une énorme marge de manœuvre.

6.4 Discussion

Il est aussi possible que les modes ne soient pas du tout synchronisés. Un phénomène que je n'ai pas encore évoqué est la variation du spectre émis par un microlaser pompé avec la durée de l'impulsion de pompe. En effet, tous les résultats présentés ici ont été acquis dans les conditions de pompage par le laser "Teamphotonics" qui fournit des impulsions de durée d'environ 500 ps. Le spectre typique d'un Fabry-Perot de 150 μm de largeur comprend alors une vingtaine de pics. Nous avons une deuxième source laser (EKSPLA, Nd-YAG pompé par lampe flash) qui fournit des pulses de durée 40 ps. Avec cette source de pompage, le spectre typique de la même cavité pompée avec la même énergie est beaucoup plus large avec environ 40 pics. Ceci, à la lumière de travaux sur la spectroscopie intra-cavité [103] (merci à Nathalie Picqué pour cette référence), irait dans le sens de modes indépendants. La compétition aurait d'autant moins le temps d'opérer que l'impulsion de pompe est courte. Une expérience-test de cette hypothèse serait d'allonger encore la longueur de l'impulsion de pompe. On devrait tendre ainsi vers un laser mono-mode. Il faudra au préalable vérifier que, du point de vue de la molécule, on n'atteigne pas des durées prohibitives susceptibles de placer une grande part des molécules dans l'état triplet.

Deuxième partie

3D

Il est assez délicat en général dans l'expérience des microlasers planaires, de décider si un effet doit pouvoir s'expliquer, ou non, dans le cadre du modèle quasi-2D de l'indice effectif. Nous sommes souvent confrontés à des différences sensibles entre les effets observés et les prédictions théoriques basées sur les calculs de résonances à 2 dimensions. Dans ces cas, la remise en cause de l'approximation de l'indice effectif est toujours une possibilité. En effet, la distribution du champ électromagnétique près des bords de la micro-cavité n'est pas aussi clairement définie que loin des bords, où il est bien confiné selon les équations 1.5.

Nous avons donc cherché une situation combinant l'existence d'orbites périodiques, le confinement éventuel par réflexions totales internes, et la propagation de type classique (et non pas de type propagation guidée) dans les trois directions de l'espace.

Ceci nous a menés à l'étude de micro-résonateurs non plus planaires mais ayant une forme 3D. Le cube est la première forme qui nous est venue à l'esprit. D'autres groupes se seraient tournés vers les formes sphériques ou à symétries de révolutions comme des sphères ou des tores [11, 104]. Il est vrai que ce type de résonateurs a été longtemps étudié car ils permettent, pour un coût technologique faible, d'atteindre de très grands facteurs de qualité des résonances. Mais les modes de galeries, qui sont à l'origine des bonnes résonances, ont une structure 2D plus que 3D, et sont très sensibles aux défauts de fabrications. De plus l'isotropie de leur émission les rend peu propices à des applications comme composants intégrés.

En outre le cube a la particularité d'avoir des coins, ce qui est intéressant, car, à la fois, le coin de cube est un grand classique de la boîte à outil de l'opticien, et de nombreuses questions restent ouvertes sur le sujet du coin de cube diélectrique, comme on l'a déjà vu avec les microlasers planaires carrés. Nous avons donc cherché à construire des modes lasers le long d'une orbite totalement réfléchie par un coin diélectrique. Le cube est une forme typiquement favorable à cela, bien que ce ne soit pas la seule. Il existe aussi le tétraèdre à sommet cubique mais, comme je vais le montrer au long de cette partie, fabriquer un telle forme est un défi technologique autrement plus compliqué que de construire un cube, ce qui n'est déjà pas trivial.

La plus grande partie de la partie II concerne la fabrication de pavés à base carrée, qui est l'une des seules formes que nous aurons vraiment fabriquées (avec les cylindres à base rectangulaire ou circulaire). Nous avons essayé plusieurs pistes dont certaines se sont avérées plus fructueuses à court terme. Deux grandes familles de techniques de fabrication se dessinent. La première utilise les procédés lithographiques traditionnels de la salle blanche de Cachan. La deuxième est la micro-nano-fabrication par photo-polymérisation à deux photons. Très en vogue ces dernières années de par l'apparition sur le marché des premiers systèmes clefs en main, elle permet de fabriquer a priori en totale liberté n'importe quelle forme géométrique avec une résolution de 100nm. On peut y voir la préfiguration, à l'échelle submicronique, de la vague actuelle de la fabrication additive, aussi appelée *prototypage rapide*. Enfin le dernier chapitre présente deux systèmes différents, basés sur le concept des fibres optiques, que nous avons eu l'occasion d'étudier à travers deux collaborations avec les groupes respectifs du Pr. Narayan au JNCASR de Bengalore et de Nicolas Joly du MPL de Erlangen. Enfin, je conclus sur un bilan confrontant nos réalisations effectives avec les objectifs initiaux.

Chapitre 7

Microlasers cubiques réalisés par lithographie UV

Ce chapitre décrit une technologie que nous avons mise en œuvre dans le but de fabriquer des structures cubiques en matériau polymère contenant un colorant laser. Ce but a été atteint grâce plusieurs contributions, dont celles de Joseph Lautru, Séverin Charpignon et Nina Sobeshchuck. Cette étude a fait l'objet de nombreux tâtonnements très coûteux en temps, mais sans doute nécessaires en vue d'un meilleur contrôle des structures fabriquées.

Deux familles de techniques très différentes ont été testées. La première est une évolution de la technique de lithographie UV, aussi utilisée pour les cavités planaires avant que la lithographie par faisceau électronique ne devienne facilement accessible. Cette technique donne accès à toutes les formes cylindriques de bases arbitraires comme au chapitre 2.2.2. Cependant, toute forme autre que cylindrique est bannie. La seconde méthode est très différente et sera présentée au chapitre 8. Il s'agit toujours d'une fabrication photo-assistée mais réalisée point par point à partir d'un monomère photo-polymérisable à deux photons. L'exposition se fait à travers un objectif de microscope en synchronisation avec le déplacement du faisceau par rapport à l'échantillon. Plus difficile à mettre en œuvre sur les plans chimique et optique, cette méthode doit permettre théoriquement la fabrication de n'importe quelle forme tri-dimensionnelle, y compris des formes autres que cylindriques.

Dans le deux cas, nous sommes partis de techniques éprouvées, certaines existant sous formes de systèmes clef en main dédiés à la fabrication de micro-structures pour la photonique. L'un des défis, outre la mise en œuvre de ces techniques parfois délicates, a été le dopage des matériaux. En effet, l'introduction du colorant n'est pas a priori compatible avec la physicochimie mise en jeu dans les processus de fabrication. Le greffage chimique des molécules de colorant a été envisagé avec l'aide des collègues chimistes Gilles Clavier et Rachel Méallet-Renault, et grâce à l'arrivée dans notre équipe de Nina Sobeshchuck, elle-même physico-chimiste. Pour le contrôle de la validité et de la qualité de nos fabrications, nous avons pu utiliser le microscope électronique à balayage(MEB) de l'Institut d'Alembert. L'utilisation du MEB nécessite au préalable une métallisation à l'or des

échantillons, réalisée dans un bâti de pulvérisation cathodique dans la salle blanche de l'IDA. Cela ne dégrade en rien nos échantillons qui peuvent être réutilisés après la prise d'images et le développement de l'or dans une solution de KI.

Au préalable, je dresse une brève étude de certains modes propres "3D" que nous sommes susceptibles d'exciter dans un microlaser cubique. Ces modes propres, comme dans les études à 2D sur les cavités planaires, sont des modes superscars, supportés par une orbite périodique particulière dite "*orbite chaise*", mais cette orbite est ici complètement 3D, c'est à dire qu'elle n'est pas contenue dans un plan.

7.1 Orbites dans un cube

Il est difficile de trouver des orbites dans des billards 3D, sauf dans des formes simples comme le cube. Pour ce dernier, comme pour les autres autres formes cylindriques, il existe des orbites planes mais aussi des orbites *vraiment 3D*, que l'on obtient facilement à partir des orbites 2D existant dans le contour de la base du cylindre. Au niveau de la formule de trace, quasiment tout reste à faire d'un point de vue formel. Les fonctions de Green sont toutefois plus simples $\left(\frac{e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}}{r}\right)$ qu'en 2D, où il faut faire appel aux fonctions de Hankel. Dans la formule de trace , il faudra prendre en compte le fait que la polarisation doit être conservée après un tour.

De manière équivalente au cas du carré, toutes les orbites périodiques existant dans un billard cubique peuvent être identifiées sans difficulté particulière. Quelques orbites, parmi les plus courtes et ayant le moins de réflexions, sont faciles à se représenter. Un cube peut par exemple supporter les orbites du carré, coplanaires à une surface parallèle à une face du cube. Il existe 3 configurations différentes pour cela. Dans ce cadre, l'orbite losange vient naturellement à l'esprit, et tout ce qui a été dit au sujet des carrés reste valable, en particulier quant à la possibilité d'observer, plutôt que des losanges, des pseudo-losanges (cf chapitre 4).

Il peut aussi exister des orbites *vraiment 3D*, c'est à dire supportées par les six faces, avec une et une seule réflexion sur chacune d'entre elles. Cela est facile à montrer, ce qui est fait dans la suite pour une de ces orbites. Pourtant une difficulté intrinsèque au caractère 3D apparaît lorsqu'on s'intéresse à la polarisation d'une onde plane se propageant suivant la trajectoire de l'orbite. En effet, les réflexions totales entraînent des déphasages d'une polarisation par rapport à l'autre pour chaque réflexion. Une approche, adoptée dans [105] dans le cadre de résonateurs métalliques, est de partir d'une polarisation linéaire arbitraire pour une onde plane et de la comparer avec la polarisation de la même onde plane après une boucle suivant l'orbite périodique. Le produit scalaire de ces deux polarisations donne une quantité qui est une sorte de poids pour cette orbite dans cette polarisation.

Cependant, pour pouvoir parler d'un mode propre, une condition nouvelle intervient : le nécessité que le champ, après un tour d'orbite, re-boucle non seulement en phase, mais aussi avec une polarisation identique à son état de départ.

L'*orbite chaise*, décrite ci-après, se réfléchit exactement une fois sur chacune des six faces du cube et est en famille avec trois des quatre grandes diagonales du cube. Un exemple particulier

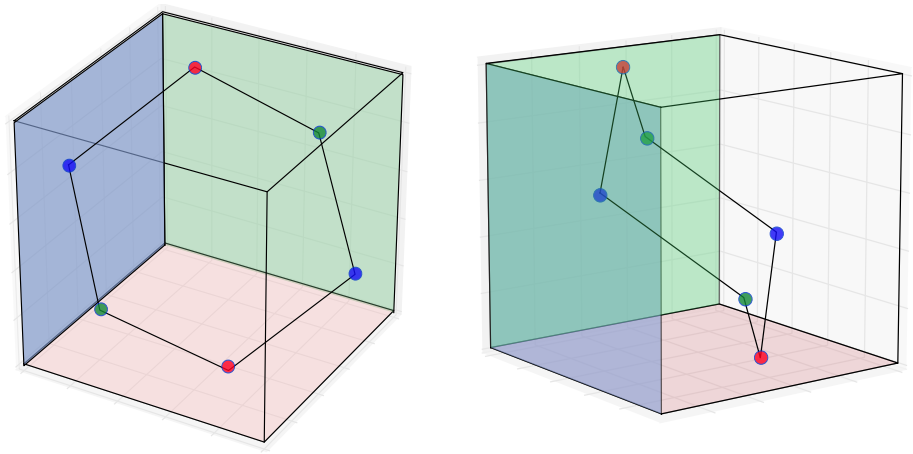


Figure 7.1 – Orbite chaise dans un cube. Cette orbite périodique se réfléchit une et une seule fois sur chacune des six faces du cube

de cette famille est tracé sur la figure 7.1. Dans cet exemple, tous les segments entre les réflexions ont la même grandeur. C'est l'équivalent 3D de l'orbite losange 2D qui joint les milieux des quatre segments. L'enchaînement des points de réflexion est

$$\begin{pmatrix} 0 \\ 1/3 \\ 2/3 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 1/3 \\ 2/3 \\ 1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 2/3 \\ 1 \\ 2/3 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 1 \\ 2/3 \\ 1/3 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 2/3 & 1/3 \\ 0 & \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 1/3 \\ 0 \\ 1/3 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 0 \\ 1/3 \\ 2/3 \end{pmatrix} \tag{7.1}$$

et l'enchaînement des vecteurs directeurs de la propagation est

$$\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ -1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ -1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \tag{7.2}$$

La longueur de chacun des segments est $\frac{L}{\sqrt{3}}$. Les réflexions se font avec un angle d'incidence χ tel que $\cos\chi = \frac{1}{\sqrt{3}}$. La valeur de cet angle est 54.7°, ce qui est bien supérieur à l'angle critique de réflexion totale.

Supposons une polarisation quelconque en A, premier point de la liste 7.1. $\vec{E}_0 = \begin{pmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \\ E_{0z} \end{pmatrix}$.

Il existe une relation entre ces composantes exprimant que le vecteur $\vec{E}$ est orthogonal à la direction de propagation, colinéaire au vecteur unitaire $\vec{u}_0 = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}$, i.e. $\vec{u}_0 \cdot \vec{E}_0 = E_{0x} + E_{0y} + E_{0z} = 0$. Les coefficients de Fresnel en réflexion sont respectivement pour les polarisations parallèle et

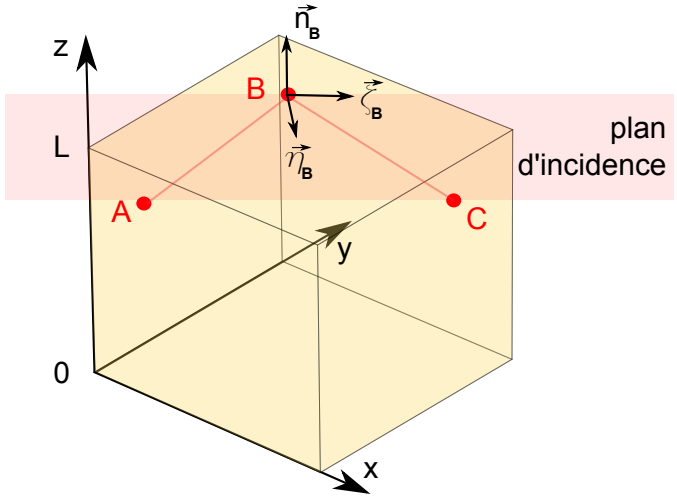


Figure 7.2 – Notation des vecteurs pertinents lors de la réflexion au point B du rayon ABC. $\vec{n}_B$ est le vecteur unitaire perpendiculaire à la surface de la réflexion ($z = L$). $\vec{n}_B$ et le segment $\vec{AB}$ définissent le plan d'incidence. ζ_B est le vecteur tangent à la surface de réflexion et dans le plan d'incidence. η_B est le vecteur perpendiculaire au plan d'incidence.

perpendiculaire au plan d'incidence $r_{/\!/} = e^{i\delta_{/\!/}}$ et $r_\perp = e^{i\delta_\perp}$. Les coefficients de module 1 expriment la réflexion totale, tandis que leurs arguments expriment le retard de phase engendré par la réflexion totale. Ils sont donnés [106] par

$$\delta_{/\!/} = -\pi - 2\arctan\left(n^2 \tan\chi \sqrt{1 - \frac{1}{n^2 \sin^2\chi}}\right) = -5.2862 \qquad = -302.9^\circ\,, \tag{7.3}$$

$$\delta_\perp = -2\arctan\left(\tan\chi \sqrt{1 - \frac{1}{n^2 \sin^2\chi}}\right) = -1.36944 \qquad = -78.5^\circ\,. \tag{7.4}$$

Dans le cadre de la convention que nous avons choisie depuis le début, selon laquelle les fonctions d'ondes sont de la forme $\exp(-i\omega t)$, un déphasage négatif comme le sont $\delta_{/\!/}$ et $\delta_\perp$ correspond à une avance de phase. À chaque réflexion la polarisation parallèle prend donc une avance de phase de $\delta_{/\!/} - \delta_\perp = 1.25\pi$.

En partant du point $A = \begin{pmatrix} 0 \\ L/3 \\ 2L/3 \end{pmatrix}$ avec une polarisation initiale notée $\vec{E}_0$, et après une propagation sur le trajet AB de longueur $\frac{L}{\sqrt{3}}$, le champ a gagné un facteur de phase $e^{\frac{inkL}{\sqrt{3}}}$. Puis la réflexion a lieu au point $B = \begin{pmatrix} L/3 \\ 2L/3 \\ L \end{pmatrix}$ sur la surface $z = L$ de vecteur normal $\vec{n}_B = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ (cf

figure 7.2). Le plan d'incidence (ABC) a pour vecteur normal $\vec{\eta}_B = {}^1/\sqrt{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$ et pour vecteur tangent $\vec{\zeta}_B = {}^1/\sqrt{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$. Le champ se compose donc d'un champ tangent et d'un champ normal au plan d'incidence :

$$\vec{E}_{B-} = e^{\frac{inkL}{\sqrt{3}}} \vec{E}_0 \tag{7.5}$$

$$= e^{\frac{inkL}{\sqrt{3}}} \left\{ (\vec{E}_0.\vec{\zeta}_B)\vec{\zeta}_B + (\vec{E}_0.\vec{n}_B)\vec{n}_B + (\vec{E}_0.\vec{\eta}_B)\vec{\eta}_B \right\} \tag{7.6}$$

$$\vec{E}_{B+} = e^{\frac{inkL}{\sqrt{3}}} \left\{ (\vec{E}_0.\vec{\zeta}_B)\vec{\zeta}_B e^{i\delta_{/\!/}} - (\vec{E}_0.\vec{n}_B)\vec{n}_B e^{i\delta_{/\!/}} + (\vec{E}_0.\vec{\eta}_B)\vec{\eta}_B e^{i\delta_\perp} \right\} \tag{7.7}$$

$$= e^{\frac{inkL}{\sqrt{3}}} \left\{ \frac{e^{i\delta_{/\!/}}}{2} \begin{pmatrix} E_{0x} + E_{0y} \\ E_{0x} + E_{0y} \\ 0 \end{pmatrix} - e^{i\delta_{/\!/}} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ E_{0z} \end{pmatrix} + \frac{e^{i\delta_\perp}}{2} \begin{pmatrix} E_{0x} - E_{0y} \\ -E_{0x} + E_{0y} \\ 0 \end{pmatrix} \right\} \tag{7.8}$$

$$= e^{\frac{inkL}{\sqrt{3}}} \begin{pmatrix} E_{0x} \frac{e^{i\delta_{/\!/}} + e^{i\delta_\perp}}{2} + E_{0y} \frac{e^{i\delta_{/\!/}} - e^{i\delta_\perp}}{2} \\ E_{0x} \frac{e^{i\delta_{/\!/}} - e^{i\delta_\perp}}{2} + E_{0y} \frac{e^{i\delta_{/\!/}} + e^{i\delta_\perp}}{2} \\ -E_{0z} e^{i\delta_{/\!/}} \end{pmatrix} \tag{7.9}$$

A chaque réflexion sur un point P, le champ connaît ainsi une transformation $\vec{E} \to \left\{ (\vec{E}.\vec{\zeta}_P)\vec{\zeta}_P + (\vec{E}.\vec{n}_P)\vec{n}_P + (\vec{E}$

Après les six réflexions, la relation de passage entre $\vec{E}_0$ et $\vec{E}_1$ s'exprime par une Matrice 3x3 qui mélange les coordonnées E_x, E_y, E_y entre elles. Le calcul formel est possible avec un logiciel adapté. L'annexe C présente une feuille de calcul Mathematica résolvant le problème pour un indice optique choisi arbitrairement.

Parmi les valeurs propres de la matrice, l'une $e^{6i\delta_{/\!/}}$ correspond au vecteur propre colinéaire à $\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \vec{u}_0$ qui ne nous intéresse pas, car la polarisation est nécessairement perpendiculaire à la direction de propagation. Les deux autres vecteurs propres $\vec{v}_1$ et $\vec{v}_2$ sont orthogonaux et se décomposent simplement sur la sous-base $\{\vec{p}_1, \vec{p}_2\} = \left\{ \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{pmatrix} 1 \\ -2 \\ 1 \end{pmatrix}, \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix} \right\}$ de l'espace orthogonal à la direction de propagation :

$$\vec{v}1 = a\vec{p}_1 + ib\vec{p}_2 \quad \text{et} \tag{7.10}$$

$$\vec{v}2 = -b\vec{p}_1 + ia\vec{p}_2 \quad . \tag{7.11}$$

Les modes propres sont donc elliptiques. Leur ellipticité est $e = \arctan({}^b/_a)$ qui vaut environ 10° à n=1.5 et varie peu dans l'intervalle $[1.4, 1.7]$. Ce faible angle signifie que la polarisation est proche d'une polarisation rectiligne.

Malheureusement, l'effet laser le long de l'orbite chaise n'a pas encore été observé expérimentalement. Ceci est dû à la présence d'un substrat qui tue la réflexion totale sur une des six faces du cube. Cependnat, cette limite n'est pas absolue et il existe des voies pour y remédier (subtrat réfléchissant, mise sur piédestal, ...) qui n'ont malheureusement pas encore pu être mises en œuvre à ce jour.

7.2 Fabrication de cubes par lithographie à un photon

La réalisation de structures épaisses présentant une hauteur commensurable à la taille transversale est un cahier des charges qui correspond bien aux possibilités de la résine SU8, commercialisée par la société Microchem, par ailleurs bien connue des technologues de l'optique guidée dans les matériaux organiques. En outre, c'est un matériau couramment pratiqué dans la salle blanche de l'ENS de Cachan, par Joseph Lautru et le groupe de Chi-Thanh Nguyen par exemple. Il s'agit une résine epoxy composée de monomères en solution dans un solvant (cyclopentanone) avec un photo-acide activable par la lumière UV.

La première étape est le dépôt de la résine sur un substrat, par centrifugation et recuit. Le solvant est ainsi évaporé, laissant une couche solide à température ambiante. L'épaisseur de cette couche dépend de plusieurs paramètres. La concentration initiale de la solution en polymères détermine la viscosité de la solution, ce qui peut conduire à des épaisseurs de dépôt plus ou moins importantes. Il existe ainsi plusieurs formulations de la SU8, de concentrations variables. Il est aussi possible de s'affranchir des formulations commercialisées en ajoutant du solvant par exemple. Les formulations 2025 et 2075 permettant les couches les plus épaisses sont si visqueuses qu'il est difficile de recouvrir le substrat (généralement un quart de wafer de trois pouces de diamètre) sans gâcher une grosse quantité de résine. Pour diminuer la quantité de résine déposée, j'étale la résine à l'aide de la soufflette d'azote. En soufflant la résine progressivement du centre vers les bords, on obtient un pré-étalement assez homogène permettant d'aboutir, après la centrifugation, à une bonne planéité de la couche. Si on commence la rotation à partir d'une couche insuffisamment lisse, les irrégularités restent présentes après la centrifugation.

On peut aussi ajuster l'épaisseur en faisant varier les paramètres de rotation (durée, vitesse et accélération du plateau tournant), les épaisseurs ainsi obtenues pouvant atteindre 100 μm sans difficulté particulière. Le recuit sur plaque chauffante s'avère long. Alors que le vendeur Microchem spécifie 10 minutes à 95° C, nous avons eu besoin de recuire 1h afin d'évaporer complètement le solvant. La couche est alors solide, ce qui est nécessaire car le masque de quartz vient par la suite au contact de la couche. Si elle est liquide, le masque se salit et la structure est déformée lors du retrait du masque. Il se pourrait que la température de l'échantillon sur la plaque chauffante soit sensiblement inférieure à celle de la plaque elle-même.

L'exposition aux UV se fait sur un aligneur MJB3 ou MJB4 de marque Süss-Microtec. Cet outil permet, grâce à un sytème d'imagerie, de sélectionner précisément la zone à exposer ce qui permet d'éviter des zones à problèmes (poussières, hétérogénéités apparentes, ...) si la couche déposée n'est pas parfaite. On vient ensuite accoler un masque opaque directement sur la couche de SU8

précédemment déposée. Le contact entre le masque et la couche de SU8 se règle à l'œil pour le MJB3 ; il est assisté par un capteur de pression sur le MJB4 qui est un modèle plus récent. Le masque est constitué d'une plaque de quartz (un verre normal, étant opaque aux UV, n'est pas adapté), sur laquelle est "imprimé", en chrome, un motif qui va être répliqué dans la résine par la suite. L'exposition dure quelques dizaines de secondes, la lampe UV fournissant une puissance au niveau du masque de 8.5 mW/cm^2 et 18 mW/cm^2 respectivement pour le MJB3 et le MJB4. De plus, la lampe du MJB4 est filtrée spectralement. Les longueurs d'onde inférieures à 365 nm sont coupées, car elles correspondent à une grande absorption de la SU8 et les couches inférieures ne sont alors pas exposées à ces longueurs d'ondes. Nous avons noté des progrès immédiats et spectaculaires en passant du MJB3 au MJB4. Lors de cette étape dans la résine exposée, un acide est libéré par une réaction photo-activée. Lors de l'étape suivante d'un recuit de quelques minutes sur deux plaques chauffantes successivement à 65°C et 95° C, une réaction de polymérisation s'effectue dans les zones où l'acide est présent, c'est-à-dire dans les zones qui ont été exposées précédemment. Après refroidissement, l'échantillon est plongé dans une solution de développeur SU8 commercialisée également par Microchem. Le développement dure quelques minutes, puis l'échantillon est rincé à l'isopropanol. À ce moment, si le développement n'a pas duré assez longtemps et s'il reste de la résine non polymérisée, un précipité blanc apparaît au contact de l'isopropanol. Il faut donc replonger l'échantillon dans le développeur quelques secondes de plus, puis le rincer à nouveau. Enfin, l'échantillon est séché sous flux d'azote. Il est bon de préciser qu'entre chaque étape, on doit laisser reposer l'échantillon, longuement après les chauffages, et, de même, après l'exposition, pour que les espèces chimiques créées s'équilibrent et diffusent localement.

7.2.1 Introduction de colorant

Le procédé de lithographie de la SU8 fait intervenir de la chimie organique complexe. L'introduction de nouvelles espèces organiques comme les colorants, directement dans la solution, en amont de la procédure, a de forte probabilités de perturber la chimie à un étage donné et de mener à des écueils dont des exemples suivent. Les perturbations peuvent provenir de différents processus :

- Les colorants peuvent absorber les UV empêchant ainsi la réaction de libération de l'acide.
- Après l'exposition, ils peuvent être réactifs vis-à-vis d'une réaction concurrente à la réaction de polymérisation, en particulier au travers d'une réaction de Friedel-Craft, ce dont nous avons été avertis par nos collègues chimistes sus-cités.
- Ils peuvent être détruits par les UV, ce qui n'empêche pas la polymérisation mais fait obstacle à la fabrication de lasers.

La figure 7.3 montre trois vues d'un même microlaser pour lequel le colorant utilisé est le PM 597. La proportion en masse du matériau final est de 0,5%. La dissolution dans la solution initiale de SU8 2025 par agitation magnétique a pris 2h. Les paramètres de centrifugation pour le dépôt sur une lame de verre étaient les suivants : une première étape à 500 tours par minute (tpm) pendant 10 s (accélération 500 tpm/s) suivie d'une seconde étape à 1000 tpm pendant 20 s (accélération 500 tpm/s). Puis le recuit d'une durée de 9 min à 65°C puis de 16 min à 95°C. Le temps d'exposition au MJB4 est de 20 s et le deuxième recuit est fait en 2 min à 65°C et 6 min à 95°C. Le développement

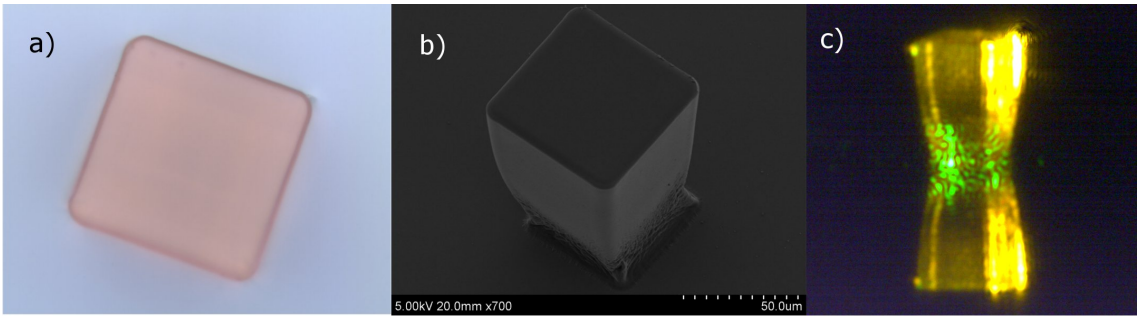


Figure 7.3 – Images d'un même microlaser parallélépipédique à base carrée en SU8 et PM597. Hauteur = 100 μm, côté 68 μm. a– photographie au microscope optique. b– photographie au microscope électronique à balayage. c– image à travers la lunette d'imagerie (cf section 2.3.2 sous pompage impulsionnel à 3.6 μJ et polarisation circulaire.

initialement de 4 min a été étendu plusieurs fois de quelques secondes afin d'être achevé. L'épaisseur du cube a été mesurée par profilométrie et présente une valeur de 100 μm. D'autres structures sur le même substrat mesurent entre 94 et 100 μm selon les cavités. La dispersion en taille provient d'une insuffisance en planéité de la couche qui présente une sur-épaisseur sur les bords due aux effets visqueux qui se résorbent vers le centre de l'échantillon. En effet, ces sur-épaisseurs sont toujours présentes lors de dépôts par centrifugation et ici la rotation est relativement lente, de façon à obtenir l'épaisseur requise, ce qui contribue à étendre la sur-épaisseur.

Il résulte du processus total une forme de cavité légèrement conique en place d'un vrai cylindre à base carrée, ce qui est visible sur les photographies 7.3-b et c. De plus, les surfaces latérales ont une qualité médiocre en particulier au plus près du substrat en verre. Ces deux symptômes sont typiques d'une sous-exposition. La sous-exposition est probablement aggravée par la présence du colorant, car les spécifications de Microchem préconisent une exposition de 13s seulement et effectivement, sans colorant, la fabrication selon le même processus mène à des cylindres de bonne qualité. Quoi qu'il en soit, ce cube fournit une lumière laser à bas seuil, bien que la complexité de sa géométrie ajoute à la difficulté du travail de recherche d'orbites. La courbe de seuil dans la direction $\varphi = 0°$ (parallèle à une face) est montrée en figure 7.4-b. Les figures 7.4-c et e montrent deux spectres obtenus de ce cube dans le plan du substrat dans les directions $\varphi = 0°$ (parallèle à une face) et $\varphi = 30°$. Leur transformée de Fourier 7.4-d et f, montre des chemins optiques respectifs de 912 μm et 305 μm. Même si l'indice à utiliser pour comparer les longueurs géométriques aux longueurs optiques n'a toujours pas été déterminé avec précision, la SU8 est un matériau dont l'indice optique est bien tabulé. Il reste toutefois que cet indice dépend dans une certaine mesure des conditions de fabrication, et que l'ajout de colorant apporte aussi une dispersion et une absorption supplémentaires. Celles-ci sont difficiles à mesurer car la viscosité de la résine empêche la fabrication de couches assez fines pour réaliser une bonne mesure par ellipsométrie. Finalement, en supposant un indice de 1.6 proche de celui de des cavités planes, on trouve que deux longueurs géométriques peuvent être reliées au pic expérimental associé au spectre 7.4-c : l'orbite losange que l'on observait

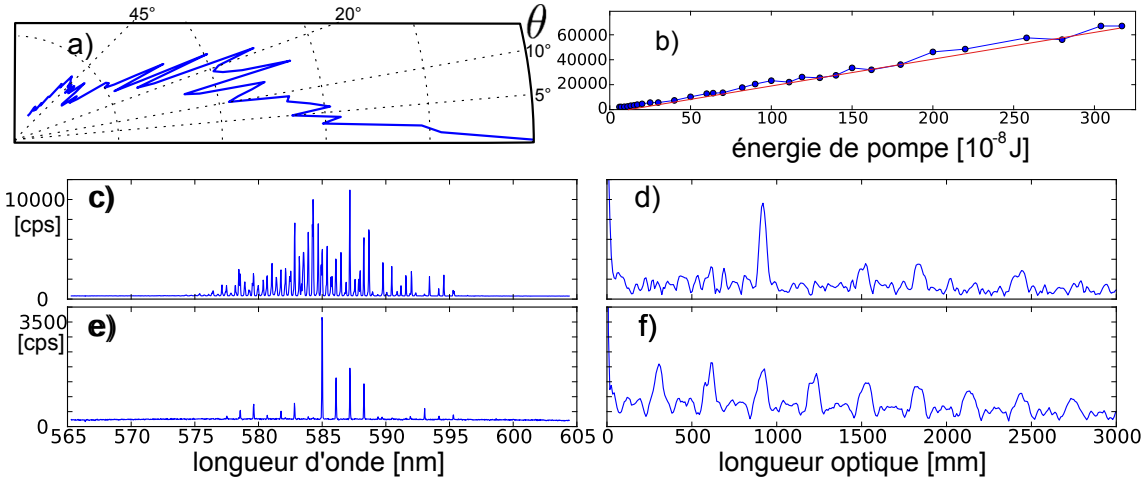


Figure 7.4 – Données expérimentales acquises pour le cube montré en figure 7.3. Polarisation circulaire. a – diagramme d'émission en latitude dans la longitude $\varphi = 0°$. b – courbe de seuil. L'abscisse est la lecture sur le puissance-mètre. Le seuil est environ à 0.1μJ ce qui correspond au niveau de l'échantillon à environ 0.6μJ par pulse de pompe, c'est-à-dire environ un ordre de grandeur en dessous du seuil pour une cavité plane Fabry-Pérot. c et d – spectre et sa transformée de Fourier dans la direction $\varphi = 0°$ parallèle à une face. La transformée de Fourier donne un chemin optique caractéristique de 912 μm $\pm$10 μm. e et f – Spectre et sa transformée de Fourier dans la direction $\varphi = 30°$. La transformée de Fourier donne un chemin optique caractéristique de 305 μm $\pm$10 μm.

dans les carrés plans (307 μm) et l'orbite Fabry-Pérot entre les faces basse et haute du cube (320 μm). Bien que l'interface polymère-silice soit peu favorable à un confinement vertical, la couche de silicium se situe seulement à 2 μm en dessous et peut naturellement jouer le rôle de miroir réflecteur, puisque le coefficient de Fresnel pour la réflexion silice/silicium en incidence normale à 600 nm vaut environ 0.5 et que la taille de la face de 68×68 μm ^{2}, grande par rapport à l'épaisseur de silice, garantit que la plus grosse partie de la lumière sortante par cette face du cube y est réinjectée. Cependant, expérimentalement, la photo 7.3-c montre que la lumière sort en incidence rasante du cube par les faces verticales, et plutôt dans la partie haute du cube, dont la fabrication est plus propre, ce qui tend à rapprocher ca cas de celui des microlasers carrés plans dont l'orbite lasante est le losange. La direction $\varphi = 0°$ (parallèle à une face) montre un spectre très différent dont la transformée de Fourier exhibe un pic à la longueur optique 912 μm dont la correspondance en termes d'orbite n'a pas encore été établie.

L'ajustement progressif des paramètres a mené à des réalisations de meilleure qualité, comme le cube montré en figure 7.5 contenant 0.5% de PM 605. Les paramètres de fabrication, définis ci-après, correspondent à un dépôt par centrifugation de SU8 2025 dopée sur une lamelle de verre. Une première étape à 500 tpm pendant 5 s (accélération 100 tpm/s) est suivie d'une seconde étape à 1000 tpm pendant 60 s (accélération 300 tpm/s). Puis vient un recuit d'une durée de 5 min à 65°C

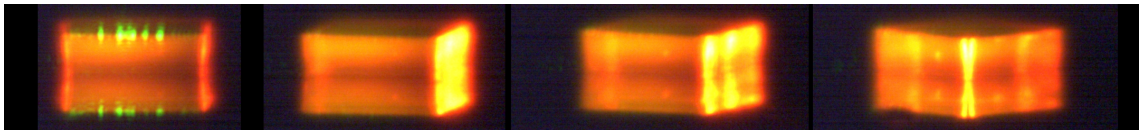


Figure 7.5 – Quatre vues d'un pavé de cotés 218x218 μm ^{2} et d'épaisseur 61 μm, fabriqué en SU8 2025 avec le colorant PM605. Prises de vue sur le montage "2D" aux angles respectifs $\varphi = 0°$, $12°$, $24°$ et $45°$. $\theta \simeq 6 - 7°$. Pompage en polarisation circulaire avec une énergie de 2.5μJ par impulsion.

et de 1 h à 95°C. Nous avons conçu un nouveau masque pour qu'il contienne une grande variété de tailles pour chaque forme, afin de pouvoir se rapprocher de la forme cubique, en choisissant une zone du masque où les motifs ont une largeur comparable à l'épaisseur de la couche à exposer. Le temps d'exposition de 150 s au MJB4 a été appliqué avant le deuxième recuit de 3 min à 65°C et 15 min à 95°C, le développement ayant pris 10 m. La qualité est nettement meilleure en ce qui concerne les parois verticales. Enfin, le seuil est plus bas que pour le cube précédent (0.21 contre 0.6 μJ par impulsion de pompe).

L'émission est nettement différente de celle d'un carré 2D fabriqué par gravure électronique, pour lequel l'émission est concentrée dans les directions parallèles aux côtés (cf chapitre 4), mais pas si différentes du cas où les coins du carré sont arrondis, comme l'a montré Nadia Djellali dans sa thèse [73]. De plus, les images 7.5 (surtout la deuxième image à une prise de vue sous $\varphi = 12°$) nous montrent que dans le cas 3D, de manière similaire au cas 2D, l'émission tend à être parallèle aux faces. Aussi, dans le cas des cavités planaires sur piédestal, pour lesquelles la gravure chimique a laissé des irrégularités, les diagrammes d'émission en longitude sont très similaires. Les irrégularités géométriques jouent contre les effets d'interférences décrits au chapitre 4.4.1, ce qui se concrétise dans le diagramme d'émission par des minima d'émission dans les directions parallèles aux bords. D'autre part, les images montrent aussi que la lumière provient des bords hauts des cubes ce qui laisse penser que l'effet laser vit surtout dans cette partie haute. Cela signifierait que le mauvais confinement au niveau de l'interface avec le verre tuerait un véritable effet 3D dans ces microlasers. Passer sur substrat en Silice, ou même en silicium, serait dans ce cas favorable, mais ce changement, simple en pratique, n'a pas encore été réalisé.

7.3 Fabrication en Bisphénol

Le groupe d'Igor Denisyuk (ITMO, Saint-Petersbourg) maîtrise un savoir-faire très développé dans la synthèse et les applications de monomères pour la lithographie épaisse. L'ajout de nanoparticules de ZnO dans la solution contenant les monomères, comme par exemple le Bisphenol A glycerolate (BisA), crée un effet d'auto-collimation durant l'exposition permettant une polymérisation "dirigée". Une application visée est la fabrication lithographique de fibres optiques. Cette méthode apparaît bien adaptée à la fabrication de structures épaisses par lithographie, à travers un masque, avec des faces verticales perpendiculaires au substrat et bien lisses.

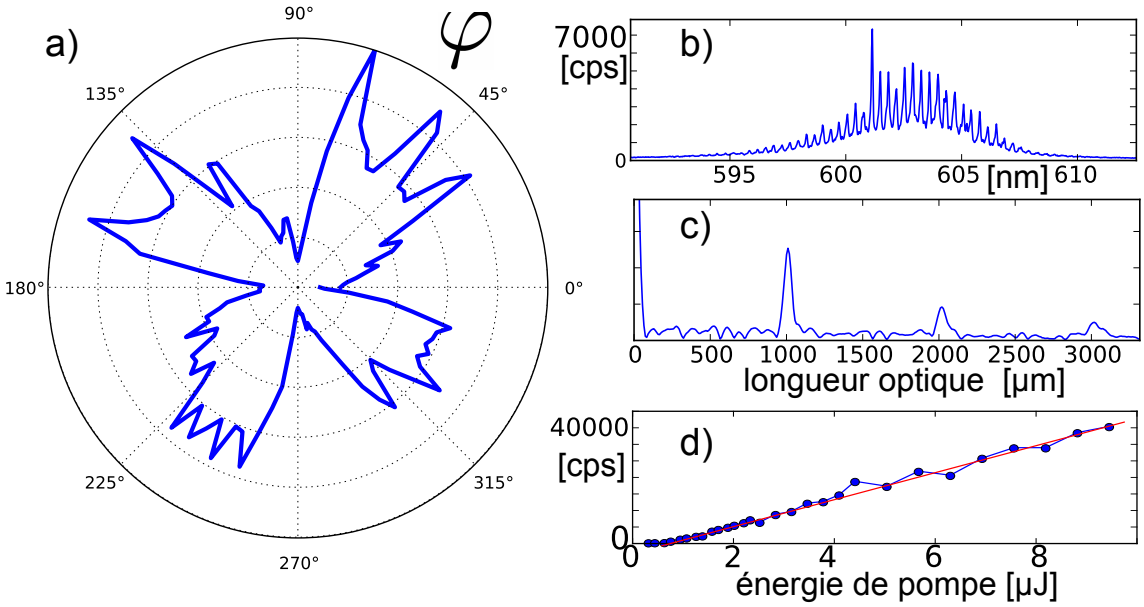


Figure 7.6 – Données expérimentales acquises sur le montage "2D" pour le microlaser de la figure 7.5. a – diagramme d'émission en longitude ($\theta = 90°$). b – spectre typique acquis sous pompage en polarisation circulaire avec une énergie de 2.5μJ par impulsion. c – sa transformée de Fourier montrant un pic à une longueur de chemin optique de 1,01 mm. d – courbe de seuil (seuil à 0.21μJ par impulsion au niveau de l'échantillon).

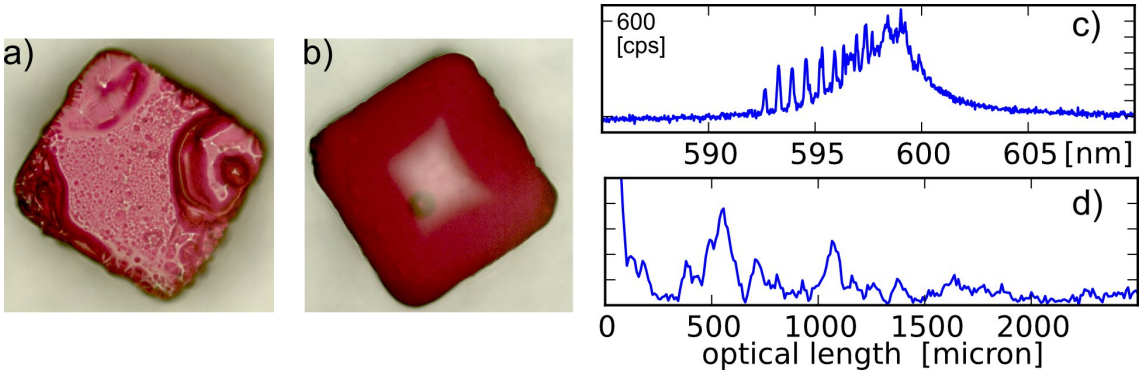


Figure 7.7 – Cubes de la première série en Bisphénol A et rhodamine. a– cube A2, fabriqué face imprimée contre la résine. 142x135x100 μm^3 b– cube C1, fabriqué face imprimée dos à la résine. 129x139x115 μm^3 c– spectre du microlaser A2 en pompage à 2.76 μJ par impulsion de pompe au niveau de l'échantillon et en polarisation circulaire. Détection dans la direction x ($\varphi = 0°$). d– sa transformée de Fourier

7.3.1 Première série de cubes en Bisphénol A et Rhodamine

Le groupe de Saint-Pétersbourg nous a tout d'abord fourni des échantillons contenant de la Rodhamine, mais sans particules de ZnO, car la chimie des colorants n'est pas facilement compatible avec ces composés. Puis, lors du stage dans ce groupe de Georges Taverne, étudiant en master de l'ENS de Cachan, ils ont aussi utilisé du DCM comme colorant. La technique de fabrication est très semblable à la nôtre, mais les temps d'exposition sont beaucoup plus longs, de l'ordre de 20 min. Ces échantillons se présentent sous la forme de lames de microscope portant chacune 6 cubes. Les masques utilisés pour l'exposition sont gravés au laser sur une résine photosensible de couleur noire. Le substrat du masque est un film plastique transparent souple, ce qui le rend fragile et difficile à nettoyer après une exposition, car la résine est liquide et visqueuse avant l'exposition. D'un autre côté, la fabrication de ce masque en interne à l'ITMO réduit ce problème. La première série d'échantillons, dopés en rhodamine, contenait 3 lamelles (numérotées A,B,C) de 6 cubes chacune (numérotés de 1 à 6). Quelques photographies au microscope optique prises par-dessus montrent en figure 7.7 que la fabrication n'est pas évidente. En particulier, deux modes de fabrication amènent à deux résultats sensiblement différents. Lorsque le masque est appliqué contre la résine, directement du côté contenant le motif, la surface du haut des structures obtenues est très inégale et révèle des défauts de taille importante. Lorsque le masque est appliqué du côté du film ne supportant pas la résine noire, la surface est beaucoup plus lisse. Cependant, on peut attendre des défauts du fait de la diffraction et de la diffusion dans l'épaisseur de 100 μm du plastique transparent qui constitue le support du masque. Les défauts attendus présentent une forme conique et non pas le cylindre espéré, une taille légèrement supérieure à celle du masque et des coins arrondis. Finalement, les structures obtenues ont en fait une forme plus arrondie, tout en ne lasant pas systématiquement mieux.

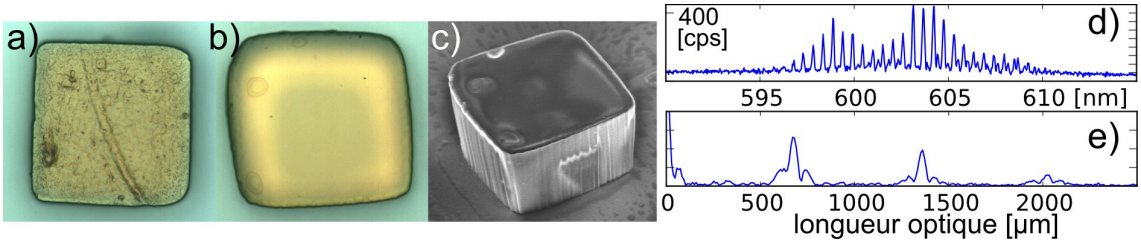


Figure 7.8 – Cubes de la deuxième série en Bisphénol A et DCM. a– cube tavA-13 , fabriqué face imprimée contre la résine. (144x140x75 μm^3) b– cube tav20-12, fabriqué face imprimée dos à la résine. (149x156x100 μm^3) c– Photographie au MEB du même cube. d– spectre du microlaser tavA-12 en pompage à 20 μJ par impulsion de pompe en polarisation circulaire. Détection dans la direction x ($\varphi = 0°$). d– sa transformée de Fourier

Un résultat typique obtenu est présenté en figure 7.7 pour le cube A2. Le spectre contient une large bande d'émission dominée par un spectre de type peigne de fréquences. Il est impossible de dire si la large bande de fluorescence est due à la fluorescence ou à une multitude de peignes trop denses pour pouvoir être séparés. Le seuil est relativement bas, de l'ordre de 1.5μJ par impulsion de pompe au niveau de l'échantillon. Un récapitulatif des résultats expérimentaux est présenté en annexe B.

7.3.2 Deuxième série de cubes en Bisphénol A et DCM

La deuxième série a été fabriquée par Georges Taverne lors de son stage à Saint-Pétersbourg, puis mise à notre disposition à Cachan. Tous les cubes sont dopés en DCM. Leur fabrication suivant les même procédés a mené à des résultats similaires au niveau de la géométrie des cubes, avec toutefois des améliorations structurelles sensibles. Cependant, sur les 11 lamelles de 6 cubes chacune, seulement 8 cubes ont lasé. Peut-être le DCM est-il moins adapté à la fabrication par lithographie UV. Nous avions remarqué à Cachan qu'il est possible qu'il soit dégradé lors de l'exposition aux UV.

Un récapitulatif des résultats expérimentaux est présenté en annexe B, mais il reste à ce stade difficile de tirer des conclusions quantitatives de ces expériences.

7.4 Fabrication en SU8 par gravure plasma

Lors du stage de Séverin Charpignon, étudiant en licence, nous avons étudié la faisabilité de cubes par une méthode physique de gravure par plasma d'Oxygène. Deux tentatives ont été faites en utilisant respectivement un masque en or et un masque en aluminium. La première technique fut un échec alors que la deuxième a donné des résultats très satisfaisants. Cette méthode s'avère toutefois longue et complexe.

La procédure, schématisée sur la figure 7.9, et réalisée dans notre salle blanche, est la suivante :

sur un substrat de silice sur silicium avec une épaisseur de silice de 2 μm, nous avons déposé une couche de SU8 épaisse (13 μm) contenant le colorant. Puis nous avons cuit cette couche pendant 4h à 120°C, ce qui est une température assez basse pour ne pas détruire les molécules de colorant, ou du moins pas en proportion importante, comme l'ont démontré des études antérieures à mon arrivée. À la suite de cette étape, la couche est complètement polymérisée. Nous déposons alors par-dessus celle-ci une couche de métal par pulvérisation cathodique pour l'or ou par évaporation pour l'argent. Dans les deux cas, l'outil utilisé est un bâti d'évaporation sous vide AUTO 306 de marque Edwards. Pour le dépôt d'or par pulvérisation cathodique, un plasma d'argon à une pression d'environ 10^{-2} mbar (vide primaire) vient pulvériser la cathode en or, la quantité ajustable étant la puissance du plasma. Pour le dépôt d'aluminium par évaporation, un vide secondaire est nécessaire (environ 10^{-6} mbar) afin de se débarrasser des traces de di-oxygène ou d'eau susceptible d'oxyder l'aluminium gazeux. La quantité ajustable est le courant de chauffage du creuset d'aluminium. Dans les deux cas, le contrôle se fait directement en vitesse de dépôt, puisque l'échantillon repose sur une balance à quartz qui donne accès en temps réel à l'épaisseur de métal déposée. Une épaisseur de 50 nm est atteinte en 10 minutes environ.

L'étape suivante consiste à structurer la couche métallique. Nous utilisons la résine photosensible S1805 (Microchem) déposée par centrifugation (20s, 2000tpm, 500tpm/s) qui, après un recuit de 2 min à 95°C, est exposée dans le MJB3 à un éclairement UV structuré par un masque pendant 6 s. Le développement de la S18 se fait par une solution du développeur Microposit 351 dilué 6 fois dans l'eau désionisée. Le motif du masque utilisé pour l'exposition est ainsi reproduit dans la S18 qui est gravée sur les zones exposées. De plus, la solution de Microposit 351 étant basique, l'aluminium sous-jacent est aussi gravé dans les zones où il n'est plus protégé par la S18. Le développement prend environ 1 min, que l'on peut prolonger de quelques secondes si l'on constate visuellement que les gravures ne sont pas suffisamment homogènes sur la surface de l'échantillon. Pour l'or, une étape supplémentaire de développement est nécessaire, de quelques secondes, dans un solution d'iodure de potassium.

Enfin, l'étape de gravure de la couche de SU8 est réalisé dans un bâti de RIE (Reactive Ion Etching). Un plasma d'oxygène d'environ 100W sous 30mTor vient bombarder l'échantillon et élimine la résine qui n'est plus protégée par les motifs en métal. Afin de ne pas chauffer trop fort l'échantillon, des étapes de gravure de 10 min au maximum sont appliquées, séparées entre elles par 15 min de refroidissement à la température ambiante. Pour l'aluminium, 6 étapes se sont avérées nécessaires. Pour les motifs en or nous n'avons pu que constater qu'ils étaient endommagés dès la deuxième étape. L'or ne subsistait que le long des contours des motifs mais avait complètement disparu au centre. Ce résultat a été imputé à des effet thermiques excessifs, ce qui a conduit à l'abandon de la gravure. Pour le masque en aluminium, la couche de SU8 dopée a été correctement gravée sur toute son épaisseur, et la protection en aluminium enlevée par une solution de soude. Les structures obtenues ont des arêtes très bien définies. Cependant, les nombreuses étapes de reproduction du motif initialement présent sur un masque à UV entraînent nécessairement une perte de la qualité géométrique transversale.

Des essais préliminaires de pompage de ces structures ont montré qu'elles émettaient bien un rayonnement laser, comme en atteste le spectre de la figure 7.10-b. Le chemin optique qui ressort

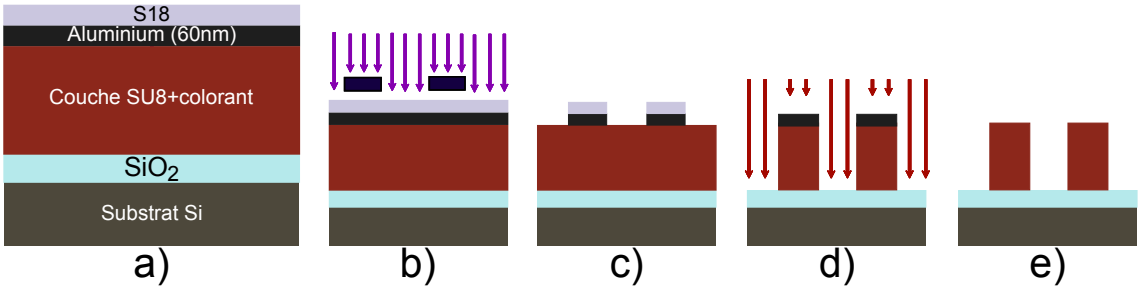


Figure 7.9 – Procédé de fabrication par gravure au plasma d'oxygène. a – description des matériaux utilisés. La SU8 est préalablement totalement polymérisée par voie thermique. b – étape d'exposition aux UV de la résine photosensible S18. c – état après exposition, développement de la S18 et gravure de la couche d'aluminium par la soude d – étape de gravure par le plasma d'oxygène. e – état final. Le motif du masque est reproduit et l'épaisseur est celle de la couche de SU8 initiale.

de la transformée de Fourier du spectre est de 320 μm, longueur qui peut être une fois de plus rapprochée à la fois du mode FP entre les deux faces horizontales ou bien de l'orbite losange dans le carré horizontal.

7.5 Autres méthodes de fabrication lithographique

Toujours lors du stage de Séverin Charpignon, des méthodes innovantes ont été explorées, permettant des progrès importants, surtout au niveau de la facilité de fabrication. Il s'agit de l'introduction du colorant par diffusion dans des structures en SU8 originellement fabriquées sans colorant, et de la fabrication par moulage, qui n'est envisageable au laboratoire que depuis la fin de l'année 2012, et qui n'a pas pu être menée à terme.

7.5.1 Introduction du colorant par diffusion

Il s'agit de fabriquer des structures ordinaires en SU8, en suivant les procédés décrits dans la notice du fournisseur, puis de plonger l'échantillon dans un solvant contenant du colorant. Le solvant pénétrant naturellement dans les structures en polymères, sans pour autant les dissoudre, entraîne le colorant avec un certain taux de diffusion, lié à la concentration dans la solution et au temps de diffusion dans la matrice polymères. En attendant suffisamment longtemps, on obtient une concentration volumique de colorant homogène dans tout le volume des structures. Un simple séchage permet ensuite d'évacuer le solvant. Il reste à vérifier que le solvant en sortant n'altère pas trop la dispersion homogène des molécules de colorant dans le volume de la structure. Le colorant reste ainsi encagé dans la structure en polymères.

En pratique, il est difficile de trouver un solvant pouvant dissoudre le colorant en quantité suffisante (nous visons 0.5%) et qui ne dissolve effectivement pas la SU8. Plusieurs tentatives utilisant divers solvants, divers colorants et divers temps de bain ont été menées. La plupart se

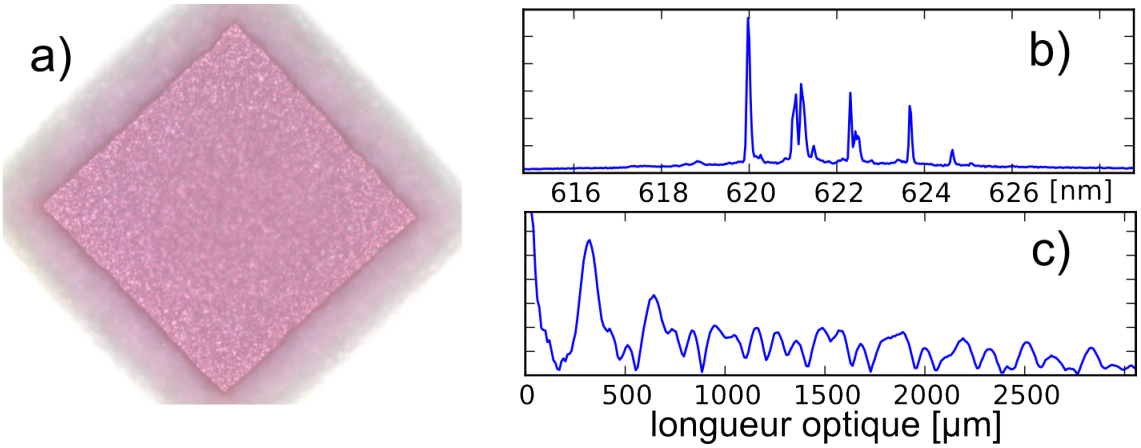


Figure 7.10 – Microlaser cubique (60x60x13 μm^3) en SU8 et rhodamine réalisé selon la méthode de gravure par plasma d'oxygène. a – photographie au microscope optique b – spectre acquis dans la direction $\varphi = 0°$ pour une puissance de pompe de 10uJ par impulsion et une polarisation circulaire. c – sa transformée de Fourier.

solde par une perte totale de toutes les structures du substrat (peut-être seulement détachées et non pas dissoutes, mais tout de même perdues), et dont certaines se sont avérées fructueuses. Le résultat montré sur la figure 7.11 a été obtenu avec le colorant DCM dissout dans de l'acétone.

Cette technique offre deux avantages principaux. Le premier est que la fabrication en SU8 sans colorant permet d'accéder facilement à des structures au rapport d'aspect et de qualité de fabrication importants. Le deuxième est la facilité de l'introduction du colorant, mais ce processus reste long et donc difficile à optimiser.

7.5.2 Fabrication par micro-moulage

Le micro-moulage consiste à introduire de la résine dans un moule, réaliser le durcissement, puis détacher la résine du moule. Chacune de ces étapes cache de nombreuses difficultés techniques, la plus importante étant peut-être l'obtention du moule. Un résumé des étapes est schématisé sur la figure 7.12. Le module *nano-imprint*, rattaché à l'appareil MJB4 de la marque Süss-Microtec, est dédié au micro-moulage de résines photo-polymérisables. En pratique pour nous, la résine est encore la SU8. Il faut donc un moule transparent aux UV. Nous avons choisi de réaliser un masque en Polydimethylsiloxane (PDMS), matériau commercialisé par Dow Corning et bien connu des équipes de l'ENS de Cachan, LPQM, Satie et PPSM travaillant sur les systèmes microfluidiques (équipes de Bruno Le Piouffle, de Thanh Nguyen, Sergii Lozenko dans notre équipe [67]). La fabrication du moule implique elle-même un moulage dont le moule est une structure en SU8 pure, de la même forme que celle que nous voulons imprimer finalement aux micro-cavités. La fabrication du moule numéro 1 en SU8 se fait par le procédé standard de lithographie de la SU8 bien adapté aux grands rapports d'aspect et à une bonne reproduction géométrique. Le kit de PDMS est composé

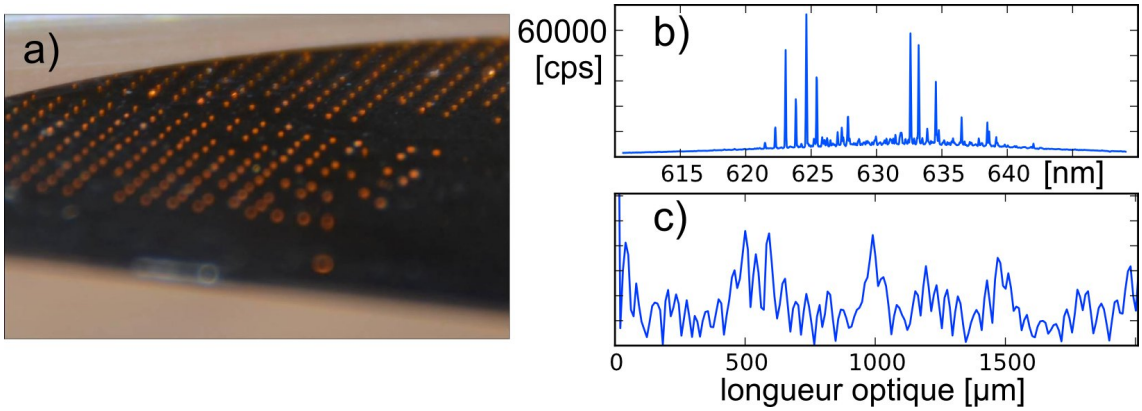


Figure 7.11 – Microlasers cubiques en SU8 et DCM réalisés par la méthode de diffusion du DCM. a – photographie d'un substrat contenant une centaine de micro-structures b – spectre acquis dans la direction $\varphi = 0°$ pour une puissance de pompe de 10uJ par impulsion et une polarisation circulaire. c – sa transformée de Fourier.

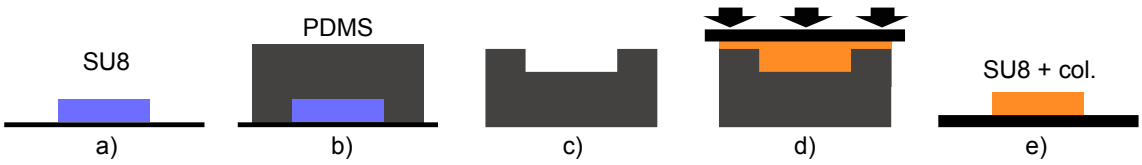


Figure 7.12 – Étapes de fabrication d'un microlaser par micro-moulage. a – moule numéro 1 en SU8 sur un substrat de silicium. b – moulage du PDMS et polymérisation thermique. c – moule numéro 2 en PDMS. d – moulage de la SU8 dopée en colorant. Une pression mécanique est appliquée afin de se débarrasser du surplus de SU8, le tout étant ensuite exposé aux UV dans le MJB4. e – Microlasers en SU8 + colorant.

de deux produits, un liquide SYLGARD 184 Silicone Elastomer (PDMS) et un durcisseur. La polymérisation s'obtient en les mélangeant dans un rapport 10 :1 en volume. Une fois le mélange effectué, la polymérisation commence lentement. À température ambiante, elle s'effectue totalement en 48h. Le moule numéro 1 en SU8 se présente comme un substrat en silicium de diamètre deux pouces portant les structures de SU8. Il est traité à la vapeur de Hexamethyldisilazane (HMDS) afin de silaniser la surface pour la rendre hydrophobe, ce qui permet le détachement du moule après durcissement. Pour ce faire, l'échantillon est simplement placé dans un récipient fermé contenant un bêcher de HDMS pendant une demi-heure. Le HDMS, volatile, vient ainsi former une couche très fine sur l'échantillon, mais néanmoins suffisante pour empêcher que le PDMS ne colle à la SU8 ou au silicium lors du démoulage. Le moule numéro 1 est enfin placé au fond d'une cuvette à peine plus grande. En pratique cette cuvette est en papier aluminium. Puis le PDMS encore liquide est versé sur le substrat et le tout est mis à l'étuve à 75°C afin d'accélérer le processus de polymérisation. Au bout de deux heures, la réaction est considérée comme achevée.

Nous avons réalisé cette étape avec succès comme en attestent les photographies de la figure 7.13. La deuxième étape est le moulage des microlasers avec comme moule la structure en PDMS précédemment obtenue. Cette étape n'a pas été réalisée à l'heure actuelle, Joseph Lautru ayant seulement entrepris à ce stade le démarrage de cette activité dans la salle blanche. Plusieurs approches sont envisageables. La première est une réalisation des microstructures en SU8 contenant le colorant, que l'on introduirait mécaniquement dans le moule en PDMS par application d'une sur-pression suivie d'une étape classique de durcissement de la SU8, par une exposition aux UV et un recuit. L'exposition sans masque (tout azimuth) a ceci d'avantageux que la forme de la construction ne dépend que de celle du moule numéro 2 et non pas de la structuration de l'éclairage, en supposant que l'on ait bien réussi à remplir le moule, ce qui n'est pas évident. Pour le succès de cette étape cruciale, nous comptons sur la propriété de porosité du PDMS. En effet, le PDMS étant poreux pour les solvants, il devrait être possible de remplir totalement le moule (en particulier les coins du fond du moule) avec la résine ainsi que d'extraire le solvant.

L'avantage de cette technique est qu'un moule, préalablement silanisé comme on l'avait fait pour le moule numéro 1, peut être réutilisé plusieurs fois. Un inconvénient évident est la réplication de défauts lors des fabrications successives du moule numéro 2 puis de la structure finale.

Bilan des réalisations par lithographie

Nous avons testé plusieurs voies dans le but de fabriquer des cubes en matériau organique dopé en colorant. Il est apparu que le dopage perturbe les procédés de fabrication qui sont bien établis sans dopage. Grâce à un travail fastidieux avec Séverin Charpignon et Nina Sobeschuck, nous avons obtenu des échantillons produisant indubitablement une émission laser. Ces méthodes sont la photo-lithographie UV avec un dopage en colorants de la famille des pyrrométhènes, l'introduction du colorant par diffusion et la gravure physique. Cependant, les deux dernières techniques citées mettent en jeu des processus longs et de ce fait difficilement optimisables. Le niveau de qualité récemment obtenu sur la géométrie des structures permet une analyse des données basée sur les

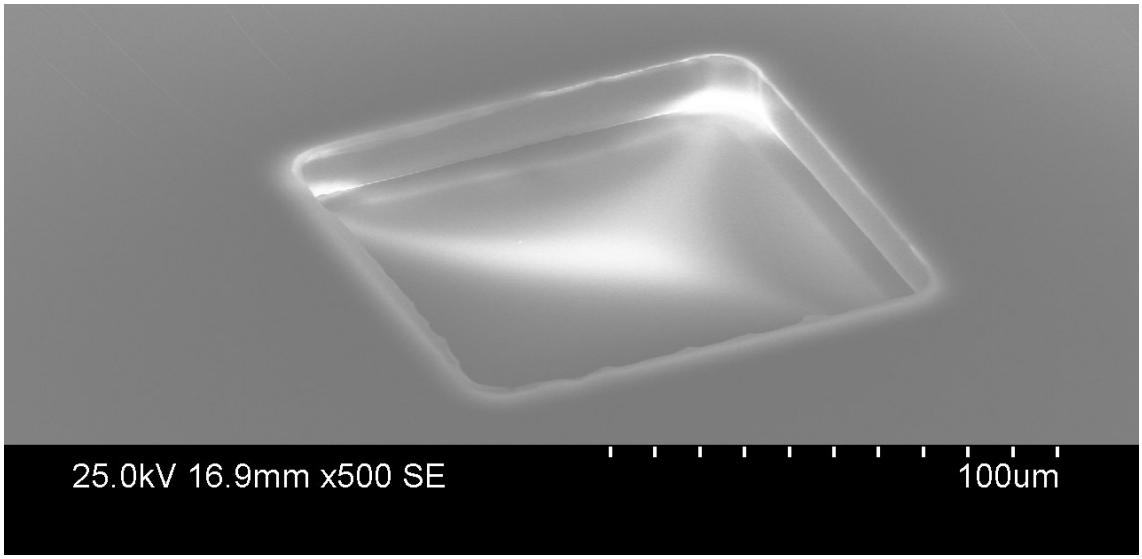


Figure 7.13 – Fabrication par micromoulage. Détail d'un moule numéro 2 en PDMS.

même principes semi-classiques que nous avons utilisés en partie 1 pour des cavités planes dans le cadre de modèle 2D.

Chapitre 8

Microlasers cubiques réalisés par polymérisation à deux photons (2PP)

Il s'agit d'une technique d'Écriture Directe au Laser (EDL) qui consiste à altérer un matériau dans un petit volume (voxel) situé autour du point focal d'un faisceau laser. En déplaçant ce point dans le volume du matériau selon les trois directions de l'espace, on crée une structure tridimensionnelle tout au long du trajet du faisceau. Dans notre cas, le matériau est une résine photo-polymérisable à deux photons (2PP), et l'altération déclenchée par le laser est la polymérisation de la résine qui passe ainsi de l'état liquide à l'état solide. Un simple rinçage permet alors d'évacuer la résine non-polymérisée. Trois difficultés sont liées à cette technique. La première concerne la chimie du photo-initiateur et la cinétique de la réaction de polymérisation. La deuxième l'éclairement qui requiert dans notre cas un laser femtoseconde à une longueur d'onde précise. La troisième concerne le balayage du faisceau laser dans la résine qui est piloté avec une précision de l'ordre de 100 nm et avec une vitesse de préférence élevée afin d'obtenir un temps de fabrication acceptable.

La 2PP a été rendue célèbre par Satoshi Kawata et son micro-taureau en 2001 [33]. La possibilité de fabriquer, avec une précision sub-longueur d'onde, des structures vraiment 3D (par opposition aux procédés de lithographie qui ne permettent que des formes cylindriques) a rapidement enthousiasmé de nombreuses communautés, dont celle des cristaux photoniques [32], celle des micro et nano-cavités, ainsi que celles des biologistes et bio-mécaniciens [107, 36]. En outre, l'ingénierie chimique du matériau, permise par ce procédé de fabrication, ouvre la voie à des variations de la fonctionnalisation à l'infini. Par ailleurs, les techniques de polymérisation en EDL ne se limitent pas à la 2PP. Mai Trang Do par exemple, du groupe de Ngoc Diep Lai, a démontré que la photo-polymérisation à un photon pouvait aboutir aux mêmes niveaux de résolution que la 2PP, en se plaçant dans un régime de faible absorption d'une résine, procédé réalisable avec un système beaucoup moins coûteux qu'un laser à impulsions courtes.

D'autres groupes travaillent sur le sujet plus précis des microlasers fabriqués par 2PP, mais

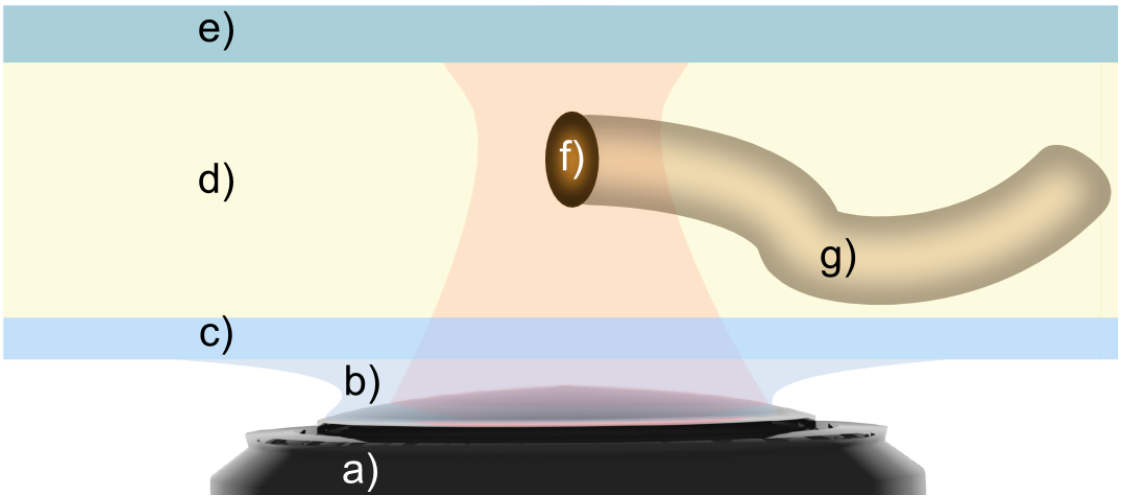


Figure 8.1 – Schéma de l'écriture directe au laser par polymérisation à deux photons. a – objectif de microscope à huile. b – huile. c – lamelle de microscope protégeant l'objectif. d – résine photo-polymérisable. e – support (lame de verre) f – voxel, plus petit volume polymérisable, au point de focalisation du faisceau. g – zone polymérisée par le passage antérieur du point focal.

ils centrent leur travail sur des microrésonateurs à modes de galleries [108, 104]. Ces derniers ont réalisé des microdisques sur piedestal dopés avec du pyrométhène 597 qui produisent une émission laser.

8.1 2PP à Cachan

L'expérience a été montée dans la salle "multi-photons", au sous-sol de l'Institut d'Alembert, avec l'aide d'Aurélia Olivier, sur un microscope inversé initialement dédié à l'imagerie multiphotonique, et doté d'un porte-échantillon sur une plateforme piézo-électrique XYZ. La table est équipée d'un laser Mai Tai femto-seconde accordable. L'institut dispose d'une salle de chimie, au rez-de-chaussée, adaptée au développement des échantillons (éclairage sans UV), et la salle blanche permet de préparer les échantillons de manière propre.

8.1.1 Échantillon et résine

Un cube réalisé par 2PP doit, pour être manipulable et utile, reposer sur un support. Nous utilisons en général des lames de verre comme support, mais tout autre support pourrait être envisagé également. Un échantillon se compose, sur la lame de verre, d'une couche de résine liquide d'épaisseur supérieure à la taille finale de la structure à fabriquer, puis d'une lamelle de verre

afin de protéger l'objectif de microscope de la résine. Afin de préserver l'épaisseur de la couche de résine, j'ai utilisé comme espaceur deux simples bouts de ruban adhésif parallèles, collés à la lame, situés à environ 4 ou 5mm l'un de l'autre. Puis une goutte de résine est déposée au milieu et la lamelle vient par-dessus étaler la goutte et donner à la résine l'épaisseur des bouts de ruban adhésif, soit environ 50 à 70 μm. Au préalable, une croix a été gravée à l'aide d'une pointe en diamant au milieu de la lame, afin de créer un repère sur la lame de verre, ceci pour deux raisons. La première est un repérage visuel de l'interface verre-résine, qui est totalement invisible si la surface est propre. La deuxième est un repérage topographique sur la lame de verre qui constitue, même en se confinant à la zone de la goutte de résine étalée, un domaine très grand comparé à une micro-structure. Chercher une seule micro-structure au microscope optique après le développement serait en effet très fastidieux en l'absence d'un tel repère. Enfin, la lamelle de verre est à nouveau scotchée à la lame, sur ses quatre bords, dans le double but d'étanchéiser complètement la zone contenant la résine, pour protéger l'objectif, et de la fixer. Ce montage est le seul que nous ayons trouvé permettant de travailler sur la surface de verre opposée à l'objectif, tout en respectant la faible distance de travail imposée par le fort grossissement de l'objectif. En effet, comme la structure doit être attachée à la lame de verre, nous choisissons de commencer la fabrication à partir d'une interface en verre afin que la structure soit à tout moment fixée au support. Cette précaution est nécessaire car la résine est liquide et on peut imaginer que la résine polymérisée, présentant un indice optique différent de la résine liquide, ait aussi une masse volumique différente, et qu'ainsi elle se mette à flotter ou à couler si elle n'était pas attachée à un support. De plus, comme l'échantillon bouge à une vitesse importante lors du balayage, et surtout avec de grandes accélérations, il est possible que l'écoulement de la résine perturbe la géométrie finale. Enfin, comme la forme du faisceau optique dépend du milieu traversé, nous n'écrivons qu'en descendant, afin de ne pas essayer de focaliser le faisceau derrière une zone contenant des modulations d'indice optique. Celles-ci, à coup sûr, perturberaient la propagation et mèneraient à une déformation du voxel, voire couperaient la polymérisation si le champ n'aavit plus l'intensité nécessaire. L'ensemble résine + lamelle doit donc avoir une épaisseur optique inférieure à la distance de travail. C'est ce qui est réalisé avec une lamelle de 100 μm et une épaisseur de résine de 50 μm.

Très peu de résine est finalement consommé, puisque la goutte déposée puis étalée est minuscule. Cette démarche est appréciable au vu du prix de la résine. Nous avons utilisé majoritairement de la résine IP-L vendue par la firme "Nanoscribe" de Karlsruhe en Allemagne, pionnière dans la commercialisation de systèmes de fabrication 2PP clefs en main. Bien que nous ne connaissions pas la composition exacte de cette résine, qui n'est pas rendue publique, nous savons qu'elle contient principalement des monomères de type acrylate, comme pour la résine utilisée à Atlanta décrite en section 8.2. Le composant-clef pour que la résine soit active en 2PP est l'initiateur photo-activable à deux photons. Il doit être assez sensible pour qu'une écriture rapide soit possible. La solution contient naturellement des molécules d'oxygène qui jouent le rôle de désactivateur, empêchant que la réaction ne se propage, ce qui serait dommageable pour la résolution.

Le développement s'effectue dans deux bains d'éthanol et un bain d'isopropanol, dans une pièce isolée des UV. Le premier bain permet en outre de détacher facilement les différentes couches de ruban adhésif. Le retrait de la lamelle doit être réalisé délicatement, en s'aidant de la diffusion

du solvant (l'éthanol) en-dessous, car la résine visqueuse entraîne les structures si l'écoulement environnant est trop fort. En quelque secondes la résine est dissoute, le dernier bain facilitant le séchage ultérieur car l'isopropanol est plus volatile que l'éthanol.

8.1.2 Montage optique

Le montage optique suit le schéma de base, du moins du côté excitation, d'un microscope confocal en imagerie par fluorescence à deux photons ou génération de seconde harmonique [109]. Le faisceau laser est fourni par un laser Titane-Saphir (Mai Tai) accordé sur 780 nm. Il fournit un train d'impulsions de longueur 100 fs à un taux de répétition de 80 MHz. La puissance de sortie est ajustée au maximum à 20 mW. Le faisceau gaussien est collimaté et aligné sur l'axe optique de l'objectif de microscope. De plus, il est élargi afin que sa largeur soit d'environ 5 mm, soit plus que le rayon de la pupille d'entrée de l'objectif de microscope qui vaut 3 mm. Ainsi, l'image dans le plan focal du microscope correspond à la tâche d'Airy de diamètre $\frac{1.22\lambda}{\mathrm{ON}}$, fonction réponse de l'objectif de microscope(PSF). L'alignement est réalisé par deux miroirs ajustables. Un filtre dichroïque permet d'exciter en infrarouge par réflexion, et de récupérer par transmission une image du plan focal en contraste de phase sur une caméra CCD. L'éclairage nécessaire est fourni par une simple LED située au dessus de l'échantillon, et dont les UV sont filtrés pour éviter la polymérisation à un photon. De manière heureuse, la résine polymérisée a un indice optique différent de sa phase liquide, ce qui rend les structures en cours de fabrication visibles sur la caméra CCD en temps réel (cf photographie 8.2-c).

La taille du voxel créé dépend de l'énergie volumique déposée en ce point [110, 111]. Pour un temps d'exposition plus long ou pour une puissance plus forte, le voxel sera plus gros. Quant à sa forme, avec une exposition proche du seuil de polymérisation, on attend un ellipsoïde allongé suivant la direction z de l'axe optique de l'objectif. Des résolutions aussi fines que 100 nm dans les directions transversale ont été démontrées. La raison de cette résolution inférieure à la longueur d'onde est toujours débattue. L'absorption à deux photons se fait avec une probabilité proportionnelle au carré de la fluence en photons, c'est-à-dire à l'intensité au carré. S'il existe manifestement un effet de seuil menant à la solidification d'une zone environ 5 fois plus fine que la tache de diffraction, cet effet de seuil ne s'applique pas seulement sur l'intensité comme le laisse entendre l'article original [33]. Il est plus probablement l'effet combiné de l'absorption en I^2 et de la dose minimale d'énergie à déposer pour créer entre les monomère assez de liaisons pour que le réseau moléculaire passe d'un état liquide à un état solide. Ce problème est largement lié au problème général de statistiques de la percolation [112].

8.1.3 Montage mécanique

Nous avons choisi, pour des raisons de disponibilité du matériel, de réaliser le pilotage de l'EDL par une platine piézo-électrique XYZ, elle-même montée sur la plateforme de translation XY manuelle, d'origine sur le bâti du microscope. Ainsi, alors que le faisceau et l'objectif sont immobiles, c'est l'échantillon qui est déplacé afin de propager dans la résine la réaction de photo-

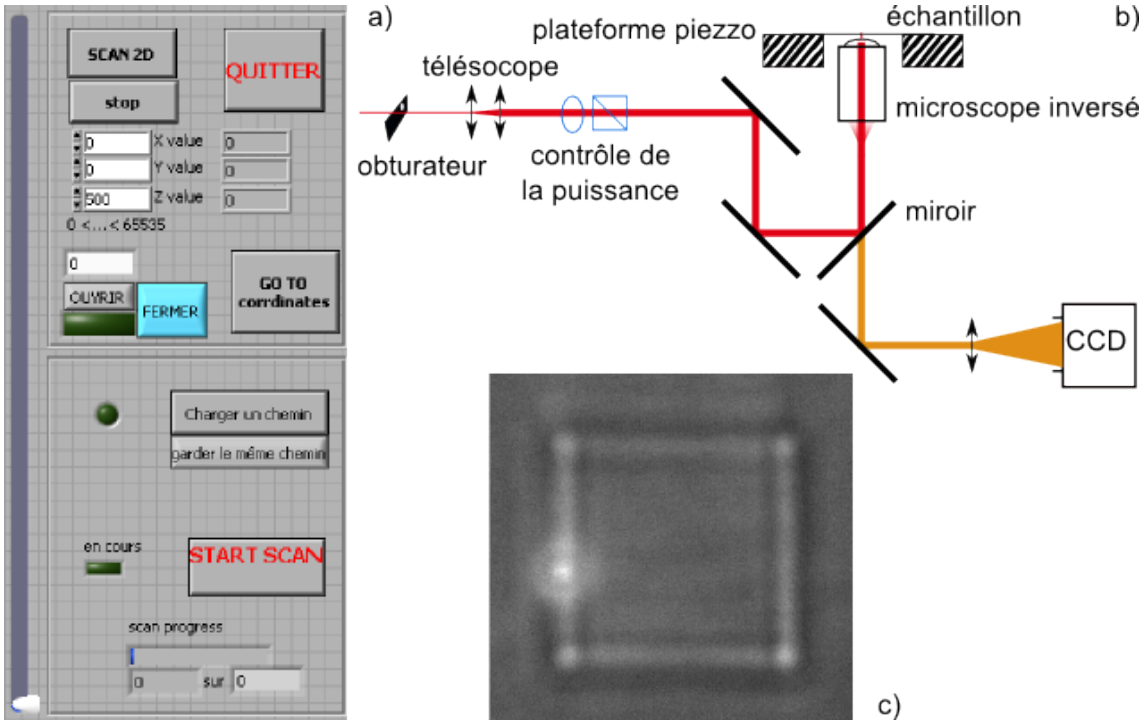


Figure 8.2 – Montage expérimental pour la Photo-polymérisation à deux photons. a – capture d'écran de la face avant du programme en Labview pilotant la plateforme piezzo-électrique et l'obturateur. b – schéma du montage optique. c – photographie en contraste de phase d'un cube pendant la fabrication. Le point lumineux est le spot du laser en cours de balayage.

polymérisation. Le pilotage de la platine de marque Jena-Piezosystem est assuré par un programme en Labview que j'ai dû développer. Ce programme reçoit une liste de coordonnées balisant la trajectoire de la platine au cours du temps et la transmet au contrôleur en temps voulu.

Ce choix technologique amène toutefois des problèmes : pour un scan rapide, des effets inertiels risquent d'agiter la résine et ainsi de déformer la géométrie ciblée. De plus, un bon contrôle de la vitesse est important. Comme la taille d'un voxel dépend de la quantité d'énergie déposée par unité de volume, un balayage lent fournit, à puissance de laser égale, une plus grande énergie par μm ^{2} qu'un balayage rapide. La taille du voxel se propageant est en conséquence plus large. La communication entre l'ordinateur et le module de contrôle de la platine, par liaison série, est toutefois trop lente pour permettre un contrôle fin de la vitesse de balayage.

Pour fabriquer un cube, plusieurs trajectoires sont possibles. Nous avons commencé par une trajectoire balayant un plan d'altitude donnée après l'autre, en suivant dans ce plan une trajectoire définie par les coordonnées suivantes :

$$... \rightarrow \begin{pmatrix} 0 \\ y_i \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} L \\ y_i \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} L \\ y_{i+1} \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} 0 \\ y_{i+1} \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} 0 \\ y_{i+2} \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow ... \tag{8.1}$$

avec $y_{i+1} = y_i + dy$ où dy est le pas de discrétisation dans la direction y valant typiquement 100 nm et L la taille du cube, de l'ordre de 20 μm. Le balayage couvre ainsi tout le carré de côté L à l'altitude z_j puis recommence à l'altitude $z_{j+1} = z_j + dz$, jusqu'à ce que la structure ait une hauteur L. Les pas de discrétisation sont choisis plus fins que la taille du voxel, afin que la structure finale soit un pavé unique. La forme elliptique du voxel permet de choisir un pas vertical dz typiquement de l'ordre de 300 nm, supérieur à dy.

8.1.4 Résultats

Lorsque ces éléments sont réunis et prêts, la fabrication en découle assez simplement. La préparation de l'échantillon en salle blanche prend 20 min en incluant le nettoyage soigneux des lames à utiliser. La partie délicate est ensuite le positionnement de l'échantillon sur le microscope avec, plus particulièrement, le repérage de l'interface entre la lame de verre et la résine. Une bonne estimation est faite à l'œil en imageant la croix gravée sur la surface. Mais le réglage est affiné en écrivant dans la résine, à la limite du verre. Un mouvement arbitraire est donné à l'échantillon dans le plan x, y tandis que la position verticale est ajustée manuellement. Lorsque l'échantillon est trop haut, la polymérisation a lieu le long du chemin prédéfini dans le plan x, y , menant par exemple aux serpentins visibles sur la figure 8.3-a . Si l'échantillon est trop bas, rien ne se passe puisque la focalisation du faisceau a lieu dans le volume de la lame de verre.

Le programme peut enfin être lancé avec la trajectoire programmée de balayage d'un cube. L'ouverture de l'obturateur est synchronisée avec le début de la trajectoire et sa fermeture avec la fin de celle-ci. La platine ayant un débattement maximal de 80 μm, il faut déplacer manuellement l'échantillon vers une zone vierge avant d'entreprendre la fabrication d'un nouvel échantillon.

La figure 8.3 montre trois échantillons : le premier (8.3-a) est réalisé par balayage plan-par-plan dans la direction x, comme décrit ci-dessus. On peu émettre une première réserve sur la forme des parois, concave sur deux faces du cube. Ce phénomène de contraction, suite au développement de la résine, est appelé rétreint (*shrinkage* en anglais). Il a lieu lorsque le volume polymérisé n'est pas très dense. En l'absence de la tension superficielle de la résine liquide autour de la structure, celle-ci se contracte. Dans notre cas, le rétreint est asymétrique, ce qui provient de la trajectoire de balayage choisie et du mauvais contrôle de la vitesse de déplacement de la platine piézo. En réalité, la platine n'a pas un déplacement linéaire entre une coordonnée et la suivante, mais plutôt une réponse en déplacement de type second ordre. Le contrôleur réalise un asservissement en position de la platine. Les effets inertiels proviennent du poids de la platine et de celui de l'échantillon qui y est fixé. L'approche de la coordonnée $n+1$ se fait suivant un profil exponentiel en $d_{n,n+1}\exp(-t/\tau)$, avec $\tau \simeq 20$ ms quelle que soit la distance $d_{n,n+1}$ entre les deux coordonnées n et $n+1$. Ainsi une énergie très inégale est distribuée le long du segment $\begin{pmatrix} 0 \\ y_i \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} L \\ y_i \\ z_j \end{pmatrix}$ de longueur L, a fortiori très inégale de celle du segment $\begin{pmatrix} L \\ y_i \\ z_j \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} L \\ y_{i+1} \\ z_j \end{pmatrix}$ de longueur dy. De plus l'enchaînement des instructions est passé à un tempo régulier toutes les 40 ms environ, donc le laser stationne sur les points situés sur les faces $x = 0$ et $x = L$, ce qui a un effet visible sur la figure 8.3-a : ces deux faces sont gonflées alors que le reste du volume est contracté.

L'exposition totale a pris environ 8 minutes. La qualité de la paroi présentée de face sur la photographie appelle une autre critique. Malgré l'asservissement de la platine, il apparaît évident que le retour à la ligne ne se fait pas avec une précision meilleure que 100 nm environ. Enfin, sur la face supérieure, on discerne le tracé de lignes pourtant rapprochées de 200 nm seulement.

Le deuxième échantillon visible en figure 8.3-b est fabriqué selon le même principe, mais nous avons balayé les plans d'altitude donnée alternativement suivant la direction x puis suivant y. L'aspect est plus symétrique et le rétreint un peu moindre. L'exposition a duré environ 30 minutes.

Le troisième échantillon 8.3-c a été fabriqué par un balayage différent. Pour chaque paroi (4 parois verticales et le "toit" horizontal"), le faisceau a balayé deux surfaces séparées de 200 nm afin de donner de la consistance aux parois. Ainsi, seul le petit volume des parois a été photo-polymérisé à deux photons. Le fort gain de temps d'exposition, qui descend à 3 min, constitue une avantage appréciable. Sur l'image de cette structure, on voit que le fait que le faisceau a passé en pratique plus de temps sur les arrêtes que dans le reste du volume du pavé.

8.1.5 Discussion

Une fabrication de microlasers par 2PP avait été réalisée au Laser Zentrum de Hanovre, par Djibril Faye, doctorant au PPSM. Ces travaux, réalisés dans le cadre du projet européen microFLUID et décrits dans sa thèse [113] ainsi que dans celle de Sergii Lozenko [67], avaient bien abouti à une émission laser. La chimie utilisée était très différente, à base d'un sol-gel (le MAPTMS), censé

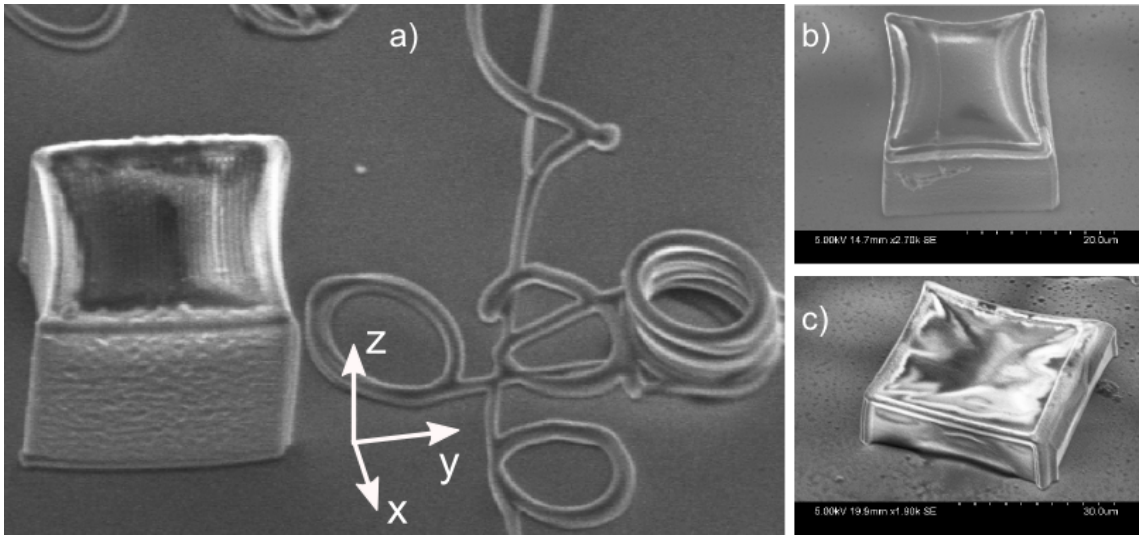


Figure 8.3 – Images au MEB de fabrications par polymérisation à deux photons à Cachan. Résine IP-L de Nanoscribe. a – balayage plan par plan. Cavité de 12x12x12 μm^3. b – balayage plan par plan suivant des directions croisées. 25x25x25 μm^3. c – balayage des parois uniquement. 37x37x12 μm^3.

donner aux fabrications une rigidité meilleure. Pour autant, des problèmes de rétreint persistaient manifestement. Cette technique a un avantage : le colorant utilisé était modifié au PPSM afin de se lier chimiquement à la structure durant la polymérisation. Cette expérience préliminaire réussie n'a toutefois pas donné de suites.

Améliorations possibles ou en cours de réalisation

Le problème principal de notre montage expérimental concerne le pilotage du balayage. Avec notre matériel, il est possible de parvenir à de meilleures réalisations, ce que je n'ai toutefois pas eu le temps de parachever durant ma thèse. Au sujet des parois non lisses, le problème est facilement contournable, car une paroi balayée parallèlement présente une qualité bien meilleure, beaucoup plus lisse, comme le montre la réalisation sur la figure 8.3-c. De plus, le mode de commande via labview point par point n'est pas optimal. La possibilité de diriger la platine à une nouvelle coordonnée toutes les 40 ms est clairement insuffisante. Si, au lieu d'adresser deux points par ligne, nous adressions tous les points du volume, la fabrication d'un cube de 12 μm passerait de 8 min à 8 h, ce qui n'est pas gérable. Au lieu de cela, il est possible théoriquement de programmer le contrôleur de la platine de façon à ce que la trajectoire soit calculée en temps réel dans le micro-processeur de contrôle, indépendamment de la connexion série avec l'ordinateur. Cependant, le manque de support technique de la part du fabricant Jena-Piezosystem en rend la mise en pratique difficile.

Enfin le problème du rétreint est très lié au contrôle de la taille du voxel par rapport à la distance

entre deux lignes. Sur la photo 8.3-a, les lignes sont nettement discernables, ce qui signifie que quatre lignes voisines, même si elles se recouvrent deux à deux, ne remplissent pas nécessairement tout l'espace entre elles, ou du moins pas avec la même densité.

Conclusion

En conclusion, les difficultés mécaniques propres à la 2PP n'ont pas pu être toutes levées durant ma thèse. De plus, par rapport à nos objectifs initiaux, il reste à franchir l'étape de l'insertion du colorant pour obtenir des microlasers. La chimie en jeu est plus délicate pour la 2PP que pour la 1PP, ce qui rend l'ajout de colorant d'autant plus complexe. Nos essais préliminaires en ce sens se sont soldés par des échecs car le colorant précipitait pendant la polymérisation. Le succès viendra à mon avis du greffage d'un colorant directement lors de la polymérisation, comme l'a fait Djibril Faye.

8.2 Technologie au Georgia Institute of Technology (Atlanta)

Le groupe de Joseph Perry, à l'université GeorgiaTech à Atlanta, est une équipe pionnière dans la photo-chimie multi-photons pour la micro-fabrication [32]. Leur montage expérimental, dont celui de Cachan est inspiré, comporte des éléments améliorant considérablement le balayage dans la résine. De plus, l'équipe possède un savoir-faire de pointe dans la composition des résines, dont les initiateurs sont synthétisés à GeorgiaTech même. L'élément le plus important est un miroir pilotable, conjugué avec la pupille d'entrée de l'objectif du microscope. Il s'agit d'un miroir monté sur une platine de rotation à deux axes et permettant de dévier le faisceau. Comme il est conjugué avec la pupille d'entrée de l'objectif, le faisceau est toujours focalisé dans le plan focal de l'objectif dans la résine, mais le point se déplace dans ce plan, avec une amplitude proportionnelle à l'angle de déviation du faisceau. Du point de vue mécanique, le miroir est plus facile à piloter que l'échantillon sur une platine piézo, car deux moteurs à courant continu asservis font l'affaire. Pour des déviations entraînant le faisceau trop loin de l'axe optique, les aberrations provoquent une petite déformation du voxel, mais cet effet est indétectable en pratique. Le scan par le miroir est rapide et régulier. L'échantillon est tout de même monté sur une platine de translation XYZ, dont la translation suivant Z assure le déplacement vertical du faisceau dans la résine. Les déplacements suivant X et Y ont un grand débattement (de l'ordre de 5 cm) ce qui offre de la liberté pour construire de grandes structures ou bien se déplacer sur le substrat entre deux fabrications distinctes.

J'ai eu la possibilité de réaliser des échantillons dans le labo de GeorgiaTech, au tout début de ma thèse, pendant un mois, avec l'aide de Vincent Chen, aujourd'hui post-doctorant dans le groupe de Joe Perry. Nous avons utilisé une résine de type acrylate (SR9020, Sartomer) et un initiateur fait maison (colorant numéro 9 dans [32]). Les structures fabriquées ont une bonne résolution mais quelques défauts sont présents comme on peut le voir sur la figure 8.4-a. Surtout, il n'a pas été possible d'inclure du DCM dans les structures pendant ma visite. Ces travaux, continués par la suite par Eric Mansfiel, étudiant en master, ont mené à la réalisation de cubes de 20 μm de côté dopés à la coumarine produisant, dans un cas, une lumière laser dont le spectre est montré en

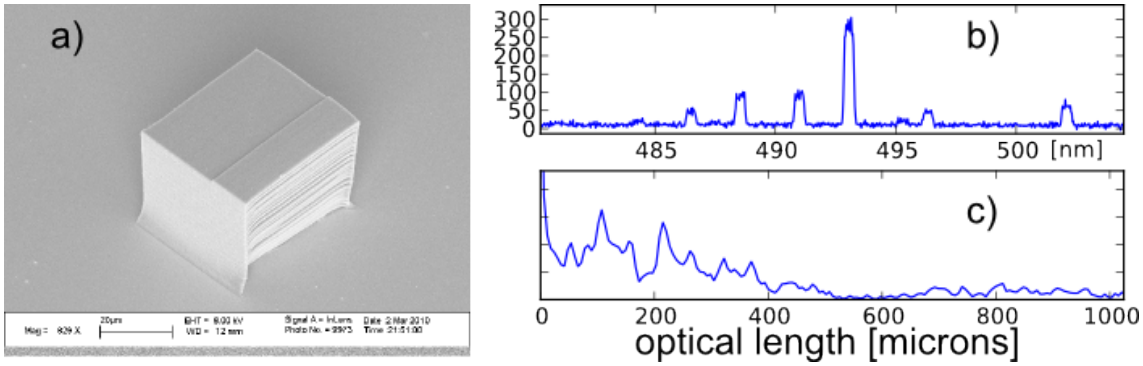


Figure 8.4 – Fabrication par photo-polymérisation à deux photons à GeorgiaTech. a – balayage plan par plan. 40x40x40 μm^3. b – spectre acquis pour un cube de 20 μm de côté dopé à la coumarine. c – sa transformée de Fourier.

figure 8.4-b. Les pics du spectre sont très larges car la fente d'entrée du spectromètre était très ouverte afin de recueillir beaucoup de lumière. Malgré cela, peu de lumière est collectée. Comme le montre la figure 8.4-c, la TF du spectre ne révèle pas de périodicité que l'on pourrait attribuer à une orbite périodique. Mais surtout, la fluorescence est tuée en quelques secondes à cause d'une mauvaise photo-stabilité de la coumarine. L'expérience a été réalisée avec le laser Nd :Yag triplé pompé par une lampe flash (EKSPLA). La longueur d'onde de 355 nm fournie, ainsi que la faible durée de pulses (30 ps), ont pour effet de blanchir la coumarine très rapidement. Depuis lors, Vincent Chen continue les travaux en intégrant comme colorant des bodipy, qui permettent le pompage à 532 nm et ont une bien meilleure photo-stabilité.

8.3 À Paris V

Une collaboration avec Marc Guillon et Eirini Papagiakoumou à Paris V a permis de mettre en œuvre une technique de micro-fabrication, basée sur la photo-polymérisation à deux photons et l'holographie. Cette technique est nouvelle car elle évite le balayage fastidieux du faisceau laser dans le volume de la structure à fabriquer.

Le groupe de Valentina Emiliani est spécialiste de l'éclairage structuré de systèmes biologiques. Le montage original que nous avons utilisé est habituellement dédié à l'excitation à deux photons avec une structuration du front d'onde pilotée en direct, couplée à une ingénierie temporelle du pulse [114]. La structuration du front d'onde permet d'exciter sélectivement différentes zones spatiales correspondant pour la biologie à des fonctions différentes d'un neurone par exemple, dans le cadre d'applications à l'opto-génétique. Pour nous, la zone exposée est un simple carré. La dispersion temporelle, introduite via un réseau, fournit une focalisation temporelle dans le plan focal de l'objectif, ce qui, combiné à l'absorption à deux photons, permet une résolution axiale de l'ordre de la longueur d'onde, même en travaillant en profondeur. Ainsi, un seul balayage suivant la direction

z de l'axe optique permet de développer la forme carrée dans le volume final du cube.

Montage

Le montage optique suivant le schéma de principe de la figure 8.5 a été mis en place dans le laboratoire de neurophysiologies et nouvelles microscopies à Paris V. Le faisceau est issu d'un laser titane-saphir verrouillé en phase (Tsunami) accordé à 780 nm. Un expanseur de faisceau multiplie par 10 sa largeur transverse afin de recouvrir la zone active d'un modulateur spatial de phase (*Spatial Light Modulator, SLM*) Hamamatsu X10468-02, soit 12x16 mm. Ce modulateur, fonctionnant en réflexion, introduit pour chacun de ses 480000 pixels (600x800) un retard de phase piloté entre 0 et 2π. Il est conjugué avec le plan focal de l'objectif de microscope. Le faisceau réfléchi est focalisé sur un masque de contraste de phase, qui introduit un déphasage de π au centre du masque, c'est-à-dire pour l'ordre 0 de diffraction du masque. Le modulateur de phase est piloté par un logiciel qui, partant d'un motif dessiné par l'utilisateur, calcule le profil de phase nécessaire, sur le modulateur, pour reproduire ce motif dans le plan focal de l'utilisateur, et adresse ce profil à l'appareil. En pratique, le motif est un carré plein et homogène en intensité. Cependant, comme le SLM transmet toute la lumière incidente, et comme nous voulons faire varier librement la taille du carré sans influer sur l'intensité surfacique, le surplus d'intensité est distribué sur un anneau autour du motif, que nous supprimons ensuite aisément à l'aide d'un diaphragme.

Enfin, l'image du motif est conjuguée aussi sur un réseau blasé (830 lignes par mm), dont le premier ordre de diffraction est transmis vers l'objectif de microscope. Le but est de disperser spatialement les fréquences contenues dans le pulse femto-secondes. Comme le réseau est conjugué avec le plan focal de l'objectif, toutes les fréquences sont recombinées dans ce plan et le pulse est bien femto-secondes avec une énergie de crête élevée. Cependant, avant et après le plan focal, les fréquences étant dispersées spatialement, le milieu voit un pulse long d'énergie de crête faible. Cette méthode est appelée focalisation temporelle (*time focusing*). Ainsi, dans le cadre d'une absorption à deux photons, la zone excitée est localisée axialement autour du point focal.

Nous mettons cela à profit, en photo-polymérisant une résine à deux photons. La zone polymérisée est définie transversalement par le motif. Quant à sa profondeur, elle résulte à la fois de la focalisation temporelle et du seuil de polymérisation évoqué dans les parties précédentes. Comme une surface de 20 x 20 μm est exposée en une seule fois, la puissance totale nécessaire est supérieure au cas de l'écriture voxel par voxel pour lequel, par comparaison, une surface de 0.5 x 0.5 μm est exposée à la fois. L'échantillon repose sur une platine dont seul le scan en z est utilisé. En un balayage de la hauteur voulue, le motif décrit un cube qui photo-polymérise.

Résultats

La figure 8.6 montre trois réalisations réalisées sur ce montage. La première est réalisée avec la résine SR9020 (Sartomer) et l'initiateur lucirin (TPO-L BASF, à hauteur de 3% en masse). Le cube mesure 20x20x40 μm^3. La puissance utilisée est 1 W (mesurée à l'entrée de l'objectif) et le scan suivant z, piloté par une électronique faite maison par Vincent De Sars, est effectué en 10 s. La première remarque concerne l'effet de chapeau que nous n'attendions pas. Malgré la

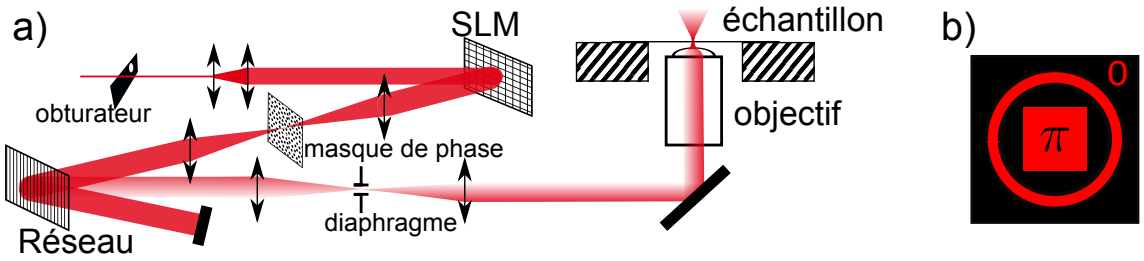


Figure 8.5 – Montage expérimental utilisé pour la polymérisation à deux photons à l'université Paris V. a – schéma du montage optique. Le laser est étendu pour couvrir la surface d'un SLM suivi de deux lentilles en configuration 4f avec un masque de phase au plan focal de la première lentille, réalisant la méthode GPC de structuration du front d'onde [114]. Un réseau pour la (dé-)focalisation temporelle est placé sur la sortie du système 4f. Le SLM et le réseau sont conjugués avec le plan focal de l'objectif de microscope. L'échantillon est déplacé selon z. b– schéma du profil de phase adressé au SLM.

focalisation temporelle, la polymérisation s'effectue non pas sur un cylindre d'épaisseur inférieure à une longueur d'onde, mais dans un volume conique (probablement bi-conique) s'étalant sur 10 μm autour du motif carré dans le plan focal. Comme la focalisation temporelle est un procédé robuste, ce qui a été montré sans ambiguïté dans l'équipe hôte de cette expérience, c'est du côté de la polymérisation qu'il faut chercher la cause de cet effet. Ce dernier est un indice du fonctionnement de la polymérisation à deux photons. L'intensité de crête n'est manifestement pas le paramètre critique. Au contraire l'énergie spatiale est distribuée en amont du motif carré, selon ce profil conique. Les réalisations b) et c) sur la figure 8.6 ont respectivement utilisé la résine IP-L de Nanoscribe et la SU8. Dans le dernier cas, le toit est plat car on a polymérisé jusqu'à la surface de la lamelle de verre du dessus.

Malheureusement, l'expérience étant généralement peu disponible, nous avons dû arrêter cette piste qui s'avérait pourtant prometteuse pour la fabrication de formes variées. En effet, il était envisagé de faire varier le motif transversal, en synchronisation avec le balayage selon z, ce qui ouvrait la porte à de nombreuses autres géométries différentes des cylindres.

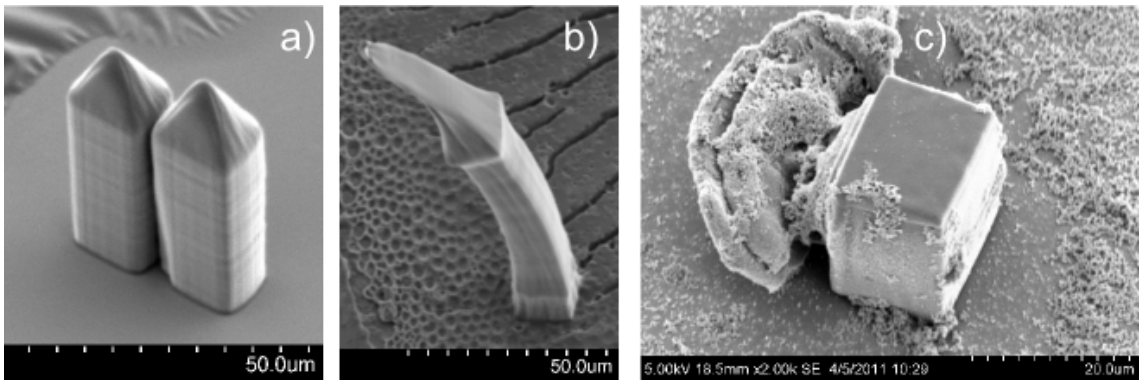


Figure 8.6 – Micro-structures fabriquées à l'université Paris V par 2PP et structuration du front d'onde. a – deux pavés en résine SR9020 (Sartomer) et Lucirin (initiateur, BASF) 20x20x40 μm. b – structure en résine IP-L (Nanoscribe) 10x10x40 μm. c – pavé en résine SU8 2025 (Microchem) 15x20x25 μm.

Chapitre 9

Autres formes, conclusion et perspectives

Des formes non-cylindriques auraient l'avantage de ne supporter aucune orbite planaire. C'est le cas par exemple du tétraèdre. Un exemple d'orbite supportée par un tétraèdre est décrit dans la première section de ce chapitre. Mais la forme du tétraèdre n'est pas encore fabricable expérimentalement et nous n'avons pas pu en conséquence tester l'exitence d'un effet laser le long ce cette orbite.

D'autres formes ont attiré notre attention durant la thèse, plutôt pour des raisons technologiques.

Des travaux ont été menés en collaboration avec le JNCASR de Bengalore sur des fibres en polystyrène dopé, qui constituent des micro-cavités laser. Ces fibres sont fabriquées par une méthode peu onéreuse et ne nécessitant pas une grande précaution, ce qui les rend bien adaptées à une production de masse, en vue peut-être d'application en tant que micro-sources intégrées. Par ailleurs, une collaboration avec le *Max Planck Institute for the Science of Light* de Erlangen a récemment été amorcée sur un projet de fibres à cristaux photoniques, dont les creux sont mis à contribution comme hôtes du milieu à gain.

9.1 Orbites dans un tétraèdre

La figure 9.1 montre deux dessins (a et b) d'une orbite périodique à l'intérieur d'un billard en forme de tétraèdre régulier. Il existe une littérature mathématique sur les orbites dans des billard tétraédriques [115, 116, 117], mais moins riche que pour les triangles. Je me suis contenté pour obtenir la figure 9.1, de lancer un rayon dans une direction particulière et d'observer la trajectoire après un nombre limité de réflexions (~ 30). Contrairement au cas du cube, il n'y a pas de famille autour de l'orbite périodique représentée en figure 9.1-a et b. Pour un petit déplacement du point de départ d'une trajectoire, on obtient une trajectoire qui ne boucle pas sur elle-même, mais couvre

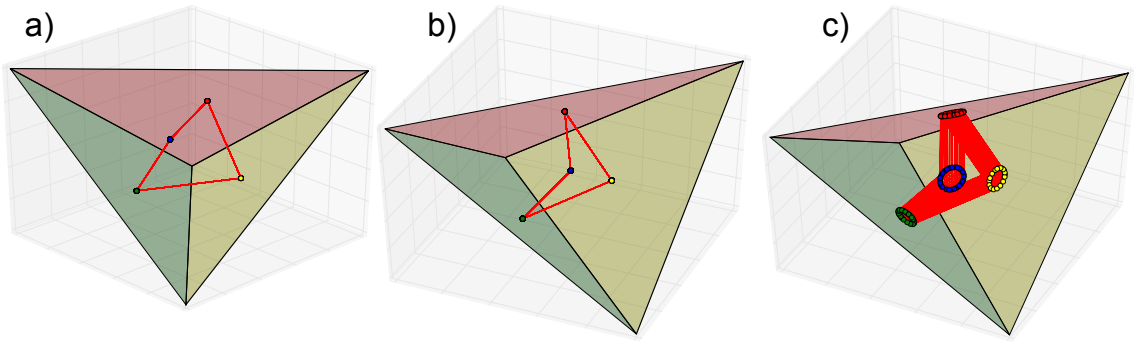


Figure 9.1 – Orbites dans un tétraèdre régulier. a et b – deux vues différentes de la même orbite périodique, qui se réfléchit une et une seule fois sur chacune des quatre faces. c – trajectoire voisine de l'orbite périodique en a) et b)

une surface correspondant à un tore. La description de la géométrie associée nous aurait amenés trop loin, et constitue un sujet de mathématiques. De plus, d'un point de vue technologique, les premiers tétraèdres n'ont pas encore été obtenus, bien que cette réalisation soit tout à fait à la portée du montage de Georgia-Tech (voir section 8.2).

9.2 Fibres en polystyrène

Anshuman J Das a développé dans le groupe du Pr. Karayan au *Jawaharlal Nehru Center for Advanced Scientific Research* à Bengalore en Inde, une méthode de production de micro-fibres en polystyrène qui ont la propriété d'avoir des bords facettés dans certaines conditions. Leur caractérisation au LPQM a mené à un article en collaboration [118].

9.2.1 Méthodes de fabrication et de caractérisation

La méthode de fabrication est l'électro-filage, dont le principe est d'appliquer à la résine, entre l'aiguille de la seringue qui la contient et une deuxième électrode, une différence de potentiel forte qui contrebalance la tension superficielle et provoque l'éjection de la résine hors de la seringue sous la forme d'un filet solide, car le solvant s'évapore instantanément. Ils ont, par cette méthode, obtenu des fibres non-cylindriques et même parfois facettées, ce qui est dû à une instabilité hydrodynamique lors de l'expulsion de la résine [119]. Ceci est intéressant pour nous car, alors, la tranche de la fibre a une forme polygonale sur laquelle il devient aisé d'appliquer le formalisme du tracer d'orbites. Un exemple de facettes est montré en figure 9.2-e . On voit que, pour autant, les facettes ne sont pas étendues sur une grande longueur de la fibre. De plus, en pratique, les fibres qui ont été caractérisées optiquement à Cachan n'avaient pas un profil facetté comme on peut le voir sur les images de la figure 9.2-a,b,c et d.

La caractérisation a été réalisée à Cachan, principalement sur le montage "2D", lors du séjour

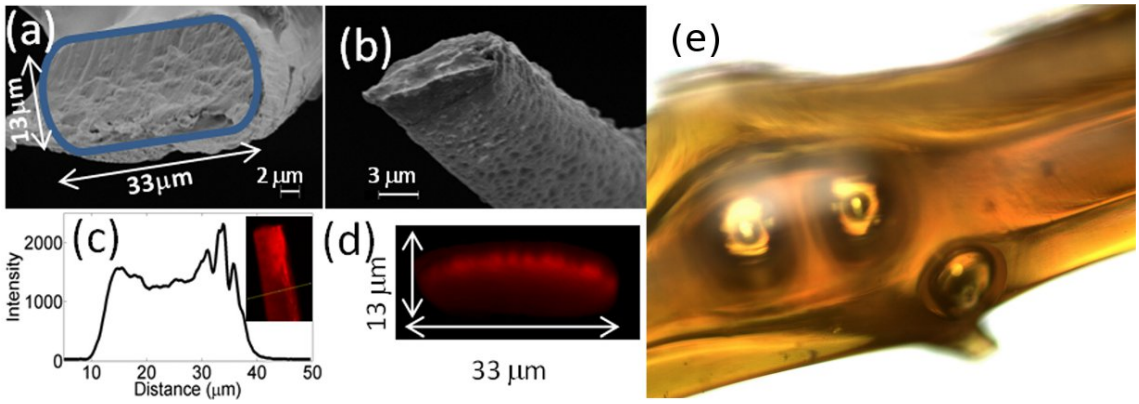


Figure 9.2 – Images de fibres fabriquées par électro-filage. a,b – images au microscope électronique à balayage de deux fibres. c – profil et image confocale en fluorescence d'une fibre dopée au DCM. d – image confocale en coupe d'une fibre dopée au DCM. e – image au microscope optique de facettes sur une fibre.

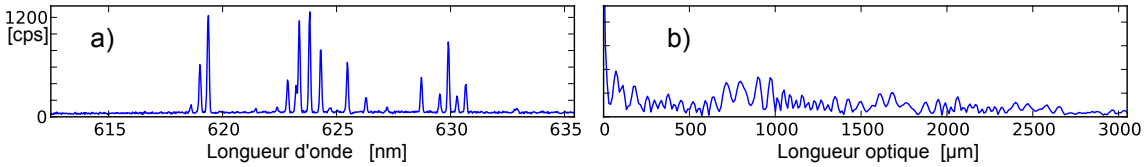


Figure 9.3 – Microlaser-fibre. a – spectre émis par le microlaser de la figure 9.2-b. b– sa transformée de Fourier.

de Anshuman J Das à l'ENS pendant 1 mois. Les fibres ont une longueur d'environ 1 mm, c'est-à-dire une longueur supérieure à la taille du spot de pompage. La collection de la lumière est faite perpendiculairement à l'axe de la fibre. La figure 9.3 montre un spectre typique acquis sur l'échantillon de la figure 9.2-b. Bien qu'une certaine organisation apparaisse dans le spectre à l'œil, la transformée de Fourier ne révèle pas clairement la présence d'une orbite périodique porteuse des modes laser.

9.2.2 Discussion

La technique de fabrication de l'électro-filage fournit des échantillons en grande quantité. L'effet laser a été observé avec l'immense majorité d'entre eux. Pour autant, il est difficile de conclure sur la nature géométrique des modes lasers. En effet, la reproductibilité de la forme des échantillons est pour l'instant assez délicate.

Dans le cas de fibres vraiment cylindriques, nous attendons une extension du cas du Fabry-Perot, les modes ayant, suivant l'axe d'invariance z, une structure quelconque, peut-être gaussienne, centrée sur le spot de pompage. Dans le plan transverse, au contraire, la structure des modes

serait similaire à celle qu'ils ont dans une cavité bidimensionnelle. Cependant ce cas n'est pas le seul intéressant. Depuis quelque temps, avec notamment les travaux notamment de Sumetski, un certain intérêt est donné aux résonances de type "bouteille" [120, 121, 122]. Il s'agit de modes à très haut facteur de qualité, vivant dans des résonateurs cylindriques dont la forme est proche d'une fibre. On peut les décrire comme un mélange entre des modes de galerie dans un plan transversal et un confinement longitudinal dû à deux rétrécissements de la fibre, localisés face-à-face. Les confinements axiaux et transversaux sont toutefois liés et il s'agit bien de modes *vraiment 3D*.

9.3 Fibre-laser à Cristaux photoniques

Le groupe du Pr. Russel au *Max Planck Institute for the Science of Light* à Erlangen est spécialisé dans la fabrication de fibres à cristaux photoniques aussi appelées fibres *hollow-core* dans lesquelles le guidage est assuré par une micro-structuration de la zone entourant le coeur de la fibre. Ainsi, la fibre est faite d'un seul matériau, et donc d'un seul indice optique. En outre ils savent étirer, affiner et accoler ces fibres entre autres. Mettre à contribution les creux, en les remplissant de colorant pour rendre la fibre active, constitue une idée techniquement à portée.

Nous avons, dans un premier temps, testé l'introduction de colorant dans des tubes capillaires droits et coniques. La géométrie est décrite sur la figure 9.4-a. Le rétrécissement est obtenu en chauffant le verre tout en appliquant une traction qui vient étirer le verre fondu. Joseph Lautru a pu remplir ces tubes par la seule force de la tension superficielle. En plongeant l'extrémité d'un tube dans une solution de DCM dans l'anisole, la solution est aspirée dans le capillaire et en remplit une dizaine de cm en une heure environ. Pour un capillaire droit, nous attendons la situation décrite au paragraphe précédent, dans laquelle seule la forme de la tranche (ici un disque) joue un rôle dans l'effet laser. Les modes concernés sont ainsi des modes de galerie et les spectres, présentés en figures 9.4-b et d, présentent bien des intervalles spectraux libres qui correspondent à la circonférence du cercle ayant pour rayon celui de la face interne du tube capillaire, soit respectivement 160 et 80 μm.

En revanche, le long de la partie conique, il n'y a pas d'orbite périodique supportée par la face interne du tube capillaire. Nous observons une émission bien moins intense que le laser des modes de galerie, mais malgré tout plus structurée qu'une simple émission de fluorescence (figure 9.4-c). Ceci peut être tout simplement dû à des interférences destructives dont l'origine est liée aux réflexions sur la surface verre/air externe du tube capillaire.

Afin d'obtenir un mode de type bouteille, un deuxième cône, opposé à celui-ci eut été nécessaire. Pour le moment l'extension du rétrécissement de 2 cm est trop grande pour espérer observer un confinement axial entre deux cônes. Nos expériences de caractérisation sont bien adaptées à des micro-résonateurs dont la taille ne dépasse pas les 500 μm. Fabriquer un rétrécissement le long de la fibre sur une longueur inférieure à 200 μm n'est pas un obstacle, tant que l'amplitude du rétrécissement (différence diamètre initial / diamètre final) n'est pas trop importante. La question de l'amplitude nécessaire à un effet bouteille n'est d'ailleurs pas tranchée. Ainsi un très faible rétrécissement sera peut-être suffisant pour l'existence d'un mode de type bouteille. D'un point de

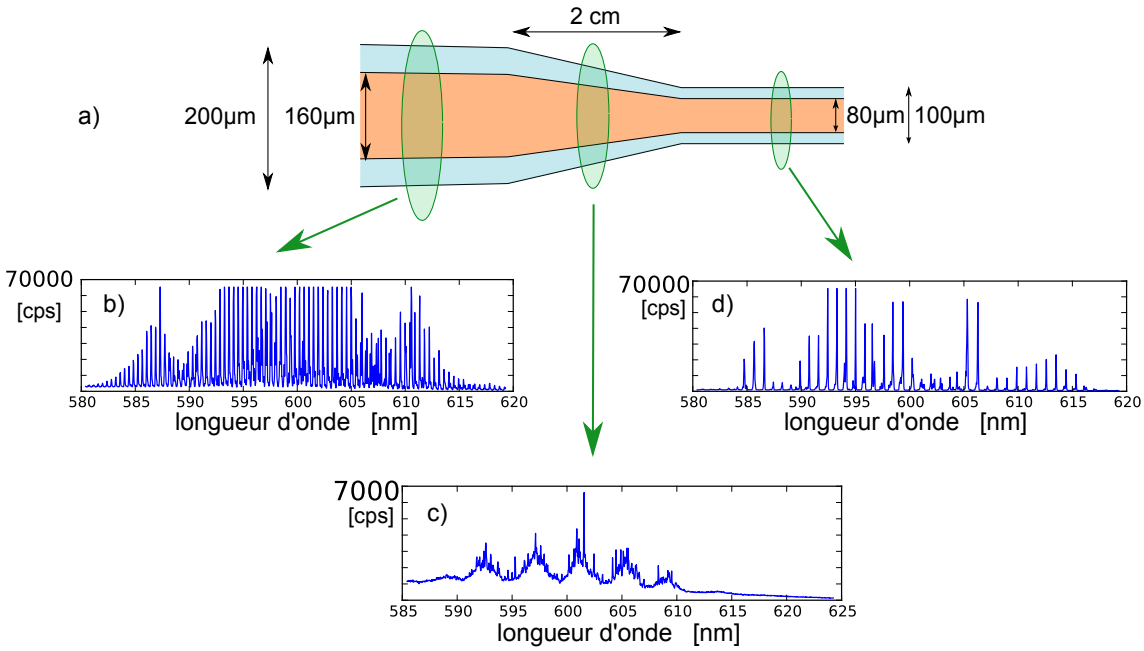


Figure 9.4 – Effet laser dans un tube capillaire rétréci et rempli de DCM. a – géométrie du tube. b – spectre laser dans la zone cylindrique non-rétrécie (modes de galerie). c – spectre de l'émission dans la zone conique. d – spectre laser dans la zone cylindrique rétrécie (modes de galerie).

vue technologique, sa réalisation est tout à fait envisageable.

Ces études ont suscité des interrogations sur la qualité du parallélisme des faces dans les échantillons 2D que nous utilisons habituellement. En effet, dans le capillaire conique utilisé ici, l'angle au sommet du cône est seulement 0.23° et cela a pour effet de déstabiliser totalement les modes de galerie. Nous avons donc mené, lors du stage de Laura McGuire, une étude sur des échantillons bidimensionnels, que nous avons appelés Quasi-Fabry-Pérot. Il s'agit, comme pour les Fabry-Perot, de rubans, mais les côtés, au lieu d'être parfaitement parallèles, font entre eux un angle dont nous avons pris plusieurs valeurs entre 0.1% et 2%. Il est apparu que, pour le plus petit angle de notre série (0.1% soit 0.005°), le laser est déjà très déstabilisé. L'ensemble des détails expérimentaux se trouve dans le rapport de stage de Laura McGuire [98].

9.4 Conclusion

En conclusion, nous en sommes à un stade où des échantillons cubiques de qualité correcte commencent à être fabriqués de manière reproductible par deux techniques différentes, de polymérisation à un ou à deux photons. Le tableau 9.5 résume l'état de l'art de la fabrication par les différentes sous-méthodes. David Ulbricht, stagiaire en L3 de l'université Paris XI, a déjà carac-

térisé cet été 2013 de nombreux échantillons fabriqués par Nina Sobeschuck. Les conclusions de ces expériences sont retranscrites dans son rapport de stage [123]. Des peignes de fréquences très propres en ressortent, avec des seuils lasers plutôt plus faibles que pour des microlasers plans (mais du même ordre de grandeur).

Cependant, des détails importants échappent encore à notre maîtrise, et il faudra réaliser des statistiques sur un grand nombre d'échantillons avant de pouvoir conclure fermement sur l'existence de modes *vraiment 3D* dans les cavités fabriquées. Plus particulièrement, des expériences menées en variant les trois dimensions des cubes fourniraient probablement des indices sur la nature du chemin optique suivi, pourvu que ce chemin se déforme continûment lorsqu'on déforme la cavité, ce qui n'est pas évident a priori. En effet, l'existence de l'angle critique de réflexion totale donne à des orbites, pourtant géométriquement proches, des caractéristiques optiques très différentes. Un travail sur le substrat supportant les cubes devrait, à mon avis, débloquer rapidement la situation en menant à l'observation, à court terme, de modes superscars vraiment 3D. Les différentes approches possibles sont un support en cristal photonique, ce sur quoi travaille déjà le laboratoire de Jospeh Perry à Atlanta. Une fabrication directement sur une couche métallique, ou sur un miroir diélectrique sont aussi des pistes à explorer. De plus, la discussion qui constitue la thèse de la partie 4, à propos des orbites pseudo-périodiques, devra être généralisée au cas 3D du cube.

Enfin, les récents progrès réalisés à Atlanta mettent les formes tétraédriques à portée de main. Ces formes devraient donner une réelle preuve expérimentale sur la possiblité ou l'impossibilité de faire laser des modes superscars *vraiment 3D*.

Méthode	Formes de cavités accessibles	Etat de l'art au LPQM et les labos partenaires.
Lithographie à un photon en SU8 et colorant	Formes cylindriques	Peu de colorants compatibles. Qualité raisonable.
Lithographie à un photon en SU8 pure et introduction diffusive du colorant	Formes cylindriques	Qualité raisonable mais dégradée par l'étape de diffusion.
Micro-moulage en SU8 et colorant	Formes cylindriques	Etapes prélables de lithographie OK. Problème du remplissage du moule.
Lithographie à un photon en Bisphénol et colorant	Formes cylindriques	Exposition longue, qualité des bords moyennes
EDL par 2PP avec colorant dissout	Toutes formes pleines	Peu de colorants compatibles. Très bonne qualité de fabrication
EDL par 2PP avec colorant chimiquement lié	Toutes formes pleines	Effort nécessaire sur la chimie très complexe. Très bonne qualité potentielle.

Figure 9.5 – Tableau récapitulatif des méthodes de fabrications de microlasers 3D en matériaux oganiques. Toutes les techniques présentées ont montré une effet laser sauf le micromoulage. EDL : Écriture Directe par Laser. 2PP : Photo-polymérisation à 2 photons.

Chapitre 10

Conclusion

Au long de cette thèse, j'ai eu l'occasion d'apprendre des savoirs et d'acquérir des savoirs-faire très divers autour d'un sujet riche, touchant principalement à l'électromagnétisme, la physique non-linéaire et la photonique, ainsi qu'à à la physico-chimie, à la physique statistique et même aux mathématiques. Mais avant toute chose, ce fut une thèse *très* expérimentale, dont la part manipulations fut présente dans de bout en bout et apparaît dans tous les chapitres de ce mémoire. C'est ainsi que j'ai été amené à concevoir et à construire un Scanner à Angle Solide (SAS), et à systématiser l'acquisition d'images des microlasers, ce qui est décrit au chapitre 2. Le SAS nous a permis quasi-immédiatement, de détecter ce qui pourrait s'avérer un problème majeur pour l'application de la technologie des microlasers planaires à des circuits optiques on-chip, à savoir une forte émission hors-plan qui avait été ignorée dans les études précédentes. Cela nous a conduit à élaborer un modèle, présenté au chapitre 3, qui explique le mécanisme de cette émission hors-plan, compatible avec la diffraction par le bord des résonateurs, et qui ouvre la voie à une ingénierie du support des microlasers afin de contrôler la directionalité en trois dimensions. Cependant, ce modèle n'est manifestement valable que dans le cas d'orbites se réfléchissant en incidence normale sur la bordure de la cavité. Le cas de l'émission du microlaser carré, extrêmement directionnelle et restée énigmatique jusqu'à maintenant, a enfin trouvé une explication convaincante, que j'ai présentée au chapitre 4. Cette explication est également susceptible de rendre compte de l'émission 3D par des orbites en incidences obliques sur les parois. La famille des triangles, décrite en détail dans le chapitre 5, a joué un rôle décisif pour la compréhension générale des microlasers, grâce à la confrontation et à la synthèse des données acquises pour une grande variété de configurations, dont la richesse n'était pas soupçonnée au départ. Le chapitre 6 sur la cohérence des modes des microlasers marque enfin l'amorce de l'ancrage de ce sujet de recherche dans une communauté importante, celle des peignes de fréquences.

Tous les échantillons utilisés dans les chapitres 2 à 6 ont été à chaque fois conçus et réalisés "sur mesure", par la technique aujourd'hui robuste de lithographie électronique. Il en a été tout autrement pour les échantillons en jeu dans les chapitres de la deuxième partie. En effet, la fabrication de microlasers de formes 3D était un sujet vierge, dont il a fallu inventer les procédés. Nous nous

sommes fortement inspirés de procédés de micro-fabrication déjà éprouvés et avons cherché des méthodes pour doper les structures finales, ce qui constitue un défi technologique supplémentaire. Ainsi, après une brève description au chapitre 7 du type d'orbites que l'on peut espérer observer dans un microlaser cubique, le chapitre 8 concerne le vif du sujet : comment fabriquer une telle micro-cavité ? Les techniques qui y sont décrites résultent de méthodes de lithographie UV adaptées à nos besoins de dopage par un colorant. La méthode qui a donné les meilleurs résultats est l'utilisation de SU8 avec un colorant bien choisi de la famille des pyrrométhènes. Dans la perspective de ne pas nous restreindre à des formes cylindriques comme le cube, nous avons aussi testé la fabrication par polymérisation à deux photons, qui permet en théorie la fabrication de n'importe quelle forme 3D, comme le ferait une imprimante 3D par prototypage rapide. Ces essais, en passe d'aboutir à de très bons résultats dans le cadre d'une collaboration avec le Georgia Institute of Technology, sont décrits dans le chapitre 9. Enfin nous nous sommes intéressés à des microlasers 3D en fibres, ce qui est rapporté au chapitre 10.

Troisième partie

Annexes

Annexe A

Paraléllogrammes

L'idée d'étudier des parallélogrammes est née de la volonté d'étudier la compétition entre les modes. Pour ce faire, nous cherchions une géométrie où deux orbites sont clairement identifiées, et dont on pourrait faire varier un paramètre, afin de favoriser l'une ou l'autre des orbites. C'est ce que permet la forme du parallélogramme avec deux modes de type Fabry-Perot soutenus par les deux paires de côtés opposés parallèles entre eux. Le rectangle, qui est un parallélogramme particulier, a aussi deux orbites Fabry-Perot disctinctes mais les orbites de type diamant, confinées par réflexion (quasi-)totale interne, dominent systématiquement sur les Fabry-Perot. Dans un parallélogramme, les deux familles de Fabry-Perot croisées ont les mêmes pertes (car les coefficients de Fresnel associés à la réflexion sous incidence normale sont les mêmes), mais pas forcément les même gains (qui dépendent de la longueur de l'orbite), ni la même aire couverte par la famille. Or l'aire de la famille apparaît dans la formule de trace comme un facteur jouant sur le poids de la famille, à l'intérieur du spectre total. En étudiant des microlasers en forme de parallélogrammes de différentes tailles et angles, et en comparant les seuils des lasers associés à chacune des orbites Fabry-Perot, on peut tester la validité de la formule de trace.

Je rapporte ici des travaux préliminaires qui ont été réalisés dans le cadre du TIPE de Raphaël Naves en 2011. Nous avons dessiné et fabriqué un échantillon composé d'une trentaine de parallélogrammes, ainsi que quelques Fabry-Perot, par la méthode de gravure électronique. Le colorant utilisé était le pyrrométhène 605. L'acquisition du spectre des Fabry-Perot a révélé un indice complet d'une valeur de 1.73, plus grande que d'habitude avec le DCM. Il faudrait confirmer cette valeur par des mesures de dispersion dans le PMMA, dopé en PM605, pour être sûr qu'il n'y a pas de biais expérimental imprévu dans cet échantillon.

La figure A.1 montre le diagramme d'émission d'un parallélogramme dont la géométrie est aussi décrite. Trois types d'orbites sont identifiés dans ce billard : les deux Fabry-Perot, vertical et quasi-horizontal que nous attendions, de longueurs géométriques respectives 200 μm et 196 μm, ainsi qu'une autre orbite appelée "papillon", de longueur 306 μm, qui a été mise en évidence par l'expérience. En effet, le diagramme d'émission ne montre pas simplement 4 pics mais 8. Les pics numérotés 3 et 7 sur la figure A.1-b sont ceux reliés au FP vertical. La TF du spectre dans ces

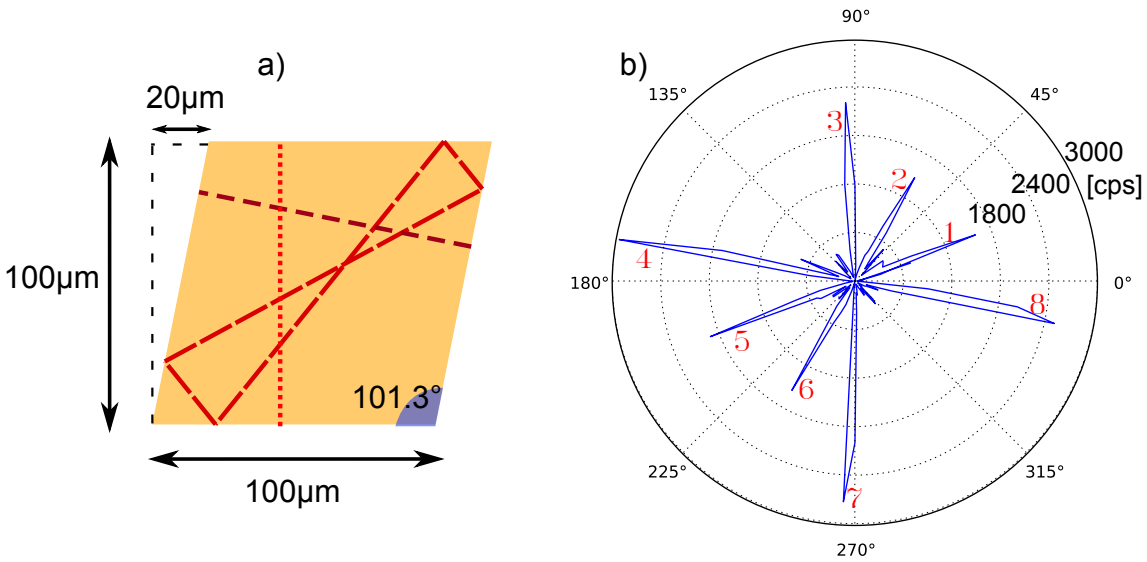


Figure A.1 – Microlaser en forme de parallélogramme. a – géométrie du micro-résonateur fait de PMMA + PM605. Diagramme d'émission de ce microlaser sous polarisation circulaire et une énergie par impulsion de pompe de 0.96μJ.

deux directions fournit une même valeur de longueur géométrique 197 μm en prenant pour indice complet la valeur de 1.73 trouvée sur les Fabry-Pérot. Ceci est tout à fait dans les barres des incertitudes dues justement à la mauvaise connaissance de l'indice effectif. Les pics numéro 4 et 8, de même, correspondent bien au FP quasi-horizontal, et la TF du spectre fournit une longueur de 195 μm, ce qui correspond aussi à la longueur de l'orbite FP quasi-horizontal. Les autres pics (numérotés 1,2,5 et 6) sont associés à l'orbite "papillon". La transformée de Fourier le confirme car la longueur géométrique obtenue est 299 μm. De même, les directions d'émission dans le diagramme A.1-b sont en accord avec les quatre angles de transmission de l'orbite "papillon".

Il s'agit d'un cas rare, pour lequel plusieurs orbites lasent en même temps. Plusieurs possibilités permettent d'expliquer cela. Les trois orbites peuvent avoir des seuils très proches, ou alors aucun processus de compétition n'existe entre elles. Le cas de l'orbite croisée est intéressant car des études [64, 63] ont suggéré que les interférences nées du croisement de l'onde dans le milieu amplificateur créent un réseau de réfraction et de gain qui favorise la stabilisation du mode laser.

Pour d'autres formes de parallélogrammes (cf figure A.2), les Fabry-Perot existent toujours et sont détectables en tant que modes laser. Dans le cas du d) le FP vertical n'existe pas, mais il est remplacé par une orbite de caractéristique similaire, quasi-FP, dessinée sur le modèle en pointillés. Les modes laser suivant les orbites Fabry-Pérot ne sont pas toujours les plus lumineux, et nous n'avons pas identifié la nature des modes dans tous les cas présentés sur cette figure.

La figure A.3 essaye de répondre à la problématique initiale : peut on prédire la prédominance d'une orbite en fonction de données géométriques simples comme sa longueur et l'aire de la surface

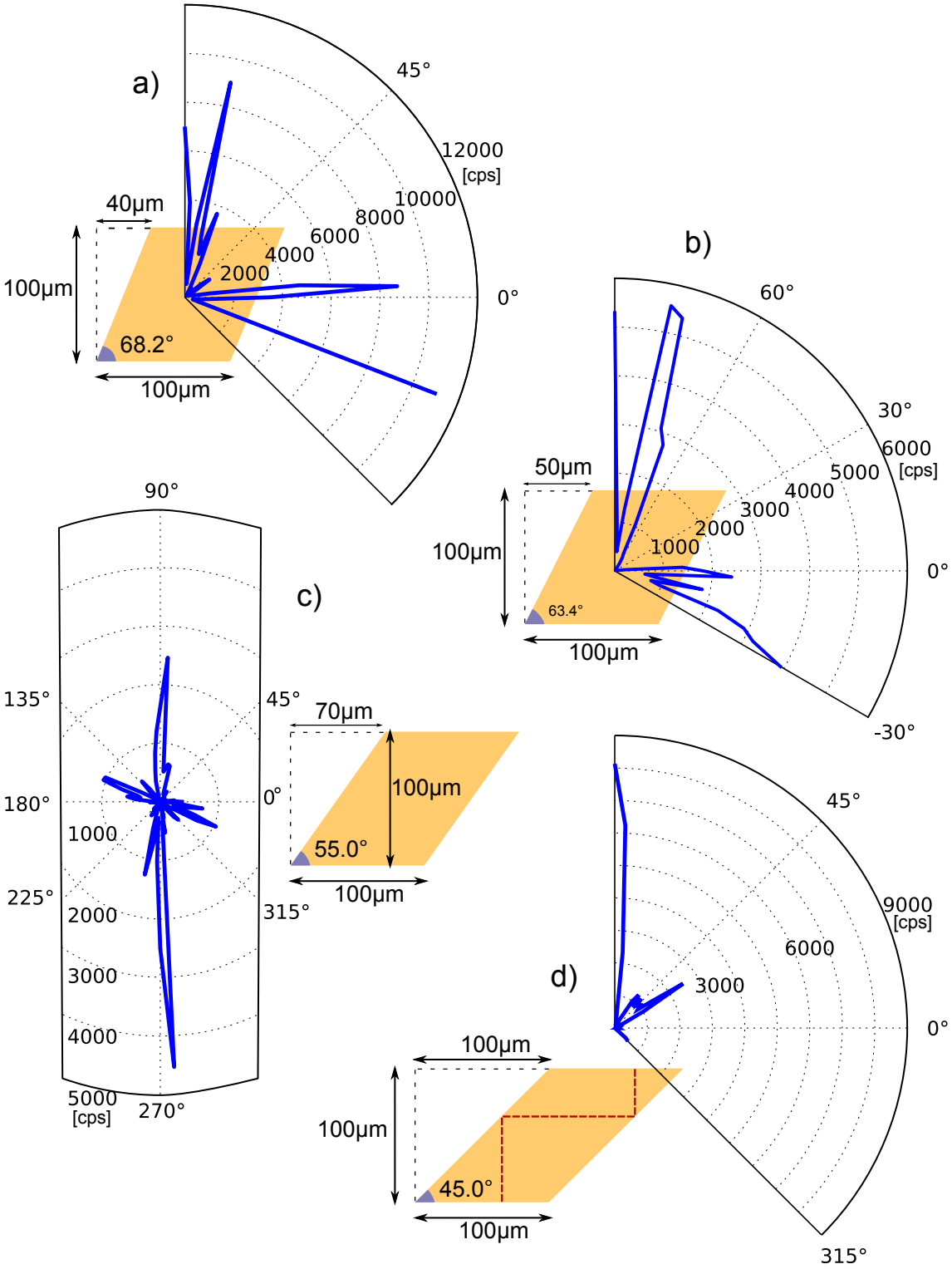


Figure A.2 – Microlaser en forme de parallélogramme. a,b,c,d – géométries et diagrammes d'émission respectifs pour quatre autres formes de parallélogrammes. Polarisation circulaire. Les énergies par impulsion de pompe sont respectivement 1.6 μJ, 1.3 μJ, 1.0 μJ et 1.3 μJ.

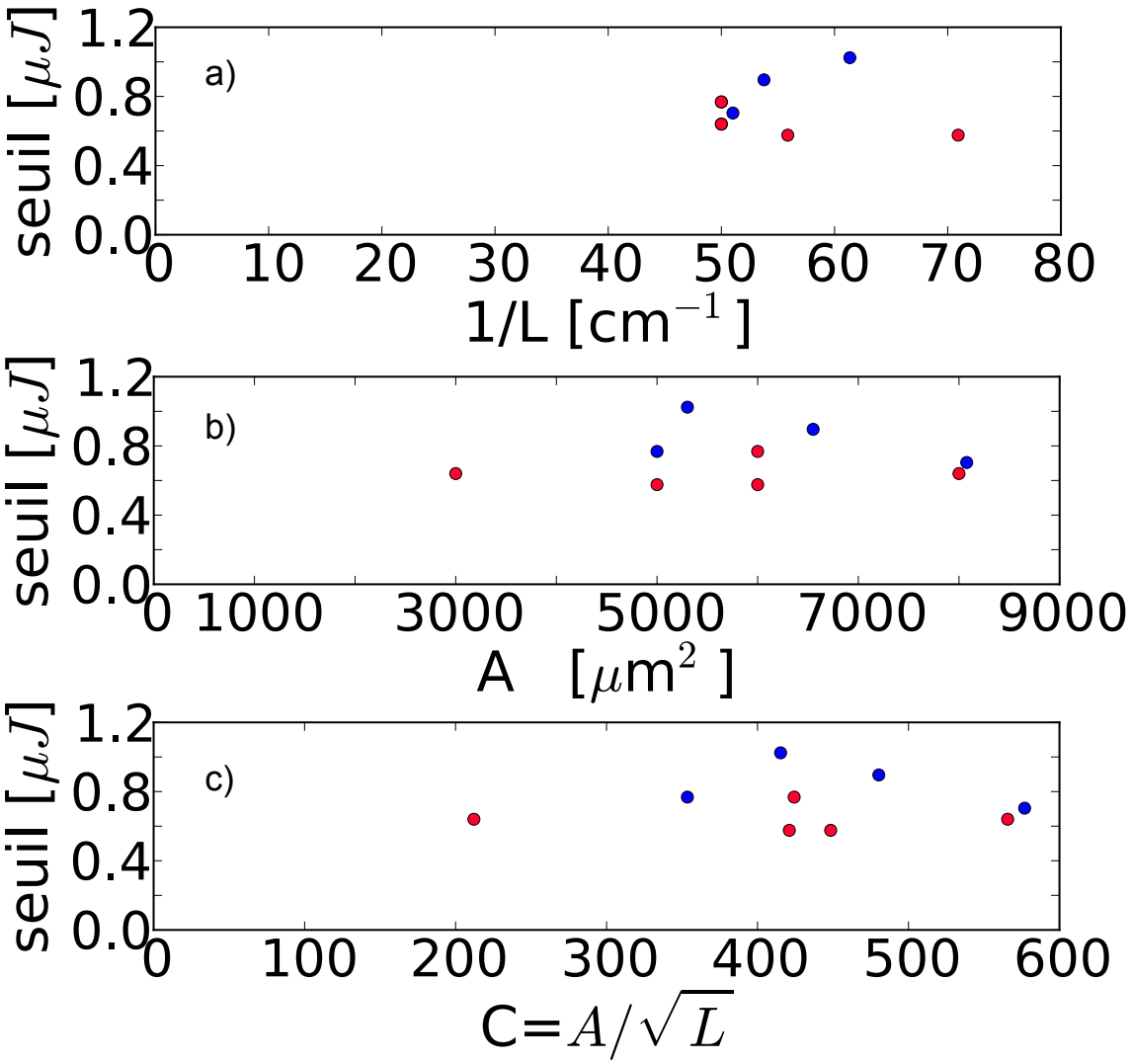


Figure A.3 – Seuils des modes Fabry-Perot. a – en fonction de l'inverse de la longueur de l'orbite. b – en fonction de l'aire de la famille. c – en fonction du coefficient $A/\sqrt{L}$. Les points rouges (gris clairs) sont les seuils les plus bas parmi les 2 FP d'un même parallélogramme. Les points bleus (gris foncés) sont les deuxièmes.

de sa famille ? Le seuil du laser a été choisi ici comme paramètre de contrôle, car c'est le paramètre-limite entre le régime de résonance linéaire et le régime non-linéaire du laser. On voit que même le régime bien vérifié dans le cas des cavités FP $I_{\text{seuil}} \propto {}^{1}/_{L}$ (cf thèse d'Iryna Gozhyk [58]) ne fonctionne pas de manière mécanique. Aucune tendance n'est détectable, ni en fonction de l'aire de la famille, ni en fonction du paramètre ${}^{A}/_{P\sqrt{L}}$ présent dans la formule de trace pour les résonateurs ouverts.

Une plus grande variété de parallélogrammes aurait été nécessaire pour détecter des tendances claires. Il est toutefois assez difficile de ne pas tomber sur une géométrie particulière contenant une orbite que l'on n'attendait pas.

Annexe B

Données cubes de Saint-Petersbourg

Nous avons reçu les échantillons en provenance de Saint-Pétersbourg en deux séries.

B.1 Première série

La première série contenait 3 lames de microscope (A, B et C) contenant chacune 6 cubes (numérotés de 1 à 6). Le colorant est une rhodamine. Le tableau B.1 récapitule les données acquises.

B.2 Deuxième série

La deuxième série de cubes en DCM comprenait 11 lames de 6 cubes chacun. Seulement 8 cubes ont donné un spectre structuré : les six de la lame labellisée "tavA" et deux de la lame labellisée "tav20-". Sur une lame les cubes sont numérotés 11,12,13,21,22,23, le premier chiffre désignant la ligne et le deuxième la colonne.

Cube	L_x	L_y	L_z	$2L_x$	Diam. xy	gde diag.	$L_{opt}[\mu m]$	$\frac{L_{opt}}{n}[\mu m]$
A1	157	150	90	314	434.27	470.10	0	0
A2	146	135	100	292	397.7	445	517	329
A3	147	136	120	294	400	467	531	337
A4	147	137	110	294	401	458	491	312
A5	161	147	80	322	436	464	0	0
A6	152	142	90	304	416	453	1157	736
B1	120	131	30	140	355	360	1228	781
B2	116	129	30	232	346	352	607	386
B3	121	132	30	242	358	363	456	290
B4	121	131	32	242	356	362	474	301
B5	121	132	30	242	358	363	521	331
B6	120	130	40	240	353	362	613	390
C1	129	139	115	258	379	443	0	0
C2	131	139	125	262	382	456	657	418
C3	137	142	100	274	395	442	670	426
C4	135	144	115	270	395	570	1325	842
C5	137	140	90	274	391	431	670	426
C6	135	143	95	270	393	437	0	0

Figure B.1 – Longueurs mesurées pour les cubes de la première série de Saint-Pétersbourg. Acquisition dans la direction x ($\varphi = 0°$). FP x : orbite Fabry-Perot entre les deux faces de normales suivant x. Diam. xy : orbite diamant du carré dans un plan z =constante. gde. diag. : Longueur de deux fois la grande diagonale du parallélépipède droit. $\frac{L_{opt}}{n}[\mu m]$ chemin optique expérimental obtenu par transformée de Fourier des spectres en supposant $n = 1.572$ valeur fournie par l'ITMO. Lorque la TF ne faisait pas apparaître de longueur caractéristique on a rentré la valeur 0.

Cavité	L_x $[\mu m]$	L_y $[\mu m]$	L_z $[\mu m]$	FP x	diam. xy	gde diag.	$\frac{L_{opt}}{n}[\mu m]$
tavA 11	143	140	80	286	400.2	431.0	433.7
tavA 12	143	140	70	286	400.2	424.0	418.7
tavA 13	144	140	75	288	401.7	428.8	425.0
tavA 21	143	140	75	286	400.2	427.4	437.5
tavA 22	143	141	75	286	400.2	427.4	428.1
tavA 23	142	140	70	284	398.8	422.7	425.0
tav20- 12	149	156	100	298	431.4	475.6	443.7
tav20- 22	148	152	100	296	424.3	469.1	437.5

Figure B.2 – Longueurs mesurées pour les cubes de la deuxième série de Saint-Pétersbourg. Acquisition dans la direction x ($\varphi = 0^\circ$). FP x : orbite Fabry-Perot entre les deux faces de normales suivant x. Diam. xy : orbite diamant du carré dans un plan z =constante. gde. diag. : Longueur de deux fois la grande diagonale du parallélépipède droit. $\frac{L_{opt}}{n}[\mu m]$ chemin optique expérimental obtenu par transformée de Fourier des spectres en supposant $n = 1.572$ valeur fournie par l'ITMO. Lorque la TF ne faisait pas apparaître de longueur caractéristique on a rentré la valeur 0.

Annexe C

Calcul des polarisations de l'orbite 3D du cube

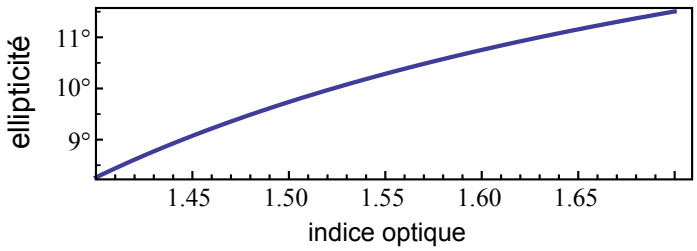


Figure C.1 – En fonction de l'indice de matériau, ellipticité des modes propres associés à l'orbite de la figure 7.1, se réfléchissant une fois sur chacune des six faces.

Le programme suivant écrit pour Mathematica calcule les polarisations possibles pour l'orbite "3D" décrite pour le cube au chapitre 7.1. On trouve deux états de polarisations elliptiques croisées dont l'ellipticité est donnée par la figure C.1.

(Debug) In[89]:=

```
<< VectorAnalysis` (* pour charger les fonctions crossproduct et dotproduct *)
epa = Exp[I * dpa];
(* facteur de phase pour la composante du champ parallele au plan d'incidence*)
epe = Exp[I * dpe];(* facteur de phase pour la
 composante du champ perpendiculaire au plan d'incidence*)

u = Normalize[{1, 1, 1}]; (* directiond e propagation du premier rayon *)
E0 = {E0x, E0y, E0z}; (* un champ phyique doit etre orthogonal à n,
c'est à dire EOx+EOy+EOz=0  *)
```

(Debug) In[94]:=

```
ks = { Normalize[{1, 1, 1}],
               Normalize[{1, 1, -1}],
               Normalize[{1, -1, -1}],
               Normalize[{-1, -1, -1}],
               Normalize[{-1, -1, 1}],
               Normalize[{-1, 1, 1}]  ,
               Normalize[{1, 1, 1}]    };
(* définit la liste des directions de propagation *)
ns = List[ {0, 0, 1} , {0, 1, 0} , {1, 0, 0}, {0, 0, -1}, {0, -1, 0}, {-1, 0, 0}];
(* définit la liste des vecteurs normaux aux surfaces de réflexion *)
```

(Debug) In[96]:=

```
For[ i = 1; n = 0; eta = 0; zeta = 0;  Ee = E0,  i < 7, i++, (* somme sur les 6 réflexions *)
 n = ns[[i]] ; (* vecteur normal à la face de réflexions *)
 eta = Normalize[CrossProduct[ks[[i]], n]] ; (* vecteur normal au plan d'incidence *)
 zeta = CrossProduct[n, eta];
 (* vecteur tangent à la fois dans la surface de réflexion et le plan d'incidence *)
 Print[MatrixForm[{zeta, n, eta}] ] ; (* pour vérifier qu'on ala bonne géométrie *)
 Ee = Projection[Ee, eta, Dot] * epe +
   Projection[Ee, zeta, Dot] * epa + Projection[Ee, n, Dot] * (-epa);
 (* opération sur les trois composantes du champ, suivant respectivement n ,
 eta et zeta *)
 Print[Simplify[Ee.ks[[i + 1]]]] (* pour vérifier que le champ après
  réflexion est toujours orthogonal à la directiond e propagation *)
]
Simplify[Ee];
```

(Debug) In[98]:=

```
A = CoefficientArrays[{Ee[[1]] == 0, Ee[[2]] == 0, Ee[[3]] == 0}, {E0x, E0y, E0z}];
(* transforme l'expression en système linéaire*)
AA = Normal[A[[2]]];(* la matrice du sytème linéaire *)

x = ArcCos[1 / Sqrt[3]]; (* l'angle d'incidence des rayons sur les faces *)
f[a_] := (
  dpaa = N[-Pi - 2 * ArcTan[a^2 * Tan[x] * Sqrt[1 - 1 / (a * Sin[x])^2] ]];
  (* la valeur numérique du coeffient dpa*)
  dpee = N[    -2 * ArcTan[     Tan[x] * Sqrt[1 - 1 / (a * Sin[x])^2] ]];
  (* la valeur numérique du coefficient dpe*)
  BB = AA /. {dpa → dpaa, dpe → dpee}; (* la matrice avec des valeurs numériques*)
  BBB = Eigensystem[BB]; (* calcule les valeurs propres et vecteurs propres*)
  (* les trois valeurs propres sont de module 1 *)
  ord = Ordering[Arg[BBB[[1]]]]; (* trie les vap suivant leur argument *)
  vps = Sort[Arg[BBB[[1]]]]; (* trie les vep en fonction *)
 )
VPARGS[a_] := (f[a]; Return[vps]) (* fonction retournant les vap*)
VECTS[a_] := (f[a]; vs = Chop[BBB[[2]]][[ord]]; Return[vs])
(* fonction retournant les vep*)

z = 1.50; (* exemple de valeur d'indice*)
vects = VECTS[z];
vpargs = VPARGS[z];
Do[Print[vpargs[[i]], "         ", Chop[vects[[i]].u],
  "         ", Chop[Normalize[vects[[i]] / vects[[i]][[2]]]], "__"]
 , {i, 1, 3}]
(* affiche des informations sur la solution pour un indice = z :
  arguments de la vap,    pdt scalaire du vep avec u ,
vep de normalisé tel que sa deuxième coordonnée est réelle*)
```

```
-3.11827          0          {-0.402369 + 0.119573 i, 0.804738, -0.402369 - 0.119573 i}__

-0.30142          1.          {0.57735, 0.57735, 0.57735}__

0.883406          0          {-0.0690356 - 0.696923 i, 0.138071, -0.0690356 + 0.696923 i}__
```

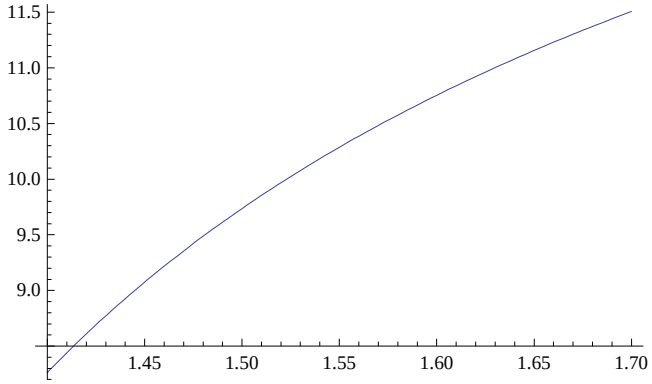
(Debug) In[110]:=

```
ell[a_] :=
  (
   (* calcule l'excentricité de la polarisation elliptiques des modes propres *)
   f[a];
   vs = Chop[BBB[[2]]];
   sortie = {0, 0};
   For[i = 1; j = 1, i < 4, i++,
    v = vs[[i]];
    If[Chop[v.u] == 0,
     v = Chop[Normalize[v / v[[2]]]];
     sortie[[j]] = ArcTan[Abs[Chop[v.p1]] / Abs[Chop[v.p2]]] * 180 / Pi;
     j = j + 1,
     Continue]];
   sortie = Sort[sortie];
   Return[sortie]
  );
```

(Debug) In[111]:=

```
Plot[ell[a][[1]], {a, 1.4, 1.7},
 PlotPoints → 100](*,Mesh→All, PlotStyle→ None,MeshStyle→PointSize[Medium]]*)
(* trace excentricite en fonction de l'indice du résonateur *)
```

(Debug) Out[111]=



Bibliographie

[1] P.P. Sorokin and J.R. Lankard. Stimulated emission observed from an organic dye, chloroaluminum phthalocyanine. *IBM Journal of Research and Development*, 10(2) :162–163, 1966.

[2] Fritz Peter Schafer. Dye lasers. 1990.

[3] Qibing Pei, Gang Yu, Chi Zhang, Yang Yang, and Alan J. Heeger. Polymer light-emitting electrochemical cells. *Science*, 269(5227) :1086–1088, 1995.

[4] Sébastien Chénais and Sebastien Forget. Recent advances in solid-state organic lasers. *Polymer International*, 61(3) :390–406, 2012.

[5] Hadi Rabbani-Haghighi, Sébastien Forget, Sébastien Chénais, and Alain Siove. Highly efficient, diffraction-limited laser emission from a vertical external-cavity surface-emitting organic laser. *Optics Letters*, 35(12) :1968–1970, June 2010.

[6] Shi-Xiong Qian, Judith B. Snow, Huey-Ming Tzeng, and Richard K. Chang. Lasing droplets : highlighting the liquid-air interface by laser emission. *Science*, 231(4737) :486–488, 1986.

[7] E. Krioukov, D. J. W. Klunder, A. Driessen, J. Greve, and C. Otto. Sensor based on an integrated optical microcavity. *Optics letters*, 27(7) :512–514, 2002.

[8] Andrea M. Armani and Kerry J. Vahala. Heavy water detection using ultra-high-q microcavities. *Optics Letters*, 31(12) :1896–1898, 2006.

[9] Martin T. Hill, Harmen JS Dorren, Tjibbe De Vries, Xaveer JM Leijtens, Jan Hendrik Den Besten, Barry Smalbrugge, Yok-Siang Oei, Hans Binsma, Giok-Djan Khoe, and Meint K. Smit. A fast low-power optical memory based on coupled micro-ring lasers. *Nature*, 432(7014) :206–209, 2004.

[10] Alfred Driessen, Ronald Dekker, Mart BJ Diemeer, Douwe H. Geuzebroek, Hugo JWM Hoekstra, Edwin J. Klein, and Arne Leinse. Microresonators as promising building blocks for VLSI photonics. In *Congress on Optics and Optoelectronics*, page 59560Q–59560Q, 2005.

[11] V. Sandoghdar, F. Treussart, J. Hare, V. Lefevre-Seguin, J. M. Raimond, and S. Haroche. Very low threshold whispering-gallery-mode microsphere laser. *Physical Review-Section A-Atomic Molecular and Optical Physics*, 54(3) :R1777, 1996.

[12] Frank Vollmer and Stephen Arnold. Whispering-gallery-mode biosensing : label-free detection down to single molecules. *Nature methods*, 5(7) :591–596, 2008.

[13] Sébastien Forget, Sébastien Chénais, and Alain Siove. Organic light emitting diodes. In *Photochemistry and Photophysics of Polymeric Materials*, pages 309–350. John Wiley & Sons, March 2010.

[14] Shih-Chun Lo, Nigel AH Male, Jonathan PJ Markham, Steven W. Magennis, Paul L. Burn, Oleg V. Salata, and Ifor DW Samuel. Green phosphorescent dendrimer for light-emitting diodes. *Advanced Materials*, 14(13-14) :975–979, 2002.

[15] S. Bittner. *Wave-dynamical properties of dielectric resonators investigated with microwaves*. PhD thesis, Technischen Universitat Darmstadt, Darmstadt, 2010.

[16] Achim Richter. *Playing billiards with microwaves—quantum manifestations of classical chaos*. Springer, 1999.

[17] H. E. Türeci, Harald GL Schwefel, Ph Jacquod, and A. Douglas Stone. Modes of wave-chaotic dielectric resonators. *Progress in Optics*, 47 :75–137, 2005.

[18] Harald GL Schwefel, Nathan B. Rex, Hakan E. Tureci, Richard K. Chang, A. Douglas Stone, Tahar Ben-Messaoud, and Joseph Zyss. Dramatic shape sensitivity of directional emission patterns from similarly deformed cylindrical polymer lasers. *JOSA B*, 21(5) :923–934, 2004.

[19] Mélanie Lebental. *Chaos quantique et micro-lasers organiques*. Thèse de doctorat de l'ENS de cachan, Université Paris Sud - Paris XI, Cachan, September 2007.

[20] Mélanie Lebental, Eugene Bogomolny, and Joseph Zyss. Organic micro-lasers : A new avenue onto wave chaos physics. In *Practical applications of microresonators in optics and photonics*, pages 317–354. CRC Press, 2010.

[21] M. Lebental, N. Djellali, C. Arnaud, J. S. Lauret, J. Zyss, R. Dubertrand, C. Schmit, and E. Bogomolny. Inferring periodic orbits from spectra of simply shaped microlasers. *Physical Review A*, 76(2) :023830, 2007.

[22] Hakan E. Türeci, A. Douglas Stone, and Li Ge. Theory of the spatial structure of nonlinear lasing modes. *Physical Review A*, 76(1) :013813, 2007.

[23] Hakan E Türeci, A Douglas Stone, Li Ge, Stefan Rotter, and Robert J Tandy. Ab initio self-consistent laser theory and random lasers. *Nonlinearity*, 22(1) :C1–C18, January 2009.

[24] Li Ge, Y. D. Chong, and A. Douglas Stone. Steady-state ab initio laser theory : Generalizations and analytic results. *Physical Review A*, 82(6) :063824, December 2010.

[25] Q. H. Song, L. Ge, A. D. Stone, H. Cao, J. Wiersig, J.-B. Shim, J. Unterhinninghofen, W. Fang, and G. S. Solomon. Directional laser emission from a wavelength-scale chaotic microcavity. *Physical review letters*, 105(10) :103902, 2010.

[26] David Laurent, Olivier Legrand, Patrick Sebbah, Christian Vanneste, and Fabrice Mortessagne. Localized modes in a finite-size open disordered microwave cavity. *Physical Review Letters*, 99(25) :253902, December 2007.

[27] J. Andreasen, A. A. Asatryan, L. C. Botten, M. A. Byrne, H. Cao, L. Ge, L. Labonté, P. Sebbah, A. D. Stone, H. E. Türeci, and C. Vanneste. Modes of random lasers. *Advances in Optics and Photonics*, 3(1) :88–127, March 2011.

[28] N. Bachelard, J. Andreasen, S. Gigan, and P. Sebbah. Taming random lasers through active spatial control of the pump. *Arxiv preprint arXiv :1202.4404*, 2012.

[29] P. K. Tien. Light waves in thin films and integrated optics. *Applied Optics*, 10(11) :2395–2413, 1971.

[30] Sami Franssila. *Introduction to microfabrication*. Wiley. com, 2010.

[31] Shoji Maruo, Osamu Nakamura, and Satoshi Kawata. Three-dimensional microfabrication with two-photon-absorbed photopolymerization. *Optics Letters*, 22(2) :132–134, January 1997.

[32] Brian H. Cumpston, Sundaravel P. Ananthavel, Stephen Barlow, Daniel L. Dyer, Jeffrey E. Ehrlich, Lael L. Erskine, Ahmed A. Heikal, Stephen M. Kuebler, I.-Y. Sandy Lee, Dianne McCord-Maughon, Jinqui Qin, Harald Röckel, Mariacristina Rumi, Xiang-Li Wu, Seth R. Marder, and Joseph W. Perry. Two-photon polymerization initiators for three-dimensional optical data storage and microfabrication. *Nature*, 398(6722) :51–54, March 1999.

[33] Satoshi Kawata, Hong-Bo Sun, Tomokazu Tanaka, and Kenji Takada. Finer features for functional microdevices. *Nature*, 412(6848) :697–698, August 2001.

[34] M. Deubel, M. Wegener, S. Linden, G. Von Freymann, and S. John. 3D-2D-3D photonic crystal heterostructures fabricated by direct laser writing. *Optics letters*, 31(6) :805–807, 2006.

[35] Shuhui Wu, Jesper Serbin, and Min Gu. Two-photon polymerisation for three-dimensional micro-fabrication. *Journal of Photochemistry and Photobiology A : Chemistry*, 181(1) :1–11, July 2006.

[36] Sabrina Schlie, Anaclet Ngezahayo, Aleksandr Ovsianikov, Tilman Fabian, Hans-Albert Kolb, Heinz Haferkamp, and Boris N. Chichkov. Three-dimensional cell growth on structures fabricated from ORMOCER® by two-photon polymerization technique. *Journal of Biomaterials Applications*, 22(3) :275–287, January 2007. PMID : 17494962.

[37] Costas M. Soukoulis and Martin Wegener. Past achievements and future challenges in the development of three-dimensional photonic metamaterials. *Nature Photonics*, 5(9) :523–530, 2011.

[38] John David Jackson and Ronald F. Fox. Classical electrodynamics. *American Journal of Physics*, 67 :841, 1999.

[39] D. S. Chemla and J. Zyss. *Nonlinear Optical Properties of Organic Molecules and Crystals. vol. 1 and 2*. Academic Press, New York, 1987.

[40] R. Dubertrand. *Deux applications du chaos quantique : etude des fonctions d'ondes aleatoires via SLE et description de cavites dielectriques*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, September 2008.

[41] J. Wiersig. Boundary element method for resonances in dielectric microcavities. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, 5 :53, 2003.

[42] Elena I. Smotrova, Victor Tsvirkun, Iryna Gozhyk, Clément Lafargue, Christian Ulysse, Melanie Lebental, and Alexander I. Nosich. Spectra, thresholds, and modal fields of a kite-shaped microcavity laser. *Journal of the Optical Society of America B*, 30(6) :1732–1742, June 2013.

[43] David Colton. Inverse acoustic and electromagnetic scattering theory. *Inverse Problems*, 47 :67–109, 2003.

[44] Lei Wang, J. Allen Cox, and Avner Friedman. Modal analysis of homogeneous optical waveguides by the boundary integral formulation and the nyström method. *Journal of the Optical Society of America A*, 15(1) :92–100, January 1998.

[45] R. Dubertrand, E. Bogomolny, N. Djellali, M. Lebental, and C. Schmit. Circular dielectric cavity and its deformations. *Arxiv preprint arXiv :0708.3918*, 2007.

[46] S. Bittner, E. Bogomolny, B. Dietz, M. Miski-Oglu, and A. Richter. Experimental observation of localized modes in a dielectric square resonator. *arXiv :1305.2049*, May 2013.

[47] Birgitta Bernhardt, Julien Mandon, Patrick Jacquet, Marion Jacquey, Akira Ozawa, Ronald Holzwarth, Guy Guelachvili, T. W. Hansch, and Nathalie Picque. Laser frequency combs for molecular fingerprinting. In *LEOS Annual Meeting Conference Proceedings, 2009. LEOS'09. IEEE*, page 619–620, 2009.

[48] C. Y. Wang, T. Herr, P. Del'Haye, A. Schliesser, J. Hofer, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, N. Picqué, and T. J. Kippenberg. Mid-infrared optical frequency combs based on crystalline microresonators. *arXiv preprint arXiv :1109.2716*, 2011.

[49] Andreas Hugi, Gustavo Villares, Stéphane Blaser, H. C. Liu, and Jérôme Faist. Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser. *Nature*, 492(7428) :229–233, December 2012.

[50] Harald GL Schwefel, A. Douglas Stone, and Hakan E. Tureci. Polarization properties and dispersion relations for spiral resonances of a dielectric rod. *JOSA B*, 22(11) :2295–2307, 2005.

[51] L. Kaplan and E. J. Heller. Linear and nonlinear theory of eigenfunction scars. *Annals of Physics*, 264(2) :171–206, 1998.

[52] Eugene Bogomolny and Charles Schmit. Structure of wave functions of pseudointegrable billiards. *Physical review letters*, 92(24) :244102, 2004.

[53] E. Bogomolny, B. Dietz, T. Friedrich, M. Miski-Oglu, A. Richter, F. Schäfer, and C. Schmit. First experimental observation of superscars in a pseudointegrable barrier billiard. *Physical review letters*, 97(25) :254102, 2006.

[54] Matthias Brack and Rajat K. Bhaduri. *Semiclassical physics*, volume 14. Addison-Wesley Reading, 1997.

[55] Eric J. Heller. Bound-state eigenfunctions of classically chaotic hamiltonian systems : Scars of periodic orbits. *Physical Review Letters*, 53(16) :1515–1518, 1984.

[56] G. D. Chern, A. W. Poon, R. K. Chang, T. Ben-Messaoud, O. Alloschery, E. Toussaere, J. Zyss, and S.-Y. Kuo. Direct evidence of open ray orbits in a square two-dimensional resonator of dye-doped polymers. *Optics letters*, 29(14) :1674–1676, 2004.

[57] A. W. Poon, F. Courvoisier, and R. K. Chang. Multimode resonances in square-shaped optical microcavities. *Optics Letters*, 26(9) :632–634, May 2001.

[58] Iryna Gozhyk. *Les phénomènes lies aux polarisation et gain dans micro-lasers en polymère dopes par colorant organique.* PhD thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, October 2012.

[59] E. Bogomolny, R. Dubertrand, and C. Schmit. Trace formula for dielectric cavities : General properties. *Physical Review E*, 78(5) :056202, 2008.

[60] Martin C. Gutzwiller. Periodic orbits and classical quantization conditions. *Journal of Mathematical Physics*, 12(3) :343–358, March 1971.

[61] E. Bogomolny, N. Djellali, R. Dubertrand, I. Gozhyk, M. Lebental, C. Schmit, C. Ulysse, and J. Zyss. Trace formula for dielectric cavities. II. regular, pseudointegrable, and chaotic examples. *Physical Review E*, 83(3) :036208, 2011.

[62] Y. F. Chen, Y. T. Yu, P. Y. Chiang, P. H. Tuan, Y. J. Huang, H. C. Liang, and K. F. Huang. Manifestation of quantum-billiard eigenvalue statistics from subthreshold emission of vertical-cavity surface-emitting lasers. *Physical Review E*, 83(1) :016208, January 2011.

[63] O. L. Antipov, A. S. Kuzhelev, and D. V. Chausov. Nondegenerate four-wave-mixing measurements of a resonantly induced refractive-index grating in a nd : YAG amplifier. *Optics letters*, 23(6) :448–450, 1998.

[64] O. L. Antipov, S. I. Belyaev, A. S. Kuzhelev, and D. V. Chausov. Resonant two-wave mixing of optical beams by refractive-index and gain gratings in inverted nd : YAG. *JOSA B*, 15(8) :2276–2282, 1998.

[65] J Sturm, S Tasch, A Niko, G Leising, E Toussaere, J Zyss, T.C Kowalczyk, K.D Singer, U Scherf, and J Huber. Optical anisotropy in thin films of a blue electroluminescent conjugated polymer. *Thin Solid Films*, 298(1–2) :138–142, April 1997.

[66] Elena Yu. Schmidt, Nadezhda V. Zorina, Marina Yu. Dvorko, Nadezhda I. Protsuk, Kseniya V. Belyaeva, Gilles Clavier, Rachel Méallet-Renault, Thanh T. Vu, Al'bina I. Mikhaleva, and Boris A. Trofimov. A general synthetic strategy for the design of new BODIPY fluorophores based on pyrroles with polycondensed aromatic and metallocene substituents. *Chemistry – A European Journal*, 17(11) :3069–3073, 2011.

[67] Sergii Lozenko. *Capteur d'ions lourds métalliques à base de micro-lasers organiques.* PhD thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, November 2011.

[68] S. Lozenko, N. Djellali, I. Gozhyk, C. Delezoide, J. Lautru, C. Ulysse, J. Zyss, and M. Lebental. Enhancing performance of polymer-based microlasers by a pedestal geometry. *Journal of Applied Physics*, 111(10) :103116–103116, 2012.

[69] Tahar Ben Messaoud. *Effet laser en microcavités symétriques et asymétriques à base de polymère luminescent*. PhD thesis, Cachan, Ecole normale supérieure, January 2003.

[70] Clément Lafargue, Stefan Bittner, Sergii Lozenko, Joseph Lautru, Joseph Zyss, Christian Ulysse, Christophe Cluzel, and Mélanie Lebental. Three-dimensional emission from organic fabry-perot microlasers. *Applied Physics Letters*, 102(25) :251120–251120–4, June 2013.

[71] Maxime Boudreau. Dynamique d'émission de micro-lasers organiques. stage de m2, Université de Moncton, LPQM, ENS de Cachan, July 2012.

[72] I. Gozhyk, G. Clavier, R. Méallet-Renault, M. Dvorko, R. Pansu, J.-F. Audibert, A. Brosseau, C. Lafargue, V. Tsvirkun, S. Lozenko, S. Forget, S. Chénais, C. Ulysse, J. Zyss, and M. Lebental. Polarization properties of solid-state organic lasers. *Physical Review A*, 86(4) :043817, October 2012.

[73] Nadia Djellali. *Vers le contrôle géométrique de l'émission de microcavités laser à base de polymères*. PhD thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, December 2009.

[74] Y. F. Chen and K. F. Huang. Vortex formation of coherent waves in nonseparable mesoscopic billiards. *Physical Review E*, 68(6) :066207, December 2003.

[75] Ross C. C. Chen, Y. T. Yu, Y. J. Huang, C. C. Chen, Y. F. Chen, and K. F. Huang. Exploring the origin of the directional emission from a microcavity with a large-aperture surface-emitting laser. *Optics Letters*, 34(12) :1810–1812, June 2009.

[76] C. C. Chen, K. W. Su, Y. F. Chen, and K. F. Huang. Various high-order modes in vertical-cavity surface-emitting lasers with equilateral triangular lateral confinement. *Optics Letters*, 33(5) :509–511, March 2008.

[77] Eugene Bogomolny and Charles Schmit. Superscars. *arXiv preprint nlin/0402017*, 2004.

[78] Paolo Bellomo and T. Uzer. State scarring by "ghosts" of periodic orbits. *Physical Review E*, 50(3) :1886–1893, September 1994.

[79] Eugene Bogomolny, Nicolas Pavloff, and Charles Schmit. Diffractive corrections in the trace formula for polygonal billiards. *Physical Review E*, 61(4) :3689, 2000.

[80] R. W. Robinett. Isolated versus nonisolated periodic orbits in variants of the two-dimensional square and circular billiards. *Journal of Mathematical Physics*, 40(1) :101–122, January 1999.

[81] H. C. Chang, G. Kioseoglou, E. H. Lee, J. Haetty, M. H. Na, Y. Xuan, H. Luo, A. Petrou, and A. N. Cartwright. Lasing modes in equilateral-triangular laser cavities. *Physical Review A*, 62(1) :013816, June 2000.

[82] Junho Yoon, Sung-Jae An, Kwanghae Kim, Ja Kang Ku, and O'Dae Kwon. Resonance spectrum of a three-dimensional photonic quantum ring laser with an equilateral triangle microcavity. *Applied Optics*, 46(15) :2969–2974, May 2007.

[83] G. M. Wysin. Resonant mode lifetimes due to boundary wave emission in equilateral triangular dielectric cavities. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, 7(9) :502, 2005.

[84] G. M. Wysin. Electromagnetic modes in dielectric equilateral triangle resonators. *JOSA B*, 23(8) :1586–1599, 2006.

[85] Shi-Jiang Wang, Yue-De Yang, and Yong-Zhen Huang. Analysis of mode characteristics for equilateral-polygonal resonators with a center hole. *Journal of the Optical Society of America B*, 26(12) :2449–2454, December 2009.

[86] M. S. Kurdoglyan, Soo-Young Lee, Sunghwan Rim, and Chil-Min Kim. Unidirectional lasing from a microcavity with a rounded isosceles triangleshape. *Optics Letters*, 29(23) :2758–2760, December 2004.

[87] Svetlana V. Boriskina, Trevor M. Benson, Phillip Sewell, and Alexander I. Nosich. Optical modes in 2-d imperfect square and triangular microcavities. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 41(6) :857–862, 2005.

[88] Alain Grigis. Triangulation du tore de dimension 4. *Geometriae Dedicata*, 69(2) :121–139, February 1998.

[89] Richard Kenyon and John Smillie. Billiards on rational-angled triangles. *Commentarii Mathematici Helvetici*, 75(1) :65–108, 2000.

[90] M. Boshernitzan, G. Galperin, T. Krüger, and S. Troubetzkoy. Periodic billiard orbits are dense in rational polygons. *Transactions of the American Mathematical Society*, 350(9) :3523–3536, 1998.

[91] E. Gutkin. Two applications of calculus to triangular billiards. *The American mathematical monthly*, 104(7) :618–622, 1997.

[92] R. E. Schwartz. Obtuse triangular billiards i : near the (2, 3, 6) triangle. *Experimental Mathematics*, 15(2) :161–182, 2006.

[93] Yue-De Yang, Yong-Zhen Huang, and Shi-Jiang Wang. Mode analysis for equilateral-triangle-resonator microlasers with metal confinement layers. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 45(12) :1529–1536, 2009.

[94] Yue-De Yang and Yong-Zhen Huang. Symmetry analysis and numerical simulation of mode characteristics for equilateral-polygonal optical microresonators. *Physical Review A*, 76(2) :023822, August 2007.

[95] B. Cipra, R. M. Hanson, and A. Kolan. Periodic trajectories in right-triangle billiards. *Physical Review E*, 52(2) :2066, 1995.

[96] Thomas Gorin. Generic spectral properties of right triangle billiards. *Journal of Physics A : Mathematical and General*, 34(40) :8281, 2001.

[97] W. P. Hooper. Periodic billiard paths in right triangles are unstable. *Geometriae Dedicata*, 125(1) :39–46, 2007.

[98] Laura MacGuire. Tilted fabry-perot cavities. master thesis, University of Michigan, LPQM, ENS de Cachan, July 2012.

[99] F Kajzar, J Messier, IR Girling, and IR Peterson. Optical third-harmonic generation from langmuir-blodgett merocyanine dye thin films. *Electronics Letters*, 22(23) :1230–1231, 1986.

[100] JL Bredas, C Adant, P Tackx, Andre Persoons, and BM Pierce. Third-order nonlinear optical response in organic materials : theoretical and experimental aspects. *Chemical reviews*, 94(1) :243–278, 1994.

[101] Marek Samoc, Anna Samoc, Barry Luther-Davies, Zhenan Bao, Luping Yu, Bing Hsieh, and Ullrich Scherf. Femtosecond z-scan and degenerate four-wave mixing measurements of real and imaginary parts of the third-order nonlinearity of soluble conjugated polymers. *JOSA B*, 15(2) :817–825, 1998.

[102] Roberto Paiella, Federico Capasso, Claire Gmachl, Deborah L. Sivco, James N. Baillargeon, Albert L. Hutchinson, Alfred Y. Cho, and H. C. Liu. Self-mode-locking of quantum cascade lasers with giant ultrafast optical nonlinearities. *Science*, 290(5497) :1739–1742, January 2000.

[103] V. M. Baev, T. Latz, and P. E. Toschek. Laser intracavity absorption spectroscopy. *Applied Physics B*, 69(3) :171–202, 1999.

[104] Tobias Grossmann, Simone Schleede, Mario Hauser, Torsten Beck, Michael Thiel, Georg von Freymann, Timo Mappes, and Heinz Kalt. Direct laser writing for active and passive high-q polymer microdisks on silicon. *Optics Express*, 19(12) :11451, May 2011.

[105] Roger Balian and Bertrand Duplantier. Electromagnetic waves near perfect conductors. i. multiple scattering expansions. distribution of modes. *Annals of Physics*, 104(2) :300–335, April 1977.

[106] Georges Bruhat. *Cours de physique generale a l'usage de l'enseignement superieur scientifique et technique : Optique*, volume -1. Paris : Masson, 1965, 6ieme ed., rev. et compl., edited by kastler, a. (6ieme ed.) edition, 1965.

[107] A. Doraiswamy, C. Jin, R.J. Narayan, P. Mageswaran, P. Mente, R. Modi, R. Auyeung, D.B. Chrisey, A. Ovsianikov, and B. Chichkov. Two photon induced polymerization of organic–inorganic hybrid biomaterials for microstructured medical devices. *Acta Biomaterialia*, 2(3) :267–275, May 2006.

[108] Zhao-Pei Liu, Xue-Feng Jiang, Yan Li, Yun-Feng Xiao, Li Wang, Jin-Li Ren, Shi-Jie Zhang, Hong Yang, and Qihuang Gong. High-q asymmetric polymer microcavities directly fabricated by two-photon polymerization. *Applied Physics Letters*, 102(22) :221108–221108–4, 2013.

[109] Sébastien Bidault, Jérôme Gouya, Sophie Brasselet, and Joseph Zyss. Encoding multipolar polarization patterns by optical poling in polymers : towards nonlinear optical memories. *Optics Express*, 13(2) :505–510, January 2005.

[110] Cécile Martineau. *Polymérisation par absorption à deux photons : ingénierie moléculaire d'amorceurs et applications à la microfabrication à trois dimensions.* PhD thesis, Lyon, École normale supérieure (sciences), January 2003.

[111] Irène Wang. *Matériaux organiques microstructurés et optique non linéaire : 1. Nanocristaux organiques en matrice sol-gel pour l'optique quadratique, 2. Polymérisation initiée par absorption à deux photons pour la microfabrication 3D.* PhD thesis, Grenoble 1, January 2002.

[112] A. Pikulin and N. Bityurin. Spatial confinement of percolation : Monte carlo modeling and nanoscale laser polymerization. *Physical Review B*, 82(8) :085406, August 2010.

[113] Djibril Faye. *Détection fluorimétrique en circuit microfluidique des ions Pb2+, Hg2+ et Cd2+ en milieu aqueux*. PhD thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, November 2011.

[114] Eirini Papagiakoumou, Francesca Anselmi, Aurélien Bègue, Vincent de Sars, Jesper Glückstad, Ehud Y. Isacoff, and Valentina Emiliani. Scanless two-photon excitation of channelrhodopsin-2. *Nature methods*, 7(10) :848–854, 2010.

[115] G. Galperin and D. Zvonkine. Periodic billiard trajectories in right triangles and right-angled tetrahedra. *Regular and Chaotic Dynamics*, 8(1) :29–44, 2003.

[116] N. Bedaride and M. Rao. Regular simplex and periodic billiard orbit. *Arxiv preprint arXiv :1112.2370*, 2011.

[117] Nicolas Bedaride. Periodic billiard trajectories in polyhedra. *arXiv preprint arXiv :1104.1051*, 2011.

[118] Anshuman J. Das, Clément Lafargue, Mélanie Lebental, Joseph Zyss, and K. S. Narayan. Three-dimensional microlasers based on polymer fibers fabricated by electrospinning. *APL : Organic Electronics and Photonics*, 4(12) :281–281, December 2011.

[119] W. E. Teo and S. Ramakrishna. A review on electrospinning design and nanofibre assemblies. *Nanotechnology*, 17(14) :R89, 2006.

[120] M. Sumetsky. Whispering-gallery-bottle microcavities : the three-dimensional etalon. *Optics Letters*, 29(1) :8–10, January 2004.

[121] M. Pöllinger, D. O'Shea, F. Warken, and A. Rauschenbeutel. Ultrahigh-q tunable whispering-gallery-mode microresonator. *Physical Review Letters*, 103(5) :053901, July 2009.

[122] M. Sumetsky. Localization of light on a cone : theoretical evidence and experimental demonstration for an optical fiber. *Optics Letters*, 36(2) :145–147, January 2011.

[123] David Ulbricht. Caractérisation de microlasers tridimensionnels. Stage de licence, Université Paris-Sud, LPQM, ENS de Cachan, July 2012.

RESUME DE LA THESE : Cette thèse est consacrée à l'étude fondamentale et au développement de micro-sources lasers en matériaux organiques, susceptibles de débouchés dans les technologies de l'information et les biotechnologies. Nous avons exploré l'aspect tridimensionnel (3D) de ces lasers, tant en termes de fabrication que de caractérisation. Concernant la fabrication, nous avons fait évoluer la géométrie des microlasers, auparavant quasi-bidimensionnelle (2D, issue de films fins) vers une géométrie 3D (comme des cubes). Des procédés de lithographie UV épaisse ou d'écriture directe au laser par photo-polymérisation à 2 photons ont été adaptés pour réaliser des formes sur mesure de micro-résonateurs optiques incluant un colorant. Afin d'étudier l'émission très anisotrope de ces lasers, nous avons conçu et développé un outil original, appelé scanner à angle solide (SAS), permettant de collecter l'émission d'un microlaser dans toutes les directions du demi-espace qui le surplombe, avec une grande précision. Le SAS a permis de constater que les microlasers 2D émettent principalement hors-plan. Un modèle a été développé pour expliquer cet effet et émettre des prédictions. D'autre part, différentes formes de microlasers 2D ont été analysées, à partir de leurs directions et spectres d'émission, grâce au formalisme semi-classique des orbites périodiques. En particulier, une orbite diffractive a été observée dans les triangles, ce qui ouvre la voie à une étude systématique de la diffraction par un coin diélectrique. Nous apportons également une explication à la directionalité de l'émission par des microlasers carrés. Pour finir, les premières caractérisations 3D de micro-lasers 3D ont été réalisées.

THREE-DIMENSIONAL MICRO-LASERS MADE OF ORGANIC MATERIALS : TECHNOLOGY AND PHYSICS

ABSTRACT : We investigate in this thesis fundamental and applied properties of solid-state laser micro-sources made of organic materials, with possible applications to information and biosensing technologies. We explored three-dimensional features pertaining both to fabrication and characterization of such lasers. Regarding the fabrication, we extended the geometry of organic microlasers, previously restricted to quasi-two-dimensional (2D) as from thin film patterning, onto full 3D structures such as cubes. Deep UV lithography and direct laser writing with two-photon-polymerization processes have been adapted in order to fabricate customized shapes, which incorporate a laser dye. To study the highly anisotropic emission from these lasers, we conceived a new set-up, called solid angle scanner (SAS), allowing for high angular accuracy detection of the emission from a micro-laser in all directions in space. When applied to 2D micro-lasers, SAS measurements allowed us to observe that they emit mainly out of their plane. We developed a model to account for this effect and infer predictions. Moreover, various shapes of 2D micro-lasers have been investigated, through the angular and spectral features of their emission, with experiments satisfactorily connected to a semi-classical theoretical approach of periodic orbits. We paid special attention to triangular shapes, for which a diffractive orbit was observed, opening the way to the study of diffraction by a dielectric corner. We also propose an explanation for the directionality of the emission by square micro-lasers. Finally, 3D characterizations of solid state 3D organic micro-lasers are presented for the first time to our knowledge.