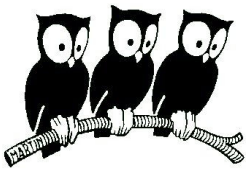
THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité: **Physique de la Matière Condensée**

Ecole Doctorale: **397**

préparée au **Laboratoire Pierre Aigrain**

Département de physique de l'Ecole Normale Supérieure



présentée par

JEAN MAYSONNAVE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de thèse:

Dynamique ultrarapide de lasers à cascade quantique Terahertz - Le graphène comme émetteur Terahertz

soutenue le 19 juin 2014 devant le jury composé de:

M. Gaël MOURET	Rapporteur
M. Giacomo SCALARI	Rapporteur
Mme Anne AMY-KLEIN	Examinatrice
Mme Agnès MAITRE	Examinatrice
M. Carlo SIRTORI	Examinateur
M. Sukhdeep DHILLON	Encadrant de thèse
Mme Isabelle SAGNES	Membre invité
M. Jérôme TIGNON	Directeur de thèse

A ma mère,

REMERCIEMENTS

Avant tout, un grand merci à l'ensemble du jury pour avoir examiné mon travail de thèse : Gaël Mouret et Giacomo Scalari qui ont analysé en détails mon manuscrit, ainsi que Anne Amy-Klein, Agnès Maître, Isabelle Sagnes et Carlo Sirtori qui ont jugé mon travail lors de la soutenance.

Mon arrivée à l'Ecole Normale s'est faite en deux temps. Un passage en stage de master 1 auprès notamment de Philippe Jacquier dont la passion pour la recherche et l'enseignement m'a totalement enthousiasmé. Du coup, retour deux ans plus tard, cette fois ci en poussant la porte du LPA, auprès de Jérôme et Sukhy dans l'équipe des "THz". Bon choix : je crois que cette expérience a dépassé mes attentes. Et aujourd'hui, beaucoup de remerciements.

Jérôme, c'est une exigence stimulante et une grande liberté laissée pour mener les manips. Merci à toi pour tes conseils avisés et les nombreuses opportunités que tu m'as offertes. Sukhy, merci pour ta confiance inébranlable en nous, ton appui de chaque instant. Et ta clairvoyance... Tu avais vu juste lorsque tu me soupçonnais de partir trop souvent à 16h uniquement pour ne rater aucune séance de ciné. Tu avais encore vu juste lorsque tu pensais que j'exploitais Josh, Ken et Nathan. Mais maintenant que j'ai ma thèse, c'est trop tard pour changer d'avis ! Merci beaucoup à eux trois pour tout ce qu'ils m'ont appris. Juliette Mangeney, que j'ai rencontrée en milieu de parcours, c'est « l'aventure graphène ». J'ai découvert que je pouvais dans un même jour être cinq fois euphorique et cinq fois déprimé ! Merci Juliette pour ton enthousiasme et le plaisir de travailler ensemble.

L'ensemble des travaux faits ici n'auraient bien sûr pu aboutir sans un certain nombre de collaborations. Les équipes de E.H. Linfield à Leeds, de D. Ritchie à Cambridge et de W. de Heer à Atlanta, nous ont fourni respectivement les lasers à cascade quantique ainsi que les échantillons de graphène. Le groupe théorie du LPA a été un appui très important, en particulier Robson Ferreira et Simon Huppert pour leur riche apport sur l'interprétation des mesures associées au graphène. Merci à Louis-Anne De Vaulchier et Simon Maëro pour l'expertise FTIR. Au jour le jour, c'est l'ensemble du personnel administratif (Fabienne Renia et Anne Matignon) et technique (Anne Denis, Claude Dodray, David Darson, François-René Ladan, Jack Olejnik, José Palomo, Olivier Andrieu, Pascal Morfin, Philippe Pace, Thierry Desvignes) qui ont permis nos recherches. Merci également à Jean-Marc Berroir qui m'a permis de rejoindre le LPA.

En parallèle de la vie au labo, j'ai aussi eu la chance et le plaisir de mettre à profit ma formation de prof. Merci d'ailleurs à Ken (oui, encore lui) pour tes enseignements, Fabien et Benjamin, compagnons de route depuis l'agreg. Merci notamment à Philippe Jacquier (encore aussi), Jules Grucker, Marine Remaud, pour nos préparations et séances de TDs communes en médecine.

L'ambiance si agréable de ces années, c'est bien sûr tous les autres membres THz que je remercie : Dimitri, Julien (de la fameuse école de Seine et Marne), Nok, Anaïs, Sarah, Feihu (vive le modelocking), Anthony. En particulier Pierrick, pour pas mal de choses. Juste une, la meilleure bière du monde partagée ensemble : la « half dome » sur fond de Yosemite. Merci Matthieu pour ton humour ravageur (au sens propre et figuré) et le plaisir de chanter ensemble. L'ambiance de bureau, ce fut la chance de côtoyer ces gens si étranges, les « théoriciens ». Merci à Camille-San et Psymon, pour nos discussions souvent absurdes, nos voyages réels et par la pensée, et l'effet boule de neige observé plusieurs fois : l'un part, qui démotive le second à bosser et qui incite le troisième à profiter du beau temps en se disant : « Houlà ! La modification des niveaux de Wannier-Stark de lasers à cascade quantique sous l'effet d'impuretés, on verra ça demain. Ca a attendu 10 ans, ça attendra bien un jour de plus. » Enfin, ils m'ont sans cesse soutenu (supporté ?) dans une dernière année intense, avec une humeur très très variable jusqu'à une semaine avant la soutenance. Je remercie aussi l'ensemble des doctorants et post-doc : Adrien, Antoine, Arthur, Cécile, Erwann, François-Régis, Hai-Son, Jérémy, Landry, Laure, Maria, Niall, Ombline, Philippe, Quentin, Raphaël, Romain, Simon, Teldo, Vincent... Et en pagaille, merci à mon acolyte M. Souris, à l'Italie entière (Vince et Michele en premiers quand même), aux brésiliens. J'aimerais ne pas faire d'oubli et avoir encore un mot pour des personnes déjà nommées mais ce serait long. Du coup, je triche d'emblée. Je pense aux belles rencontres que j'ai faites du début jusqu'aux derniers mois. Elles sauront se reconnaître.

Et puis ceux qui depuis longtemps comptent dans mon coeur. Aux amis profs, à Marie et toute la troupe des montagnards fans de Bretagne, à mon Ch, Adrien. Merci à Françoise. Enfin à Mathieu, Isabelle et papa pour tout.

NOTATIONS SPÉCIFIQUES

fs : femtoseconde

$\mathbf{F_{fs}}$: fréquence de répétition du laser Ti :Sa

$\mathbf{F_m}$: fréquence de la modulation d'amplitude GHz

$\mathbf{F_{ref}}$: fréquence du courant quasi-DC (kHz) appliqué au laser à cascade quantique

$\mathbf{F_{rt}}$: fréquence d'aller-retour de la cavité du laser à cascade quantique

IR : InfraRouge

LCQ : Laser à Cascade Quantique

RF : Radio Fréquence

THz : TeraHertz

TDS : Spectrocopie dans le Domaine Temporel

$\mathbf{T_1}$: temps de recouvrement du gain

$\mathbf{T_c}$: temps d'aller-retour de la cavité

Table des matières

1 La spectroscopie THz dans le domaine temporel **7**
- 1.1 Les lasers femtoseconde . . . 8
- 1.2 Génération d'impulsions THz large bande . . . 9
  - 1.2.1 Les antennes photoconductrices . . . 9
  - 1.2.2 Le redressement optique . . . 10
  - 1.2.3 Autres méthodes . . . 10
- 1.3 La détection électro-optique . . . 11
  - 1.3.1 Détecteurs THz . . . 11
  - 1.3.2 L'effet électro-optique . . . 11
  - 1.3.3 Détection utilisée . . . 12
- 1.4 Dipositif expérimental . . . 14
  - 1.4.1 Montage . . . 14
  - 1.4.2 Échantillonnage en temps équivalent . . . 16
  - 1.4.3 Caractérisation de la source THz . . . 18
- 1.5 Intérêt pour notre étude . . . 20

2 Les Lasers à Cascade Quantique THz **21**
- 2.1 Ingénierie quantique dans les structures semiconductrices . . . 23
  - 2.1.1 Les transitions intersousbandes . . . 23
  - 2.1.2 Le LCQ: laser intersousbande . . . 25
  - 2.1.3 État de l'art . . . 27
- 2.2 Les LCQs THz . . . 27
  - 2.2.1 Structure de bande . . . 28
  - 2.2.2 Guidage de l'onde THz . . . 30
  - 2.2.3 Caractéristiques courant-tension-puissance optique . . . 32
- 2.3 Gain de LCQs THz . . . 34
  - 2.3.1 Expression analytique du gain . . . 34
  - 2.3.2 Couplage d'une impulsion THz dans un LCQ . . . 36
  - 2.3.3 Mesure du gain . . . 38
  - 2.3.4 Résultats . . . 39
- 2.4 Conclusion . . . 41

3 Contrôle de la phase d'émission de LCQs THz **43**
- 3.1 Dispositif expérimental . . . 45
  - 3.1.1 Paramètres clés de l'injection . . . 45
  - 3.1.2 Montage expérimental . . . 48
  - 3.1.3 Réglages préliminaires . . . 52
- 3.2 Mesure du champ rayonné . . . 53
  - 3.2.1 Profil temporel . . . 53
  - 3.2.2 Dynamique du gain . . . 55
- 3.3 Modélisation de l'émission laser . . . 59

3.3.1 Principe . . . 59
3.3.2 Description du modèle . . . 61
3.3.3 Profil simulé du champ . . . 64
3.3.4 Estimation du temps de recouvrement du gain . . . 67
3.4 Efficacité du contrôle de phase . . . 70
3.4.1 Influence de l'amplitude du seed . . . 70
3.4.2 Mesure du rayonnement total émis . . . 72
3.4.3 Compétition seed/émission spontanée . . . 75
3.5 Optimisation du couplage de l'impulsion THz au LCQ . . . 80
3.5.1 Génération du seed dans la cavité du LCQ . . . 80
3.5.2 Caractérisation électrique . . . 82
3.5.3 Régime d'injection seeding . . . 83
3.5.4 Perspectives . . . 86
3.6 Conclusion . . . 87

4 Émission de LCQs en régime de blocage de modes 89
4.1 Lasers en régime de blocage de modes . . . 91
4.1.1 Impulsions ultracourtes: domaine temporel vs fréquentiel . . . 91
4.1.2 Obtention du verrouillage des modes . . . 93
4.1.3 Lasers à cascade moyen infrarouge et THz . . . 95
4.2 Modulation d'amplitude en courant . . . 96
4.2.1 Courant pilote . . . 96
4.2.2 Choix de la fréquence de modulation . . . 100
4.2.3 Dispositif expérimental: modulation et détection de l'émission . . . 104
4.3 Enveloppe de l'émission laser . . . 106
4.3.1 Lasers étudiés . . . 106
4.3.2 Génération d'impulsions courtes . . . 108
4.3.3 Influence du point de fonctionnement . . . 110
4.3.4 Interprétation . . . 115
4.4 Des impulsions contrôlées en phase . . . 116
4.4.1 Profil de l'émission avec/sans impulsion THz externe . . . 116
4.4.2 Caractérisation complète d'impulsions bloquées en phase . . . 118
4.4.3 Influence de la fréquence de modulation . . . 123
4.4.4 Intérêt pour la caractérisation d'impulsions courtes . . . 126
4.5 Conclusion . . . 127

5 Le graphène comme convertisseur IR/THz 129
5.1 Le graphène: un matériau 2D remarquable . . . 131
5.1.1 Structure de bande . . . 131
5.1.2 Propriétés électroniques et optiques . . . 132
5.2 Contexte de notre étude . . . 133
5.2.1 Graphène et THz . . . 133
5.2.2 Effets du second ordre dans le graphène sous excitation optique . . . 134
5.3 Émission THz sous excitation optique . . . 136
5.3.1 Montage expérimental . . . 136
5.3.2 Signatures de l'effet photon drag . . . 139

5.3.3 Influence de la polarisation IR 143
5.4 Modélisation 146
5.4.1 Description microscopique 146
5.4.2 Symétrie électrons/trous 148
5.4.3 Validation du modèle 153
5.4.4 Analyse de la relaxation des porteurs photogénérés 155
5.5 Conclusion 157

Conclusion **157**

A Modèle de Maxwell-Bloch pour l'émission laser **163**
A.1 Obtention des équations de Maxwell-Bloch 163
A.2 Algorithme FDTD 166

B Caractéristiques des LCQs utilisés **169**
B.1 Croissance L182 - émission à 2.5 THz 169
B.2 Croissance V557 - émission à 2.9 THz 170
B.3 Croissance V455 - émission à 1.9 THz 171
B.4 Croissance V453 - émission à 2.05 THz 171

C Détection du rayonnement total d'un LCQ **173**
C.1 Montage 173
C.2 Expression du signal optique 173
C.3 Traitement électronique du signal optique 175

D Caractérisation du graphène **177**
D.1 Fabrication 177
D.2 Mesure du niveau de Fermi 178

E Émission THz du SiC sous excitation optique pulsée **181**

F Publications et Communications **185**

Introduction générale

La gamme des ondes Terahertz (THz), entre 0.1 et 10 THz, se situe à l'interface des domaines optique et électronique. L'interaction des ondes THz avec la matière se manifeste par les faibles énergies mises en jeu (0.4 a 40 meV) qui interviennent dans de nombreux processus comme les transitions intrabandes des semiconducteurs ou les vibrations du réseau de solides [1]. Les perspectives d'usage des ondes THz s'appuient essentiellement sur la réponse à leur exposition de trois types de matériaux: l'eau (très fortement absorbante), les diélectriques (transparents) et les métaux (qui réfléchissent ce rayonnement). Les ondes THz peuvent ainsi être utilisées dans des systèmes d'imagerie non invasive pour des applications très diverses: de l'étude de systèmes biologiques via leur contenu en eau [2] aux dipositifs de sécurité dans les aéroports [3]. De plus, les signatures spectrales des molécules dans la gamme THz, qui résultent de leurs interactions mutuelles et mouvements internes (vibrationnel et rotationnel), sont très marquées. Aussi, un autre champ important d'applications des ondes THz est l'identification de molécules, que ce soit pour la détection d'explosifs [4] ou le contrôle qualité de produits pharmaceutiques et alimentaires [5]. Le domaine THz a longtemps été connu comme un fossé technologique (le "gap" THz) et le développement des applications THz hors-laboratoires nécessite toujours de nouvelles fonctionnalités pour les sources et les détecteurs. Cependant, les dispositifs électroniques ne peuvent pas fonctionner à des fréquences suffisamment rapides pour émettre un rayonnement THz. De plus, les dispositifs photoniques, en particulier les sources lasers, sont difficiles à réaliser pour les fréquences THz car l'énergie de la transition radiative est de l'ordre de grandeur de l'agitation thermique (k_BT). Dans ce contexte, le développement de nouvelles sources ou l'amélioration des performances des dispositifs existants font donc l'objet d'intenses recherches.

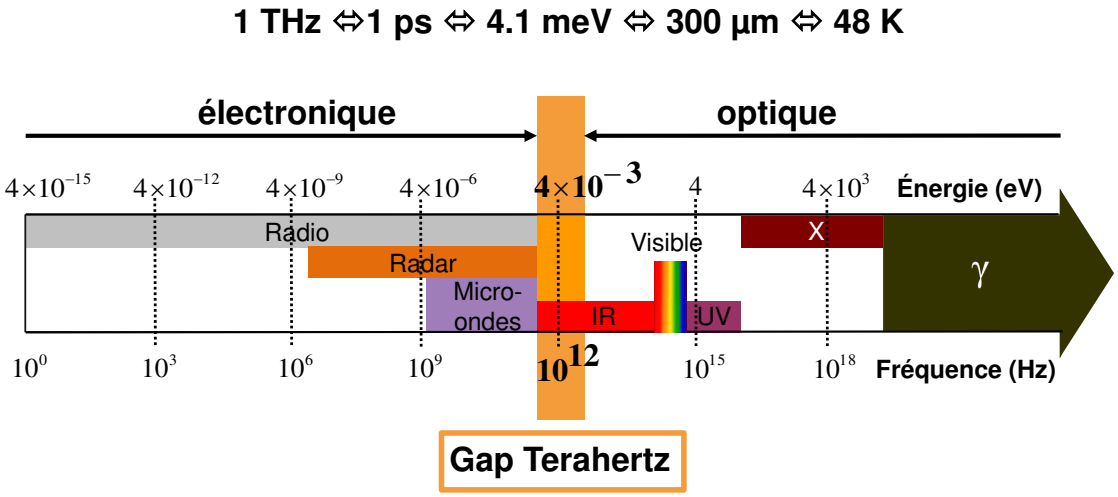


Figure 1 – Spectre électromagnétique et gamme THz (figure issue de [6]).

Un outil particulièrement adapté pour l'étude de l'interaction des ondes THz avec la matière est la spectroscopie THz dans le domaine temporel [1] ("time domain spectroscopy" en anglais ou TDS). Cette technique s'appuie sur la génération et la détection en temps d'impulsions THz large-bande (plusieurs THz) qui sondent un échantillon étudié. Elle permet par exemple la mesure in-vivo de la dynamique d'hydratation des plantes pour l'agriculture [7], ou encore le contrôle qualité d'aliments [8]. En contraste avec d'autres techniques de la gamme THz comme la spectroscopie par transformée de Fourier [9] (FTIR), la TDS est une spectroscopie cohérente: elle donne accès à l'amplitude et à la phase du champ électrique THz ainsi qu'à sa dynamique (mesure d'impulsions). L'accès à l'amplitude et à la phase est un avantage important pour de nombreuses études, en permettant notamment de déterminer complètement l'indice complexe d'un matériau inconnu [10]. De plus, une détection cohérente n'est pas sensible au bruit thermique THz environnant et permet d'accéder à des rapports signal à bruit extrêmement élevés. Ainsi, on peut mesurer le gain subit par une impulsion THz lorsqu'elle se propage à travers la cavité d'un laser THz [11,12], sans être sensible au rayonnement de ce dernier bien plus élevé.
Dans cette thèse, nous avons mis à profit la spectroscopie THz dans le domaine temporel dans le cadre du développement de sources de rayonnement THz. Nous avons fonctionnalisé des lasers THz avec un contrôle de leurs propriétés d'émission: les lasers à cascade quantique. De plus, nous avons mis en avant un nouveau moyen de générer un rayonnement THz dans un matériau aux multiples perspectives d'applications: le graphène.

Le laser à cascade quantique (LCQ) est un dispositif très prometteur comme source de rayonnement THz [13]. Ce laser semiconducteur a été réalisé pour la première fois en 1994 [14] et émettait initialement uniquement dans la gamme du moyen-infrarouge. Il est composé de l'alternance répétée de couches de semiconducteurs empilées qui rend possible l'usage de transitions intersousbandes pour l'émission laser. L'intérêt majeur de ces lasers est que l'accès aux faibles énergies pour la transition radiative n'est pas limitée par le choix du matériau comme c'est le cas avec les transitions interbandes utilisées pour les diodes lasers. L'ingénierie des couches permet de définir la longueur d'onde d'émission dans une gamme très large: de 250 μm [15] (1.2 THz ou 4.9 meV) à environ 3 μm [16] (100 THz ou 410 meV). Ces lasers présentent nombre d'avantages dans la gamme THz comme la compacité, la puissance rayonnée ou encore la simplicité d'un pompage électrique. L'usage plus répandu des LCQs THz fait aujourd'hui face à une difficulté importante: leur fonctionnement requiert la cryogénie (température maximale de fonctionnement relevée à 199.5 K). L'accès aux températures plus élevées est donc un des challenges pour les LCQs THz mais pas le seul. Le contrôle des propriétés du rayonnement émis (phase, profil du faisceau en champ lointain) fait partie des performances à améliorer. De plus, l'obtention d'impulsions courtes pour ces lasers est est un domaine de recherche ouvert car la dynamique complexe du gain des LCQs y est peu favorable: la première démonstration a été faite en 2009 dans la gamme moyen infrarouge [61] et en 2011 dans la gamme THz [21].

Dans ce contexte, une technique originale "d'injection seeding" ("injection par ensemencement") développée en 2010 par l'équipe du LPA [17] peut donner accès à de

nombreuses informations sur la dynamique du gain. Elle permet de fixer la phase du champ électrique rayonné par un LCQ THz et repose sur l'usage des impulsions THz large-bande produites dans un système de spectroscopie dans le domaine temporel pour initier la phase du rayonnement laser du LCQ. Ceci nous permet de mesurer l'amplitude et la phase du champ électrique émis par le laser via une détection cohérente.
D'un point de vue des applications, cette technique de contrôle de phase est très intéressante pour envisager les LCQs comme source puissante pour la TDS elle-même, en particulier pour la spectroscopie de gaz, ou de nombreuses molécules ont une signature spectrale très marquée. Dans cette thèse, nous proposons des solutions pour quantifier et optimiser l'efficacité de ce contrôle de phase [18, 19] en vue de l'usage pour la TDS.
D'un point de vue plus fondamental, nous sommes en mesure d'observer l'émission laser dans le domaine temporel de sa naissance au régime permanent à l'échelle fs. Le régime transitoire est fortement influencé par le comportement dynamique du laser. On peut ainsi étudier le comportement du gain: l'évolution de son profil spectral mais aussi son temps de retour à l'équilibre après une perturbation (temps de recouvrement du gain) [20]. Une meilleure connaissance de la dynamique du gain est importante car ce paramètre conditionne la possibilité de générer des impulsions courtes avec ces lasers.
La génération d'impulsions courtes avec des LCQs THz en est à ses débuts [21, 22] et nous développons ici une technique originale qui permet de produire des impulsions de largeur à mi-hauteur 15 ps en régime de blocage de mode [20]. Pour cela, nous appliquons une modulation de courant micro-onde associée à la technique d'injection seeding. La modulation de courant se traduit par une modulation du gain du laser qui conduit sous certaines conditions, à la génération d'impulsions courtes. L'injection seeding permet d'imposer la valeur de la phase du champ électrique. Nous démontrons ainsi la possibilité de générer des impulsions THz courtes et cohérentes. De plus, il nous est possible de reconstruire complètement le champ électrique (amplitude et phase) des impulsions émises en temps [23]. Cette caractérisation est essentielle pour étudier la forme des impulsions et difficile d'un point de vue technique (les méthodes d'autocorrélation standard utilisées en optique ne sont pas applicables).

Dans un second temps, nous avons mené une étude en étroite collaboration avec l'équipe *Théorie* du Laboratoire Pierre Aigrain sur une nouvelle source de rayonnament THz. Nous avons mis en évidence la possibilité de générer des impulsions THz large bande dans le graphène sous excitation optique. Le graphène, matériau 2D en structure de nid d'abeille, a des propriétés optiques et électroniques très spécifiques [24]. Il offre de nombreuses perspectives d'applications par exemple en tant que conducteur transparent ou encore de photodétecteur ultrarapide [25]. Les non linéarités de ce matériau ont jusqu'ici été relativement peu étudiées [26]. Dans ce contexte, notre travail s'est concentré sur l'effet dans la gamme THz de non-linéarités du graphène induites par des impulsions femtoseconde proche infrarouge. Pour cela, nous avons fait usage de la détection cohérente associée à la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Cette détection nous a permis d'analyser le profil du champ émis en fonction des conditions d'excitation. Nous montrons que la génération de rayonnement THz résulte d'un transfert de quantité de mouvement des photons aux électrons ("photon drag"). Outre la mise en évidence d'un nouveau moyen d'émettre des impulsions THz large-bande, l'effet photon drag permet d'étudier les propriétés fines de la structure de bande. Nous montrons que l'émission

THz résulte de l'interaction électronique des atomes non immédiatement voisins des plans de graphène.

Ce manuscrit se découpe en cinq chapitres. Tout d'abord nous décrivons le montage expérimental au cœur de ce travail de thèse: la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Puis après avoir décrit le fonctionnement des lasers à cascade quantique, deux chapitres sont intégralement dédiés à leur étude: contrôle de phase du champ électrique, étude des propriétés dynamiques du gain et génération d'impulsions courtes à partir de ces lasers. Dans un dernier chapitre, nous étudions la génération de THz par le graphène sous excitation optique.

Dans le **chapitre 1**, nous décrivons le dispositif de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Un laser femtoseconde à modes bloqués, qui produit des impulsions (de durée ~ 100 fs) dans le proche infrarouge (longueur d'onde ~ 800 nm) est utilisé pour générer des impulsions THz large bande via des antennes photoconductrices. Ce laser est également indispensable pour la détection électro-optique cohérente. Le dispositif de TDS est à la base des études menées sur le graphène comme sur les lasers à cascade quantique.

Dans le **chapitre 2**, nous introduisons la physique des lasers à cascade quantique. Après une description de leur principe de fonctionnement, nous détaillons ensuite les techniques de caractérisation de ces lasers que nous utilisons par la suite: mesure des caractéristiques courant-tension-puissance optique et mesure du gain du laser en régime permanent.

Le **chapitre 3** détaille tout d'abord la méthode utilisée pour le contrôle de la phase du champ rayonné par un LCQ. Elle s'appuie sur l'injection d'impulsions THz de l'antenne dans la cavité du laser et sur son allumage simultané. Cette méthode permet de détecter le profil du champ électrique rayonné par le laser à l'aide de la détection électro-optique. A l'appui d'une simulation de Maxwell-Bloch de l'émission laser comparée aux mesures, nous montrons qu'il est possible de d'estimer un paramètre dynamique du gain: le temps de recouvrement du gain. De plus, nous montrons l'efficacité du contrôle de phase et proposons une solution pour simplifier le dispositif associé.

Dans le **chapitre 4**, nous décrivons nos expériences permettant la génération d'impulsions courtes à partir de LCQs THz. Après avoir introduit et dressé un état de l'art du blocage de modes pour les LCQs, nous décrivons la technique qui est basée sur une modulation du courant injecté dans le laser. Cette modulation de courant permet d'effectuer une modulation de gain du laser. La génération d'impulsions courtes pour ces lasers a historiquement été rendue ardue à cause de la dynamique du gain mais aussi de la difficulté de caractérisation des impulsions émises. L'injection seeding permet de fixer la phase du champ électrique THz. Cette technique permet également de caractériser complètement le train d'impulsions émis.

Le **chapitre 5** aborde les expériences effectuées sur le graphène. Nous situons le contexte du graphène dans l'essor des technologies THz. Le dispositif expérimental repose sur l'excitation du graphène par des impulsions femtoseconde proche infrarouge et sur la

détection du rayonnement THz émis en temps. L'excitation optique se fait à haute énergie (1.55 eV) loin du niveau de Fermi (inférieur à 250 meV). L'effet des conditions d'excitation sur le rayonnement émis est étudié et conduit à l'interprétation de cet effet non-linéaire en termes de transfert de la quantité de mouvement des photons aux électrons du matériau, connu comme effet "photon drag". Le développement d'un modèle de liaisons fortes aux seconds voisins permet d'analyser des effets subtils de la structure de bande. Ce modèle comparé aux expériences permet également d'analyser les différences de temps de relaxation entre les trous et électrons photogénérés.

1 La spectroscopie THz dans le domaine temporel

Nous présentons dans ce chapitre le dispositif expérimental central de ce travail de thèse: la spectroscopie THz dans le domaine temporel (THz time-domain spectroscopy en anglais ou TDS THz). Cette technique est composée d'une génération et d'une détection "cohérente" du rayonnement THz, qui permet d'extraire l'amplitude et la phase du champ électrique. La spectroscopie THz dans le domaine temporel est un outil très puissant qui a de multiples applications, de la caractérisation d'explosifs [4] à la détection d'antibiotiques dans les aliments [5]. Elle offre de plus la possibilité de mesures avec un excellent rapport signal à bruit et une gamme dynamique très élevée, en comparaison d'autres méthodes utilisées dans cette gamme de fréquences comme le spectromètre InfraRouge à Transformée de Fourier (FTIR) [9]. Ces avantages la rendent indispensable pour les travaux discutés dans cette thèse. La description des propriétés dynamiques des LCQs (**chap. 3** et **4**) comme l'étude d'un effet non-linéaire associant ondes THz et IR dans le graphène (**chap. 5**) s'appuient directement sur la mesure du champ électrique rayonné.

Le fonctionnement de la spectroscopie THz dans le domaine temporel est abordé dans ce chapitre, avec les méthodes de génération et de détection. Nous mettons en particulier en avant le caractère cohérent de cette détection qui est un point critique pour la détection du rayonnement émis par un LCQ, comme nous le verrons dans le chapitre 3. Un avantage important de ce montage expérimental est sa robustesse et sa flexibilité. Dans le chapitre 5, c'est le graphène qui est directement utilisé comme source de rayonnement THz dans ce montage.

Sommaire

1.1 Les lasers femtoseconde 8
1.2 Génération d'impulsions THz large bande 9
1.2.1 Les antennes photoconductrices 9
1.2.2 Le redressement optique 10
1.2.3 Autres méthodes 10
1.3 La détection électro-optique 11
1.3.1 Détecteurs THz 11
1.3.2 L'effet électro-optique 11
1.3.3 Détection utilisée 12
1.4 Dipositif expérimental 14
1.4.1 Montage 14
1.4.2 Échantillonnage en temps équivalent 16
1.4.3 Caractérisation de la source THz 18
1.5 Intérêt pour notre étude 20

1.1 Les lasers femtoseconde

Les lasers qui produisent des impulsions femtosecondes [27] sont très utiles pour étudier les évènements ultrarapides de durée subpicoseconde (1 ps = 1 THz). Ils ont par exemple permis de comprendre les effets cohérents liés aux excitons dans le GaAs massif [28] ou dans un tout autre contexte les mécanismes de perception visuelle via le comportement des molécules de la rétine [29]. Un laser particulièrement utilisé dans ce contexte est le laser Ti:Sa, où le milieu à gain est constitué d'un oxyde d'aluminium (saphir) dopé avec des ions Titane. Les impulsions fs y sont obtenus par un mécanisme de blocage de modes par effet Kerr optique (référence [30] ou voir **4.1.2**). Les lasers Ti:Sa en régime pulsé délivrent typiquement un train d'impulsions de largeur 10-100 fs, avec un taux de répétition $\sim$ 80 MHz et une énergie par impulsion $\sim$ 10 nJ.
Les impulsions fs produites par ces lasers peuvent être employées pour générer et détecter des impulsions THz. Le dispositif qui rassemble à la fois génération et détection en temps de ces impulsions THz pour la spectroscopie, similaire par son principe aux techniques pompe-sonde, est à la base de la spectroscopie THz dans le domaine temporel.

1.2 Génération d'impulsions THz large bande

Les méthodes les plus répandues pour produire des impulsions THz monocycles (de durée proche de la ps) et donc large bande s'appuient sur deux mécanismes différents: soit sur la réponse non-linéaire des électrons liés dans les cristaux, soit sur l'existence de photocourants transitoires dans les semi-conducteurs induits par une excitation optique pulsée.

1.2.1 Les antennes photoconductrices

Les antennes photoconductrices permettent la génération d'impulsions THz à partir de photocourants générés par les impulsions fs. Ces antennes sont constituées d'électrodes métalliques déposées sur un semi-conducteur (souvent du GaAs). Le dispositif le plus simple est l'antenne dipolaire composée de deux électrodes uniquement (figure 1.1). Une tension est appliquée entre les deux électrodes. L'excitation optique se fait à une énergie de 1.53 eV pour une longueur d'onde de 810 nm et est supérieure à la bande interdite du matériau (1.42 eV pour le GaAs). Elle permet ainsi de générer une population de paires électrons-trous. Ces porteurs sont accélérés sous l'effet de la tension appliquée, puis relaxent. Le champ électrique rayonné en champ lointain est celui d'un dipôle oscillant et a la dépendance [1]:

$$\mathrm{E_{THz}(t)} \propto \frac{\partial \mathrm{J(t)}}{\partial t} \tag{1.1}$$

où J(t) est le courant photogénéré dont la durée est donnée par celle de l'excitation optique et le temps de vie des porteurs photogénérés. La durée de l'excitation optique est de l'ordre de 100 fs et le temps de vie des porteurs se situe dans la gamme [1-100] ps [31]. Pour un courant transitoire d'une durée de l'ordre de 1 ps, le champ électrique THz est une impulsion monocycle dont les fréquences se situent dans le THz. Pour couvrir un spectre THz large, il est nécessaire que le transitoire de courant soit le plus court possible. Les matériaux qui donnent les meilleures performances sont à base de GaAs. Le GaAs-BT (GaAs Basse température) dont la croissance est faite par épitaxie par jet moléculaire à basse température (environ 200°C) permet d'atteindre les temps de vie des porteurs photogénérés les plus courts, de l'ordre de 0.2 ps [32]. L'usage du GaAs-BT présente également les avantages d'avoir une mobilité élevée, de l'ordre de 5000 $\mathrm{cm^2V^{-1}s^{-1}}$ et un champ de claquage élevé [1], de l'ordre de 100 $\mathrm{kV.cm^{-1}}$.

A partir du schéma de l'antenne dipolaire représenté sur la figure 1.1, des dispositifs plus perfectionnés ont été développés. Les antennes interdigitées, initialement proposées en 2005 [33], ont une structure alternative avec les deux électrodes métalliques en forme de deux peignes imbriqués. La surface occupée par les deux peignes est de l'ordre de 500 μm $\times$ 500 μm. Le dispositif est donc illuminé avec un faisceau dont le diamètre est supérieur à la longueur d'onde d'émission (1 THz $\sim$ 300 μm), ce qui permet de minimiser les effets de diffraction. Le grand avantage de ce dispositif est qu'il permet d'obtenir

1. L'amplitude du champ THz rayonné est proportionnelle à la tension appliquée sur les électrodes. Un champ de claquage élevé permet donc d'appliquer une tension plus élevée sans risquer d'endommager le dispositif.

de très bonnes performances sans nécessiter l'emploi de tensions élevées appliquées sur les électrodes [34]. On peut de plus moduler ces antennes à haute fréquence ce qui est très commode lorsque l'on utilise une détection synchrone pour faire l'acquisition du champ THz émis. Ce sont ces antennes que nous utilisons par la suite pour la génération d'impulsions THz monocycles. Elles permettent de couvrir une gamme spectrale typique de 5 THz.

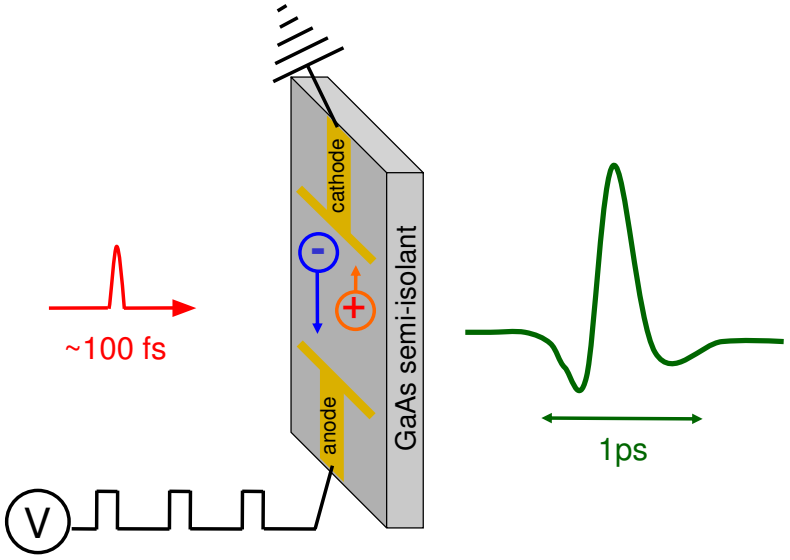


FIGURE 1.1 – Schéma d'une antenne photoconductrice dipolaire constituée d'un substrat de GaAs et de deux électrodes.

1.2.2 Le redressement optique

Un autre mécanisme de génération d'impulsions THz large-bande s'appuie sur le redressement optique dans un cristal non-linéaire [1]. Ce processus est employé pour l'émission THz dans certains cristaux, tels que le le ZnTe [35], le GaP ou le CdSe. Le redressement optique repose sur un effet non-linéaire d'ordre 2 dans les matériaux non-centrosymétriques. L'interaction non-linéaire conduit à un mélange entre les différentes fréquences associées aux impulsions fs qui illuminent le cristal. La polarisation non-linéaire induite dans le matériau suit l'enveloppe de l'impulsion fs. La variation temporelle de la polarisation est source d'un rayonnement électromagnétique dont la bande passante est donnée par l'inverse de la durée des impulsions. Cette méthode permet de couvrir un spectre plus large que les antennes photoconductrices (compris typiquement entre 0.5 THz et une dizaine de THz) et le cristal peut être illuminé avec des puissances plus élevées. En revanche, le champ THz émis présente un bruit plus élevé.

1.2.3 Autres méthodes

La majorité des applications qui nécessitent l'usage d'impulsions THz large bande s'appuient sur l'une ou l'autre des méthodes de génération exposées précédemment. Les

dispositifs de génération par rectification optique ou à l'aide d'antennes photoconductrices ont l'avantage d'être compacts et simples à mettre en oeuvre. De plus, le champ obtenu est suffisamment fort pour permettre souvent des mesures avec un excellent rapport signal à bruit.

Il existe cependant de nombreuses autres techniques. Parmi celles développées le plus récemment, on peut mentionner la génération d'impulsions THz monocycles dans les cristaux de Niobate de Lithium ($LiNbO_3$) où on exploite le caractère non-linéaire élevé du matériau. L'inconvénient de cette méthode est le fort désaccord de phase entre la vitesse de phase de l'onde THz et la vitesse de groupe des impulsions fs qui nécessite une géométrie d'excitation spécifique [37].
Il est également possible de générer des impulsions THz large-bande dans l'air [38] à partir du mélange d'onde entre une impulsion à la fréquence fondamentale ω et une à la frequence 2ω. Le mécanisme est un mélange à quatre ondes et l'émission THz résulte d'un courant transitoire dans le plasma généré par les impulsions optique de forte puissance.

1.3 La détection électro-optique

1.3.1 Détecteurs THz

Parmi les détecteurs THz, on peut distinguer ceux qui permettent d'accéder à des informations sur l'amplitude et la phase du champ électrique THz (détecteurs cohérents) de ceux qui permettent d'accéder uniquement à l'intensité (détecteurs incohérents). Les détecteurs incohérents, tels que les bolomètres, cellules de Golay ou encore pyroélectriques, exploitent des effets thermiques. Les détecteurs cohérents exploitent souvent les mêmes effets physiques sous-jacents que les antennes photoconductrices ou le redressement optique utilisés comme sources d'impulsions THz large bande. Le rayonnement THz continu peut être détecté via une détection hétérodyne ou à l'aide de processus de photomélange dans des antennes [1]. Pour la spectroscopie THz dans le domaine temporel, la détection du champ des impulsions THz se fait couramment à l'aide d'un cristal électro-optique ou d'une antenne photoconductrice.

1.3.2 L'effet électro-optique

Le principe de la détection électro-optique repose sur la mesure de la biréfringence induite par un champ électrique dans certains cristaux (GaP ou ZnTe en particulier). La biréfringence induite, appelée effet Pockels, est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique appliqué [39]. Dans le cadre de la spectroscopie THz dans le domaine temporel, l'effet est exploité pour mesurer l'amplitude du champ électrique THz, via la biréfringence qu'il induit sur le cristal. La biréfringence dynamique est sondée à l'aide du faisceau IR fs. Pour cela, le faisceau IR, polarisé linéairement, est focalisé sur le cristal de ZnTe dans la zone de recouvrement avec le faisceau THz. Sous l'effet de la biréfringence induite, la polarisation rectiligne du faisceau IR est modifiée. La mesure du changement de polarisation permet ainsi de remonter à l'amplitude du champ électrique THz.

1.3.3 Détection utilisée

La configuration qui permet de mesurer le changement de polarisation du faisceau IR induit par le champ THz est représentée sur la figure 1.2. Cette configuration est la plus communément utilisée pour les montages de spectroscopie THz dans le domaine temporel. La majorité des travaux décrits dans cette thèse s'appuient sur cette géométrie pour la détection. [2].

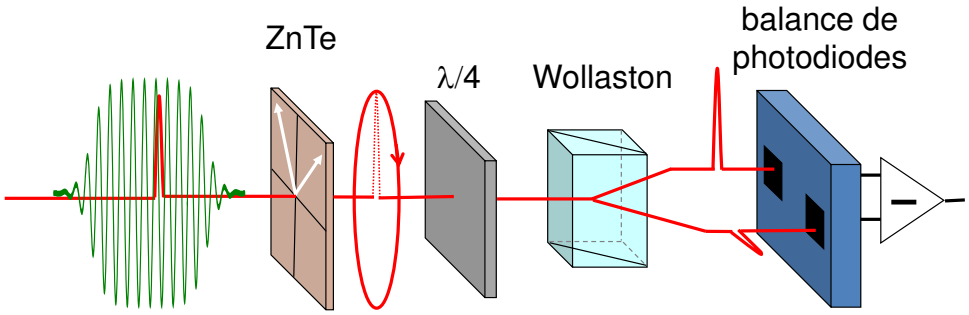


FIGURE 1.2 – Schéma de principe de la détection électro-optique.

Le montage pour la détection du changement de polarisation du faisceau IR est composé de l'association d'une lame quart-d'onde, d'un cube séparateur de polarisation Wollaston et d'une balance de photodiodes.

Sans champ THz. En l'absence de champ THz appliqué, il n'y a pas de biréfringence induite dans le cristal électro-optique. Ainsi, la polarisation du faisceau fs incident sur le cristal demeure inchangée. La polarisation rectiligne du faisceau IR est orientée à 45° des axes neutres du cristal. L'orientation de la lame-quart d'onde est ajustée sans champ THz de sorte à ce que la polarisation IR se situe également à 45° de ces axes neutres. Dans ces conditions, la polarisation linéaire du faisceau IR devient circulaire après avoir traversée la lame quart-d'onde. Le prisme de Wollaston permet de séparer spatialement les composantes du champ électrique IR orthogonales. Les deux sous-faisceaux de polarisations rectiligne orthogonales sont ensuite collectés par deux photodiodes. Un montage électronique en aval des deux photodiodes permet d'effectuer la différence des intensités collectées sur les deux photodiodes. La polarisation circulaire conduit à un signal nul.

Avec champ THz. Lorsque le cristal est illuminé par un rayonnement THz, le faisceau IR subit la biréfringence induite par le champ THz sur le cristal. La polarisation après la lame quart-d'onde est cette fois-ci elliptique. La différence d'intensité collectée par la balance de photodiodes est non nulle et s'exprime selon la relation [39]:

$$\Delta I = I_0 \sin \delta\Phi \simeq I_0 \delta\Phi = 2I_0 \frac{\pi L}{\lambda} n_0^3 r_{41} E_{THz} \tag{1.2}$$

2. Dans la section **3.4.2** (Chap.3), nous utilisons une configuration électro-optique différente, détaillée dans l'annexe C.

ou I_0 est l'intensité moyenne IR incidente sur le cristal de détection et $\delta\Phi$ le déphasage lié à la biréfringence du cristal. Ce déphasage est proportionnel au champ électrique THz E_{THz}. λ est la longueur d'onde du faisceau IR. L, n_0 et r_{41} sont respectivement l'épaisseur du cristal de détection, son indice optique et la valeur de son coefficient électro-optique.

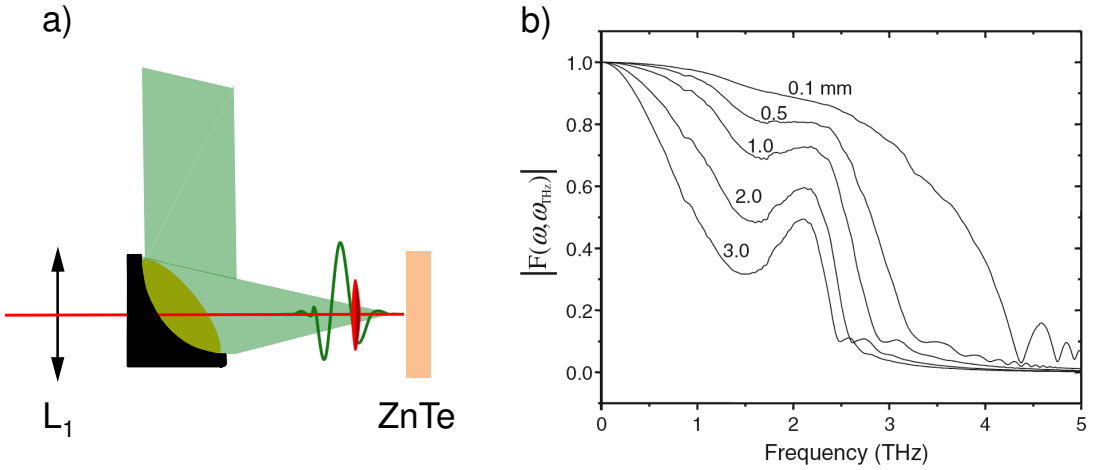


FIGURE 1.3 – a) Géométrie pour la détection du rayonnement THz. Un miroir parabolique est utilisé pour rediriger et focaliser le faisceau THz (en vert) sur le cristal de ZnTe. Le faisceau IR (en rouge) est focalisé à l'aide d'une lentille achromatique. Le miroir parabolique est percé ce qui permet d'illuminer le cristal de détection avec le faisceau IR (en rouge) colinéaire au faisceau THz. b) Fonction de réponse du cristal de ZnTe pour diverses épaisseurs d'après [1].

Nous utilisons des cristaux de ZnTe pour la détection électro-optique. Le faisceau THz est focalisé sur le cristal à l'aide d'un miroir parabolique (voir figure 1.3 a)). Le faisceau IR focalisé incide sur le cristal colinéairement au faisceau THz. Pour que la détection soit efficace, il faut assurer un bon recouvrement spatial entre les faisceaux IR et THz, ce qui nécessite un alignement optique de qualité.
Un paramètre très important de la détection électro-optique est la bande-passante que l'on peut obtenir. Le facteur limitant de la réponse du cristal aux hautes fréquences est lié à la différence entre les vitesse de groupe du faisceau IR et de phase du faisceau THz dans le cristal [1]. En effet, les vitesses de propagation des impulsions fs et de l'onde THz générée dans le cristal sont différentes (liées à l'indice de groupe optique et à l'indice de phase THz du ZnTe respectivement). Le déphasage empêche de détecter les hautes fréquences. Cet effet est d'autant plus marqué que l'épaisseur L du cristal est importante. Cependant, d'après la relation 1.2, le signal collecté par la balance de photodiodes est proportionnel à l'épaisseur L traverse. Le choix de l'épaisseur du cristal appropriée est donc un compromis à faire entre l'amplitude du signal collecté et la nécessité de détecter les hautes fréquences. Il faut noter enfin que l'absorption du ZnTe est très élevée autour de 5 THz (effet d'absorption du au phonons Transverse Optique [40]). Le ZnTe est finalement très adapté pour une gamme comprise antre 0.1 et 4 THz. Nous

utilisons par la suite ce cristal (orientation (110)) avec des épaisseurs comprises entre 200 μm et 1 mm (fonction de réponse sur la fig 1.3.b).

L'effet électro-optique est sensible à la fois à la polarisation des faisceaux IR et THz et est maximisé lorsque les polarisations linéaires THz et IR sont parallèles ou orthogonales [39]. Dans notre montage, les polarisations THz de l'antenne et IR du laser Ti:Sa sont les mêmes (rectilignes et parallèles). L'angle azimutal du cristal de ZnTe (110) est ajusté de sorte à maximiser le signal mesuré.

1.4 Dipositif expérimental

La spectroscopie THz dans le domaine temporel consiste en la mesure du rayonnement THz transmis/réfléchi à travers un échantillon. L'analyse du rayonnement détecté permet de déduire des informations sur les propriétés d'absorption ou de gain de l'échantillon. L'intérêt majeur de cette technique de spectroscopie est que le système de détection donne accès à l'amplitude et à la phase du champ électrique. Un autre avantage de la détection cohérente est que l'on peut mesurer un signal THz petit dans un bruit de fond THz beaucoup plus élevé. Cette technique de spectroscopie permet ainsi d'atteindre des sensibilités très élevées, supérieures à celles obtenues avec des bolomêtres [41].

1.4.1 Montage

Le dispositif complet de spectroscopie THz dans le domaine temporel que nous utilisons est représenté sur la figure 1.4. Toutes les expériences décrites dans ce manuscrit s'appuient sur l'usage d'un laser Ti:Sa Mira 900 de la marque "Coherent". Les impulsions générées sont délivrées avec un taux de répétition de 76 MHz (une impulsions toutes les 13.2 ns). La puissance moyenne du train d'impulsions en sortie du laser peut atteindre une valeur de 1.5 W (soit une énergie de 20 nJ par impulsion). Elles ont une durée typique de 100 fs, et un spectre gaussien centré sur 820 nm, de largeur à mi-hauteur environ 10 nm.
Le laser Ti:Sa est utilisé pour la génération et pour la détection du champ THz. Le faisceau proche-IR est divisé en deux à l'aide d'un séparateur de faisceau. Un des deux sous-faisceaux (environ 70% de la puissance totale) est dédié à la génération d'impulsions THz large-bande. La source d'impulsions THz est une antenne photoconductrice interdigitée. Les impulsions THz sont générées dans le montage au même taux de répétition que les impulsions fs, soit chaque 13.2 ns. Un premier miroir parabolique hors-axe (focale de 15 cm) permet de collecter le rayonnement émis par l'antenne (l'antenne est placée au point focal objet du parabolique). Le faisceau THz collimaté est ensuite focalisé à l'aide d'un second miroir parabolique (focale de 12.5 cm). C'est à cet endroit qu'est placé l'échantillon dont on souhaite étudier le comportement sous rayonnement THz. Les échantillons sont donc étudiés par transmission. Enfin, le rayonnement THz est refocalisé sur le cristal de ZnTe à l'aide de deux autres miroirs paraboliques (de focale 15 cm et 7.5 cm). Le second sous faisceau IR est focalisé sur le cristal de détection (avec une lentille de focale 30 cm) et permet via l'effet électro-optique, de mesurer l'amplitude du champ électrique THz. Pour reconstruire l'ensemble du profil THz, on

ajoute une ligne à retard optique (voir section suivante). L'ensemble du montage où se propagent les ondes THz est placé sous enceinte d'air sec. Ceci limite l'absorption du rayonnement THz par l'eau.

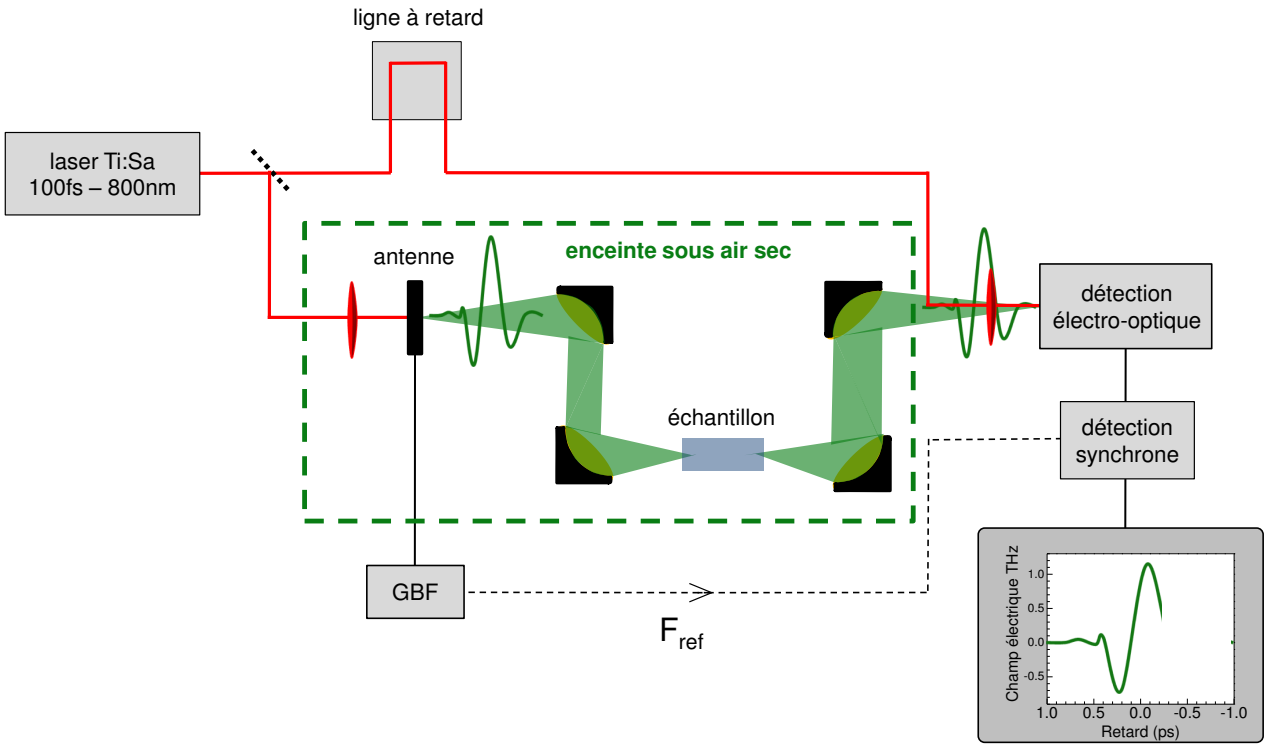


FIGURE 1.4 – Schéma du montage expérimental de spectroscopie THz dans le domaine temporel.

Pour l'acquisition des données, nous faisons usage d'un appareil de détection synchrone qui nécessite une modulation du signal à mesurer. Ainsi, le signal de la source de rayonnement THz (ici l'antenne) est modulé électriquement à une fréquence de référence F_{ref} (fig 1.4). Pour cela, on applique une tension créneau sur l'antenne de fréquence typique 10 kHz. Le bruit dans le domaine THz qui n'est pas synchronisé à cette fréquence de référence est ainsi éliminé par la détection. La détection synchrone permet également d'effectuer des mesures différentielles, par exemple en modulant électriquement l'antenne et l'échantillon à des fréquences différentes. C'est le cas de la mesure "f-2f" détaillée dans la section **2.3.3** (chap.2).

Un avantage de ce montage est sa flexibilité. On peut par exemple effectuer des mesures à basse température en ajoutant un cryostat à doigt froid et à accès optique sur le chemin du faisceau THz. On peut aussi modifier le système de détection ou la source de rayonnement THz. Nous verrons dans ce manuscrit que ce montage de base est modifié à maintes reprises en fonction de l'usage désiré.

1.4.2 Échantillonnage en temps équivalent

Le rôle de la ligne à retard optique représentée sur la figure 1.4 est de changer le retard temporel entre les impulsions fs optique et les impulsions THz et ainsi de permettre un échantillonnage, point par point des impulsions THz émises par l'antenne. Les champs THz que nous souhaitons détecter ont une fréquence comprise dans la gamme [0.1 - 4] THz. Pour pouvoir reconstruire le champ THz par échantillonnage sans perte d'informations, le critère de Shannon-Nyquist impose que la fréquence d'échantillonnage soir au minimum deux fois supérieure à la fréquence la plus élevée du signal à mesurer. Pour pouvoir échantillonner un signal à 1 THz, il faut donc être capable d'effectuer des évènements d'échantillonnages à des intervalles de temps inférieurs à 500 fs. Il n'existe cependant aucun système électronique suffisamment rapide (bande passante limitée à quelques dizaines de GHz) pour effectuer cette mesure de façon directe. Un moyen de contourner cette difficulté est d'effectuer un échantillonnage en "temps équivalent" plutôt qu'un échantillonnage en temps réel. Le manque de rapidité du système d'acquisition électronique en aval de la balance de photodiodes n'est alors plus une contrainte. Le processus d'échantillonnage est illustré sur la figure 1.5.

A position de la ligne à retard fixe, un même évènement d'échantillonnage est répété un très grand nombre de fois dans les mêmes conditions. Le valeur du champ THz obtenue correspond à la moyenne sur les N évènements d'échantillonnage. N est de l'ordre de 10^6 pour une constante de temps de la détection synchrone de 10 ms (très souvent suffisante pour obtenir une sensibilité suffisante). Après la mesure d'un point du champ THz, la ligne à retard optique est déplacée et un autre point du champ THz peut être mesuré par moyennage de N évènements. La ligne à retard micrométrique a un pas de 1 μm, ce qui correspond à un pas en temps de 6.6 fs. Cette résolution temporelle rend en principe possible la mesure de fréquences jusqu'à 75 THz. En pratique, on est limité bien en-deçà de cette valeur par la détection électro-optique (voir section **1.3.3.**). Pour les études décrites dans ce manuscrit, le pas de la ligne à retard le plus petit que nous utilisons est de 5 μm, correspondant à un pas en temps de 30 fs.

Pour que l'échantillonnage en temps équivalent soit possible, une condition est indispensable. Il faut que pour une position de la ligne à retard fixe, la phase et l'amplitude du champ THz soient exactement les mêmes pour chacune des N impulsions fs successives. Lorsque le champ THz satisfait cette condition, on dira par la suite qu'il est synchronisé avec les impulsions fs (voir figure 1.6). Si ce n'est pas le cas (champ non synchronisé), le champ ne peut être mesuré et le signal collecte sur la balance de photodiodes est nul.

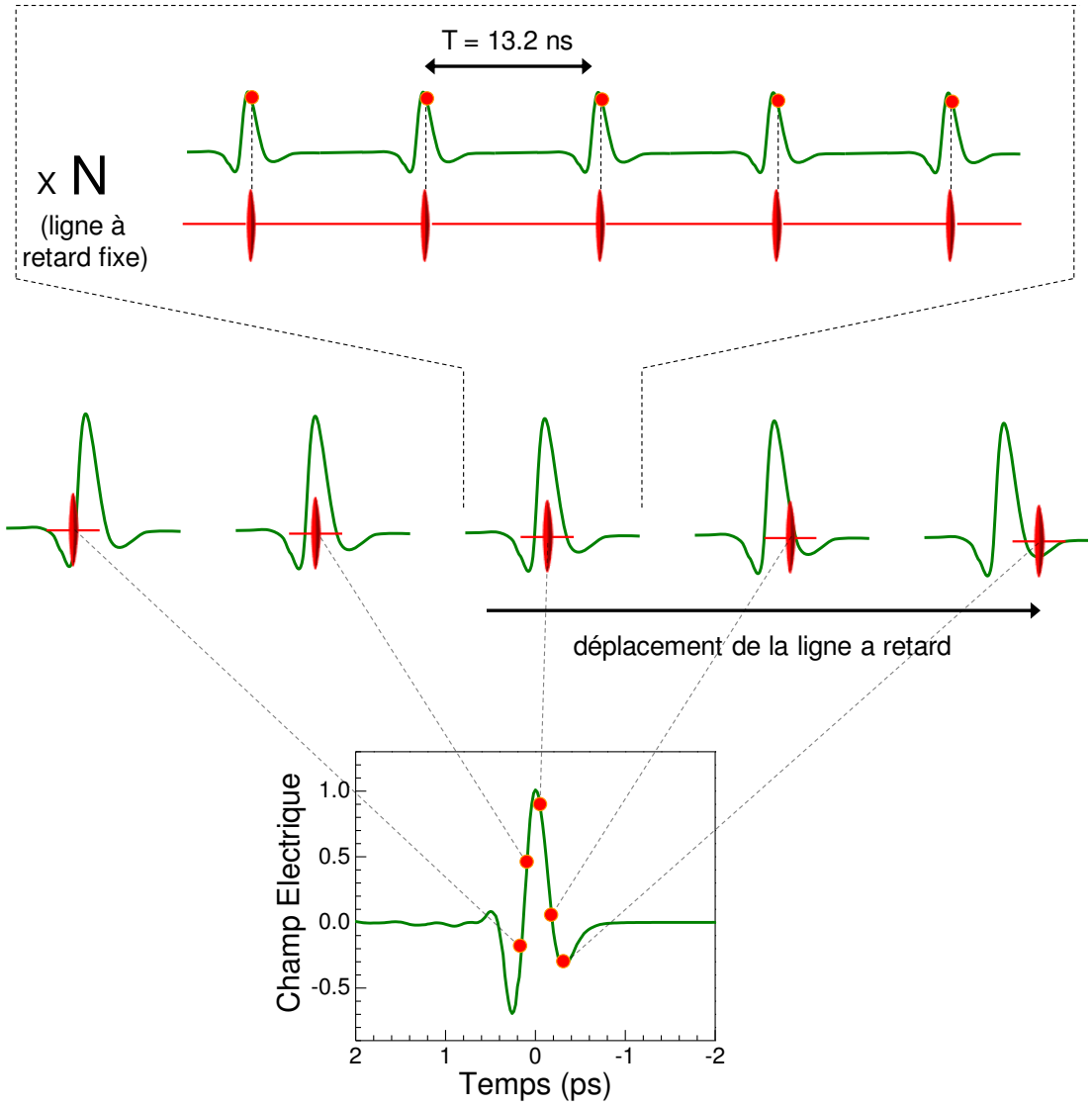


FIGURE 1.5 – Principe de l'échantillonnage électro-optique en temps équivalent. A position de la ligne à retard fixe, N évènements d'échantillonnage sont réalisés dans les mêmes conditions pour la mesure d'un point de l'impulsion THz. la ligne à retard est ensuite déplacée. Le déplacement de la ligne à retard permet d'échantillonner point par point l'impulsion THz qui peut ainsi être reconstruite en temps.

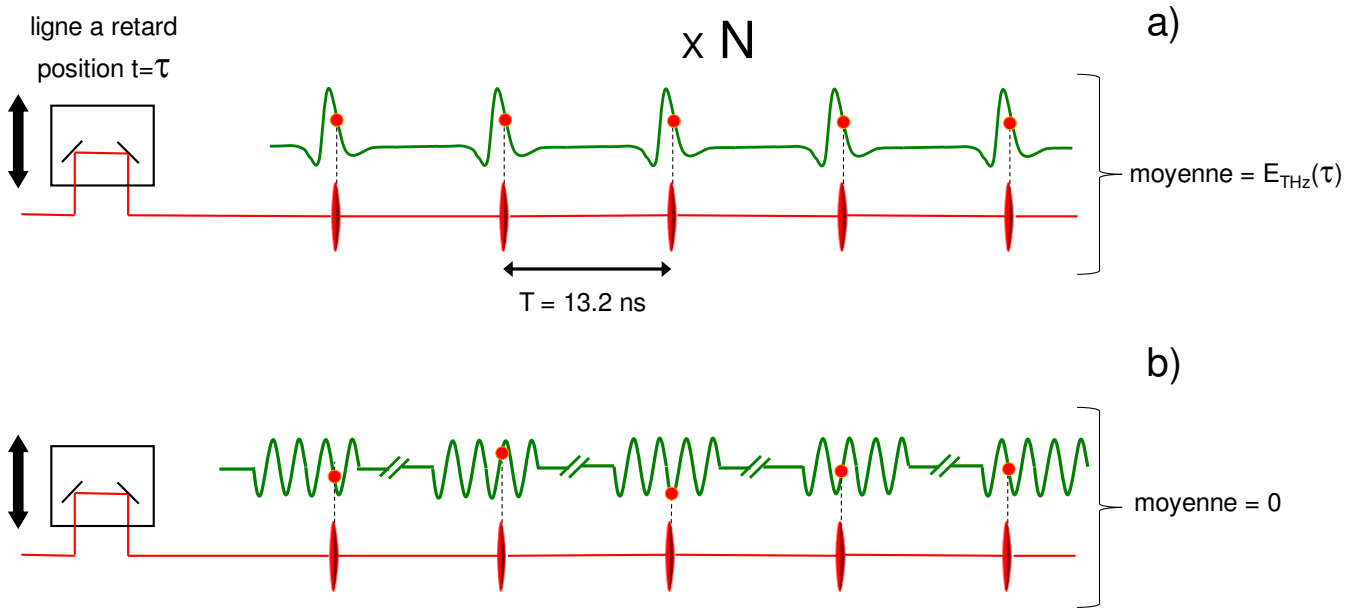


FIGURE 1.6 – Événements successifs d'échantillonnage à position de la ligne à retard fixe. a) Champ synchronisé. b) Champ non synchronisé.

1.4.3 Caractérisation de la source THz

Le dispositif expérimental permet de mesurer en temps le champ émis par l'antenne ou le champ transmis à travers l'échantillon. L'acquisition se fait via l'usage de la détection synchrone. La constante de temps de la détection synchrone définit le nombre d'évènements d'échantillonnage N à retard fixe dont le moyennage donne un point du profil du champ THz. La ligne à retard est ensuite déplacée et le moyennage est de nouveau effectué pour extraire un autre point du profil du champ THz. On peut ainsi reconstruire l'ensemble du profil temporel. Sur la figure 1.7, on peut voir le résultat d'une mesure du champ émis par l'antenne sans échantillon placé dans le dispositif avec un cristal de détection d'épaisseur 1 mm. L'impulsion THz a une largeur totale de 2 ps (fig 1.7.a). Son profil spectral (fig 1.7.b), obtenu par Transformée de Fourier rapide du signal en temps, présente un maximum à 0.9 THz et est nul à partir de 2.7 THz. Un creux est observé à 1.7 THz, qui correspond à une absorption résiduelle due à l'eau.

Le montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel permet également d'estimer la valeur du champ électrique THz. D'après la relation 1.2, on a :

$$E_{THz} = \frac{\lambda}{2\pi L n_0^3 r_{41}} \frac{\Delta I}{I_0}$$

Si en plus, on tient compte de la réponse fréquentielle du cristal $F(\omega_{THz})$ (voir fig 1.3.b référence [1]) et du fait que le champ THz incident sur le cristal est partiellement réfléchie

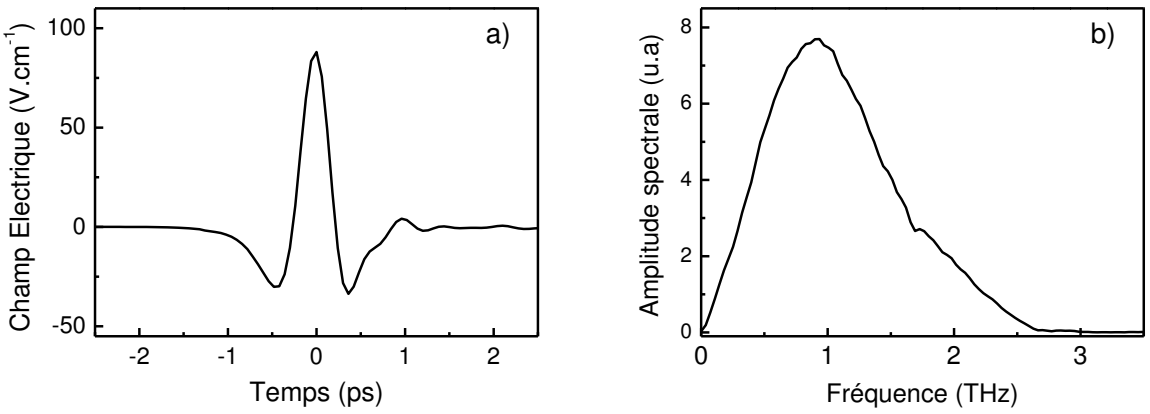


FIGURE 1.7 – Mesure d'une impulsion THz émise par l'antenne photoconductrice. a) Profil temporel. b) Profil spectral obtenu par Transformée de Fourier rapide du signal en temps.

(coefficient de transmission t), on a :

$$E_{THz}(\omega_{THz}) = \frac{\lambda}{2\pi L n_0^3 r_{41}} \frac{1}{tF(\omega_{THz})} \frac{\Delta I}{I_0}$$
$$= \alpha(\omega_{THz}) \frac{\Delta I}{I_0}$$

et pour le cristal de ZnTe d'épaisseur 1 mm à la fréquence de 1 THz [3]:

$$\alpha(\omega_{THz} = 1\text{THz}) = 25.9\text{kV/cm}$$

Par ailleurs :

$$\frac{\Delta I}{I_0} = \frac{S}{\sqrt{2} a_f 10^2 (U_{D1} + U_{D2})}$$

U_{D1} et U_{D2} sont les valeurs des tensions mesurées sur chacune des photodiodes. Afin de ne pas saturer la balance de photodiodes, on ajoute lors de ces mesures une résistance de 100 Ω en parallèle du circuit de transimpédance de gain 10^4 : cette méthode de mesure conduit au facteur 10^2 qui apparaît dans l'expression. S est la valeur affichée par la détection synchrone. Le facteur $\sqrt{2}a_f$ tient compte de la valeur RMS mesurée par la détection synchrone et du coefficient de Fourier $a_f = \frac{2}{\pi}\sin(\frac{\pi\tau}{T})$ ($\frac{\tau}{T}$ rapport cyclique) introduit par le choix de la modulation électrique appliquée à la source THz.
En utilisant cette procédure, la valeur maximale du champ émise par l'impulsion THz représentée sur la figure 1.7.a) a est évaluée à 89 V/cm.

3. La dépendance en fréquence de $\alpha(\omega_{THz})$ est donnée par celle de $F(\omega_{THz})$ qui varie peut dans la gamme [0-2] THz (fig 1.3.b).

1.5 Intérêt pour notre étude

L'usage de la spectroscopie THz dans le domaine temporel est au cœur des travaux discutés dans ce manuscrit. En particulier, la mesure de l'amplitude et de la phase du champ THz donne accès à une grande richesse d'informations. Ceci permet d'explorer les propriétés fondamentales de matériaux ou dispositifs avec les ondes THz. Via cette technique, l'observation de l'émission transitoire des LCQs (chap.3) permet d'étudier le comportement dynamique de ces dispositifs dont les performances (température de fonctionnement, contrôle du profil l'émission) sont encore à améliorer. le profil d'émission de ces lasers en régime de blocage de modes (chap.4) est aussi reconstruit à l'aide de la spectroscopie dans le domaine temporel. Cette dernière mesure est très intéressante car nécessaire pour caractériser les impulsions émises par le LCQ et impossible à effectuer avec les techniques d'autocorrélation standards utilisées en optique. La sensibilité très élevée de cette spectroscopie permet également de détecter l'émission THz du graphène sous excitation optique (chap.5). Cette mesure permet d'analyser des effets non-linéaires qui dépendent de manière subtile de la dynamique des porteurs de charge du matériau.
La spectroscopie THz dans le domaine temporel a de multiples applications hors recherche fondamentale. Ses applications s'orientent essentiellement sur l'imagerie non invasive [42], le contrôle qualité [8], l'identification des molécules [43] et sont en plein essor. Dans ce contexte, il est important de disposer de sources avec des caractéristiques variées (haute puissance, large bande, efficacité élevée) que l'on peut intégrer dans ces systèmes de spectroscopie. Nous mettons en avant dans notre travail la possibilité de contrôler la phase de LCQs avec une émission en régime continu ou impulsionnel. Ceci ouvre la voie à l'usage de ces lasers comme source puissante pour la spectroscopie dans le domaine temporel.

2 Les Lasers à Cascade Quantique THz

En 1970, Esaki et Tsu [44] ont mis en avant la similitude entre le potentiel périodique d'un cristal et celui introduit par une séquence répétée de couches nanométriques de semiconducteurs (superréseau). Les états électroniques introduits par le potentiel 1D lié à l'alternance des couches sont à l'origine de sousbandes au sein d'un même bande et Esaki et Tsu introduirent ainsi le concept de minibande et de minigap. Deux ans plus tard, Kazarinov et Suris évoquent la possibilité de l'amplification de lumière à partir de transitions entre des états de sousbandes différentes [45], dite transitions intersousbandes. Ils étudièrent théoriquement le comportement d'un superréseau sous l'application d'un champ électrique et les moyens d'en tirer parti pour produire une émission laser. En effet, les propriétés de ces transitions intersousbandes permettaient d'envisager de nouvelles possibilités pour les lasers semiconducteurs, en particulier l'accès à des fréquences d'émission dans le domaine du moyen infrarouge et du THz.
Les premières observations expérimentales de transitions intersousbandes ont été effectuées sur des systèmes Si/SiO_2 [46], notamment avec Tsui et Gornick [47] qui observèrent les premiers l'émission de lumière dans ce type d'hétérostructure en 1976. En 1985, West et Eglash [48] observèrent l'absorption intersousbande de multi-puits quantiques de GaAs/AlGaAs. Ils démontrèrent expérimentalement la valeur elevée de l'élément de matrice dipolaire associé à ces transitions ainsi que la possibilité de changer l'énergie de transition en modifiant la largeur des puits de potentiel, deux grands avantages de l'usage des transitions intersousbandes pour l'émission laser. En 1989, Helm [49] mesure la luminescence intersousbande d'un superréseau.
L'apparition des dispositifs exploitant ces transitions est finalement marquée par le premier détecteur QWIP (Quantum Well Infrared Photoconductor), réalisé aux Bell Laboratories [50]. Le premier laser intersousbande, nommé laser à cascade quantique, vit le jour en 1994 [14] dans l'équipe de F.Capasso.

Ce chapitre fournit les points clés nécessaires à la compréhension du fonctionnement des LCQs THz. Nous introduisons dans un premier temps les propriétés des transitions intersousbandes et leurs intérêts (section **2.1**). Elles forment la brique élémentaire du fonctionnement des LCQs. Nous décrivons ensuite dans la section **2.2** la composition de ces dispositifs; d'une part le choix des dessins de structure de bande qui permettent l'émission laser THz; d'autre part les guides d'onde associés permettant le confinement

du mode électromagnétique dans le milieu à gain du LCQ. Enfin, nous abordons les outils de caractérisation de ces lasers (caractérisation électrique dans la section **2.2.3** et mesure du gain spectral dans la section **2.3**) qui sont à la base des travaux décrits dans les deux chapitres suivants.

Sommaire

2.1 Ingénierie quantique dans les structures semiconductrices . 23
2.1.1 Les transitions intersousbandes 23
2.1.2 Le LCQ: laser intersousbande 25
2.1.3 État de l'art 27
2.2 Les LCQs THz 27
2.2.1 Structure de bande 28
2.2.2 Guidage de l'onde THz 30
2.2.3 Caractéristiques courant-tension-puissance optique 32
2.3 Gain de LCQs THz 34
2.3.1 Expression analytique du gain 34
2.3.2 Couplage d'une impulsion THz dans un LCQ 36
2.3.3 Mesure du gain 38
2.3.4 Résultats 39
2.4 Conclusion 41

2.1 Ingénierie quantique dans les structures semiconductrices

2.1.1 Les transitions intersousbandes

Les lasers semiconducteurs sont apparus dès 1962 [51, 52]. Une étape importante pour l'amélioration des performances de ces dispositifs a été franchie en 1978 avec la réalisation des premiers lasers à puit quantique [53]: l'usage d'hétérostructures permet de confiner les porteurs de charge. La densité de porteurs susceptibles de générer des photons est ainsi accrue drastiquement et conduit à une réduction forte du seuil laser. Ces lasers reposent tous sur la recombinaison radiative interbande de paires électron-trou confinées. La fréquence d'émission est alors donnée par l'énergie de la bande interdite. Il y a donc un obstacle au développement de ces lasers dans le moyen infrarouge pour des longueurs d'ondes supérieures à environ 5 μm [1] (énergies inférieures à 250 meV) du fait du faible nombre de matériaux à bande interdite suffisamment petite. Cette difficulté peut être levée en utilisant des transitions radiatives intersousbandes.

Une transition dite "intersousbande" se produit entre deux états d'une même bande, qui ont donc un même profil de dispersion suivant les directions k_x, k_y (fig 2.1.a). Les profils d'absorption comme d'émission se distinguent totalement de ceux associés à des transitions interbandes. Ils sont marqués par une raie spectrale à une énergie donnée, de façon similaire à un système atomique (fig 2.1.b).
Les dépendances générales de l'énergie d'une transition intersousbande avec les paramètres de l'hétérostructure choisie peuvent être obtenues en s'appuyant sur l'exemple du cas simple d'un puits idéal (représenté sur la figure 2.1 a)). Une épaisseur L_z de GaAs

1. Une émission continue a été observée à 5.6 μm à température ambiante pour des lasers à cascade interbande et est reportée dans [54].

(matériau B) est insérée entre deux couches épaisses d'AlGaAs (matériau A) suivant la direction de croissance z. Le puits est formé par la différence de bande interdite entre ces deux matériaux.

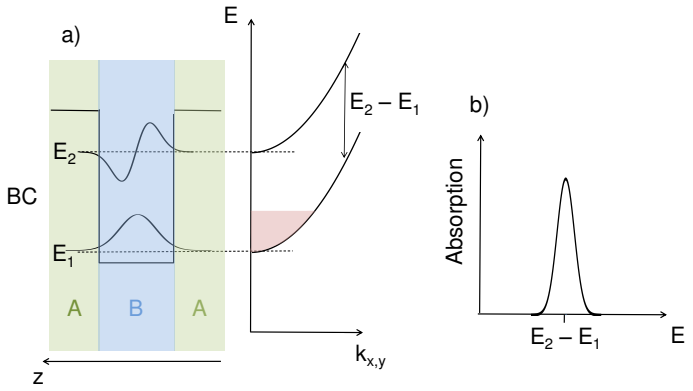


FIGURE 2.1 – Transition intersousbande dans une hétérostructure de semiconducteurs d'axe de croissance z (matériau A, B et A). a) Une transition intersousbande s'effectue par transition d'un électron entre deux états d'une même bande (ici bande de conduction). La dispersion suivant $k_{x,y}$ des deux sous-bandes impliquées est identique résultant en une absorption type raie spectrale centrée sur l'énergie de transition.

L'équation de Schrödinger associée aux fonctions d'onde $\Psi(\mathbf{r})$ caractéristiques du système est :

$$H_0\Psi(\mathbf{r}) = \left\{\frac{\mathrm{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r})\right\}\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r})$$

où p et m représentent l'impulsion et la masse de l'électron, $V(\mathbf{r})$ le potentiel cristallin (atomique + celui créé par le puits). Les fonctions enveloppe $\chi_n(z)$ sensibles au potentiel de confinement [55] sont solutions de l'équation :

$$\left\{\frac{-\hbar^2}{2m^*}\frac{d^2}{dz^2} + V(\mathbf{z})\right\}\chi_{n,p}(z) = E_p\chi_{n,p}(z)$$

où p correspond à l'indice des différentes sous-bandes de la bande n. La masse m^* ($m^* = 0.067m$ dans le cas du GaAs) est la masse effective. Pour une bande donnée, m^* est indépendante de l'énergie pour un puits dit "idéal". C'est le cas pour une dispersion parabolique des bandes. Ces équations peuvent être résolues analytiquement pour déterminer les énergies propres. Dans le cas d'un puits de potentiel infini on a finalement:

$$E_p = \frac{\hbar^2\pi^2}{2}\frac{p^2}{m^*L_z^2}$$

L'écart d'énergie entre deux niveaux est proportionnel à $1/L_z^2$. Ainsi l'énergie associée à une transition intersousbande peut être modifiée en changeant la taille du puits. Ceci est un point clé de l'ingénierie quantique dans les hétérostructures. Une description complète des propriétés des transitions intersousbandes dans les puits quantique est faite dans les références [56, 57].

2.1.2 Le LCQ: laser intersousbande

L'obtention de l'effet laser à partir de transitions intersousbandes dans un superréseau nécessite une inversion de population. Elle repose sur deux éléments clés: un champ électrique orienté selon l'axe de croissance (pependiculaire aux plans des couches) et des processus d'injection tunnel permettant de contrôler le transport des charges d'un puits à l'autre.
La brique élémentaire d'un superréseau est formée de deux puits et d'une barrière. Considérons deux puits identiques infinis, séparés d'une barrière fine d'épaisseur b. Dans le cas d'une barrière étroite, un couplage entre les puits va apparaître et provoquer la levée de dégénérescence des niveaux d'énergie E_p (avec p entier naturel) identiques des deux puits. Lorsque l'on accroît le nombre de puits identiques couplés, ce mécanisme conduit à l'apparition de minibandes et de minigap introduits par Esaki [44] comme on peut le voir sur la figure 2.2. La largeur en énergie de la minibande augmente avec le nombre de puits et l'intensité du couplage. Ce couplage va conduire à des fonctions d'onde délocalisées sur les différents puits, permettant le transfert de porteurs de charges d'un puits à l'autre par effet tunnel.

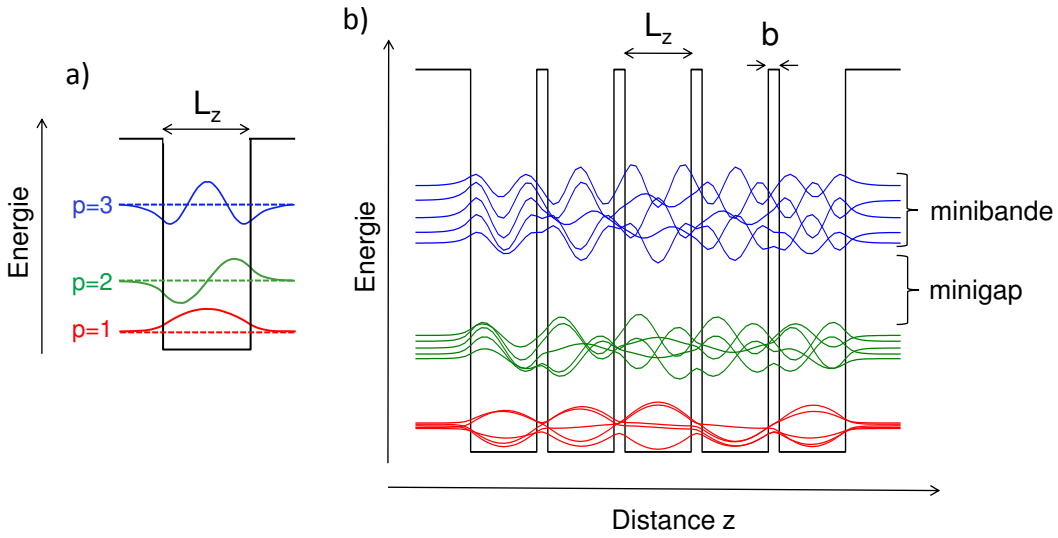


FIGURE 2.2 – a) Puits quantique idéal. Les trois premiers niveaux d'énergie sont représentés ainsi que les fonctions d'ondes associées. b) Cinq puits couplés par une barrière fine. la levée de dégénérescence des états des cinq puits conduit à l'apparition de sous-bandes ou "minibandes" (la largeur des puits et des barrières vaut ici respectivement 12 nm et 2 nm).

La proposition de Kazarinov [45] d'appliquer un champ électrique le long de l'axe de croissance repose sur l'idée suivante. Étant donné un ensemble de puits identiques répartis dans une hétérostructure, l'énergie de l'état haut de la transition radiative d'un puits peut être ajustée par rapport à celle de l'état bas du puits précédent, en exploitant le potentiel énergétique ajouté par un champ électrique. Ceci permet de rendre plus facile l'obtention d'une inversion de population.

Finalement, le superréseau associé à un laser à cascade quantique est constitué de la répétition d'une hétérostructure complexe, dite période. Le champ électrique appliqué a pour effet direct "d'incliner" la structure de bande, représentée sur la figure 2.3. Chaque période est constituée d'une région où s'effectue la transition radiative suivie d'une région de relaxation/injection. Dans la région de transition radiative, l'inversion de population est assurée entre les états haut et bas de la transition laser, respectivement $|e\rangle$ et $|g\rangle$. La région d'injection relaxation est dessinée pour permettre l'évacuation des porteurs de charges et leur injection vers l'état haut de la période suivante. L'état $|0\rangle$ représente le superréseau qui permet de connecter deux périodes successives. Un laser à cascade quantique est constitué d'une centaine de ces périodes répétées. Un électron qui relaxe radiativement peut être réinjecté dans l'état haut de la transition radiative de la période suivante. C'est l'origine de la dénomination "cascade" associée à ces lasers. Dans un laser à cascade quantique, la transition radiative s'effectue dans la bande de conduction et met en jeu uniquement les électrons. On parle de laser unipolaire.

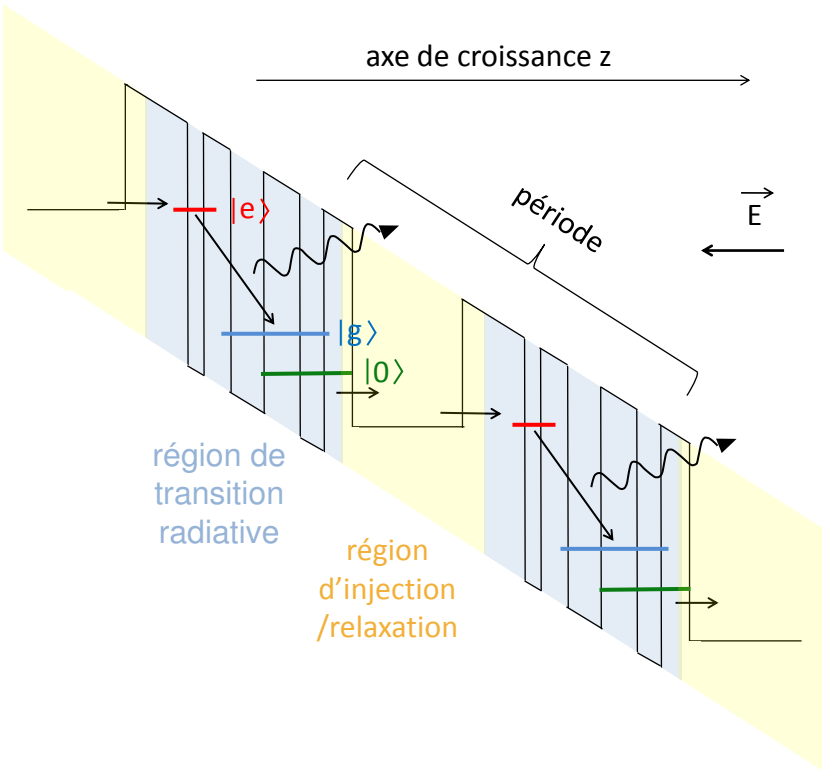


FIGURE 2.3 – Schéma de principe de la structure de bande d'un laser à cascade quantique. La transition radiative s'effectue entre les états $|e\rangle$ et $|g\rangle$. L'état $|0\rangle$ permet le couplage à la période suivante. L'alternance des couches est répétée de sorte que les zones où s'effectue la transition radiative succèdent à des zones de transport pur (puits et barrières non représentés) permettant l'injection dans l'état $|e\rangle$ et la relaxation de l'état $|g\rangle$ des électrons.

2.1.3 État de l'art

Moyen Infrarouge et courtes longueurs d'ondes

Dans le moyen infrarouge pour des longueurs d'ondes supérieures à 12 μm, les matériaux de choix sont à base de systèmes InGaAs (puits) /InAlAs (barrières) [58]. Les lasers associés fonctionnent à température ambiante [59], avec des rendements "à la prise" supérieurs a 50 % [60], peuvent produire des puissances de plusieurs Watts et ont désormais des applications hors-laboratoires. Le régime d'émission peut correspondre à un rayonnement continu ou impulsionnel. En 2009, le régime de fonctionnement en blocage de modes, permettant de produire des impulsions ultracourtes a été démontré [61]. La limite aux hautes énergies (ou aux basses longueurs d'onde) est fixée par la taille de la discontinuité de la bande de conduction entre les deux matériaux associés dans l'hétérostructure (l'énergie de la transition radiative ne peut pas être plus grande que la profondeur du puits). Des alliages de InAs/AlSb ont par exemple permis d'atteindre des longueurs d'onde de 3,3 μm a 200 K [16] pour une discontinuité de 2.1 eV.

Domaine THz

Les lasers THz (au-delà de 30 μm) sont essentiellement fabriqués à base de GaAs. Leur gamme de fréquence s'étend jusqu'à la valeur basse de 1.2 THz [15] (soit 250 μm ou 5 meV). Dans ce domaine de fréquences, l'énergie d'agitation thermique (25 meV a 300 K) est du même ordre de grandeur que l'énergie de la transition radiative et limite fortement les performances en température de ces dispositifs. Les valeurs maximales atteintes sont 199.5 K en régime pulsé [62] et 117 K en régime continu [63]. La dépendance en température du courant seuil est dominé par les processus d'émission de phonons optiques [64, 65]. Les LCQs THz sont capables d'émettre de fortes puissances dans des régimes de fonctionnement variés: 1 W en régime pulsé [66] et jusqu'à 138 mW en régime continu [67]. Le régime de blocage de modes a récemment été obtenu [21, 22] et est discuté en détails dans le chapitre 4.

2.2 Les LCQs THz

La fabrication des lasers à cascade quantique THz requiert une maîtrise poussée de la croissance des hétérostructures, essentielle au contrôle des temps de vie des états associés à la transition intersousbande exploitée pour l'effet laser. Le temps de vie associé à l'émission spontanée de l'ordre de la dizaine de μs [68] est très supérieur à ceux des processus non radiatifs (phonon optique, interaction électron-électron ou encore diffusion par les impuretés) compris dans la gamme 1 à 100 ps [68]. Les transitions optiques sont donc en compétition avec les mécanismes de relaxation non radiatifs. Ces derniers ont donc une influence considérable sur la possibilité d'obtenir une émission stimulée. Ces considérations mènent à plusieurs choix possibles pour la structure de bande adéquate décrits succinctement en 2.2.1. Les guides d'onde spécifiques permettant le confinement des modes propagatifs THz dans la cavité sont introduits dans la section 2.2.2 . On peut se reporter aux revues [69, 70] ou à l'ouvrage [13] pour une description plus détaillée de ces lasers.

2.2.1 Structure de bande

Nous avons représenté sur la figure 2.4 a) les deux états qui interviennent pour la transition laser. Le temps de vie de l'état haut $|e\rangle$ est noté τ_e : sa contribution correspondant à une transition vers l'état $|g\rangle$ est notée τ_{eg} et celle vers d'autres états est noté τ_{e0}. Le temps de vie de l'état bas $|g\rangle$ est noté τ_g. Enfin, η est l'efficacité d'injection des porteurs dans l'état $|e\rangle$. Pour permettre l'émission laser, il faut maximiser l'inversion de population. Pour cela, il est nécessaire à la fois d'accroître τ_e, d'accroître le rapport $\frac{\tau_{eg}}{\tau_g}$ (pour que le niveau bas se vide plus vite qu'il ne se remplit) et de maximiser l'efficacité d'injection dans l'état haut η (pour injecter le maximum de porteurs dans l'état haut). Différents dessins de structure de bande réalisent ces conditions.

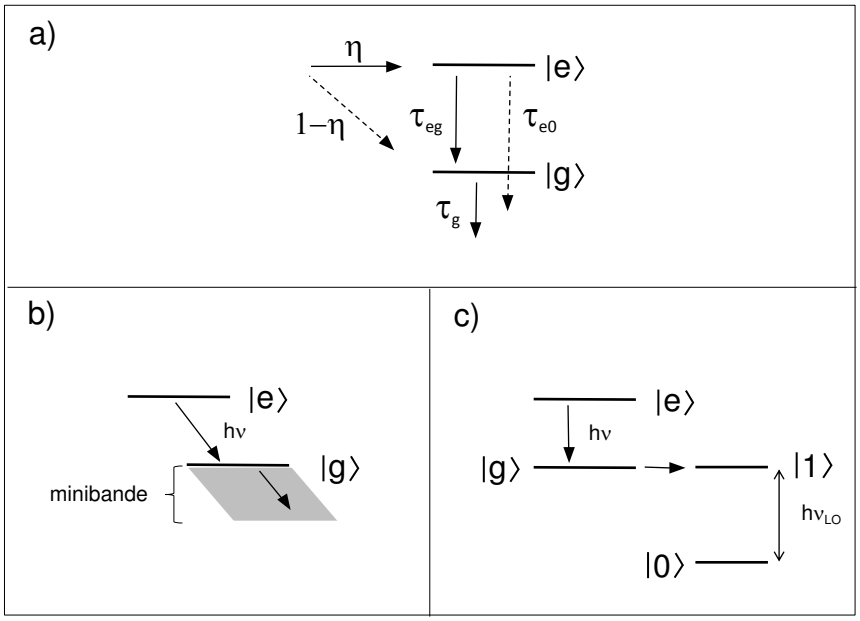


FIGURE 2.4 – a) Représentation de la transition laser. Différents dessins peuvent être envisagés pour l'extraction efficace des porteurs de l'état bas $|g\rangle$: b) dessin "bound to continuum" c) extraction tunnel résonante avec phonon longitudinal optique. les porteurs de l'état $|g\rangle$ sont évacués efficacement vers l'état $|1\rangle$, séparés par l'énergie d'un phonon longitudinal optique de l'état $|0\rangle$. L'état $|0\rangle$ permet de plus l'injection vers l'état $|e\rangle$ de la période suivante.

Structures "chirped superlattice" et "bound to continuum"

La structure de bande "chirped superlattice" [71] utilisée pour les LCQs moyen-infrarouge a été adaptée au domaine THz et a permis de concevoir le premier LCQ émettant dans cette gamme de fréquences en 2002 [72]. Dans cette structure, une période est constituée de deux minibandes. La première est un réservoir d'électrons pour peupler le niveau $|e\rangle$. L'état $|g\rangle$ est situé en haut d'une seconde minibande utilisée pour évacuer les électrons de sorte que τ_g est très faible (fig 2.4 b)). La structure "d'état lié au continuum" (en

anglais "bound to continuum" dit BTC) [73] est un dessin de structure de bande très proche utilisant une transition radiative permettant d'exalter l'inversion de population. La figure 2.5 représente la structure de bande d'un laser BTC émettant à 2.1 THz réalisé par Worral et al. [74]. Les fonctions d'onde des états haut et bas de la transition radiative sont respectivement repésentées en rouge et violet. Le transport d'une période à l'autre est réalisé par des minibandes (en bleu). Un état injecteur (fonction d'onde en vert) permet de canaliser les électrons de la minibande vers l'état haut de la transition laser. L'état bas se situe en bord d'une autre minibande qui permet l'évacuation des porteurs. Le dépeuplement rapide de l'état bas via la minibande se fait par des mécanismes tels que la diffusion aux interfaces [75] ou encore l'interaction électron-électron [68]. Ces lasers ont de bonnes performances en terme de puissance rayonnée mais ne fonctionnent que jusqu'à des températures de l'ordre de 100 K. Les différents LCQs que nous étudions dans cette thèse sont formés à partir du dessin BTC.

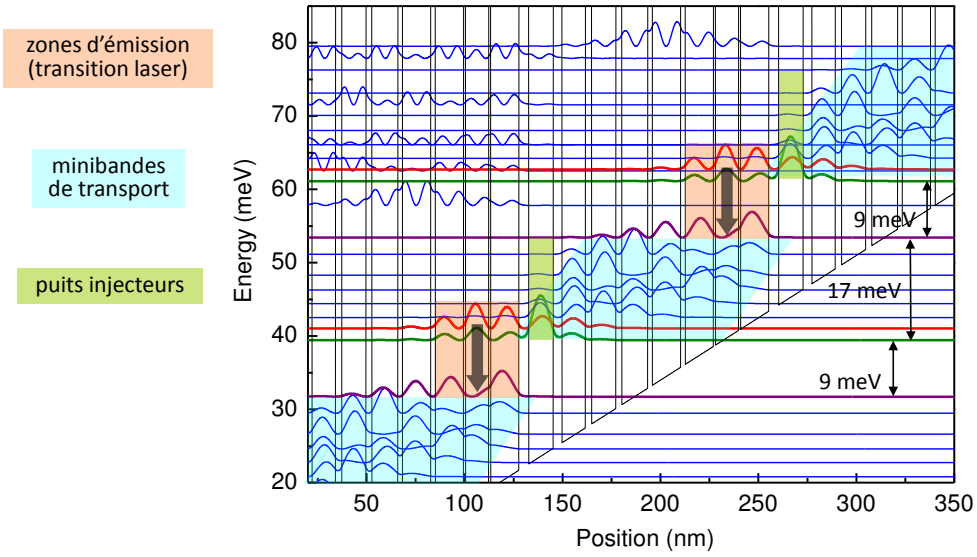


FIGURE 2.5 – Structure de bande typique d'un LCQ THz bound to continuum.

Structures "extraction tunnel résonante"

L'état bas de la transition radiative peut être dépeuplé par injection résonante vers un état $|1\rangle$ dans un puits voisin (figure 2.4.c). Le temps de vie de porteurs dans l'état $|1\rangle$ peut être rendu extrêmement court en exploitant la diffusion par phonons. Un schéma de structure de bande pour y parvenir consiste à placer un état $|0\rangle$ situé précisément à 36 meV (énergie d'un phonon longitudinal optique dit phonon LO) en-dessous de l'état vers lequel sont extraits les porteurs de $|g\rangle$. La diffusion par phonon est un processus extrêmement efficace, de temps de vie sub-picoseconde [76]. Ainsi, l'état $|1\rangle$ se dépeuple très efficacement par diffusion phonons LO. De cette manière, on peut espérer diminuer fortement τ_g tout en préservant le temps de vie de l'état haut. Cette architecture est à la base des dessins dit "phonon resonant", démontrée pour la première fois au MIT [76]. Les LCQs THz qui en sont issus présentent les plus hautes performances en température [77].

Enfin, d'autres dessins existent reposant sur une combinaison des structures décrites précédemment ou notablement différentes (dessin dit "deux puits quantiques" [78]).

2.2.2 Guidage de l'onde THz

La figure 2.6 représente de manière schématique un LCQ muni d'une cavité de type Fabry-Pérot. Après la croissance des couches de la région active typiquement par épitaxie par jet moléculaire (MBE), le dispositif est constitué d'un empilement d'une centaine de couches de semi-conducteurs (formant la région active du laser en bleu d'épaisseur environ 10 μm), inséré entre deux couches fortement dopées ($\sim 10^{18}$ cm^{-3}), sur un substrat de GaAs de plusieurs centaines de microns d'épaisseur. L'empilement de couches de semiconducteurs est ensuite gravé ce qui permet de définir une forme en ruban (voir figure 2.6.a) de largeur typique 100 μm (fig 2.6.b). Puis des contacts métalliques supérieurs et inférieurs sont ajoutés qui permettent d'appliquer un champ électrique parallèle à l'axe de croissance Z. La couche dopée supérieure permet une bonne injection du courant. La région active du LCQ délimite également la cavité. Les extrémités du ruban laser (appelés par la suite "facettes") jouent le rôle de miroirs d'une cavité Fabry-Pérot. Le contraste d'indice entre le matériau semi-conducteur (indice de 3.6) et l'air (indice de 1) suffit à réfléchir une fraction non négligeable de l'onde qui se propage le long du ruban dans la cavité.

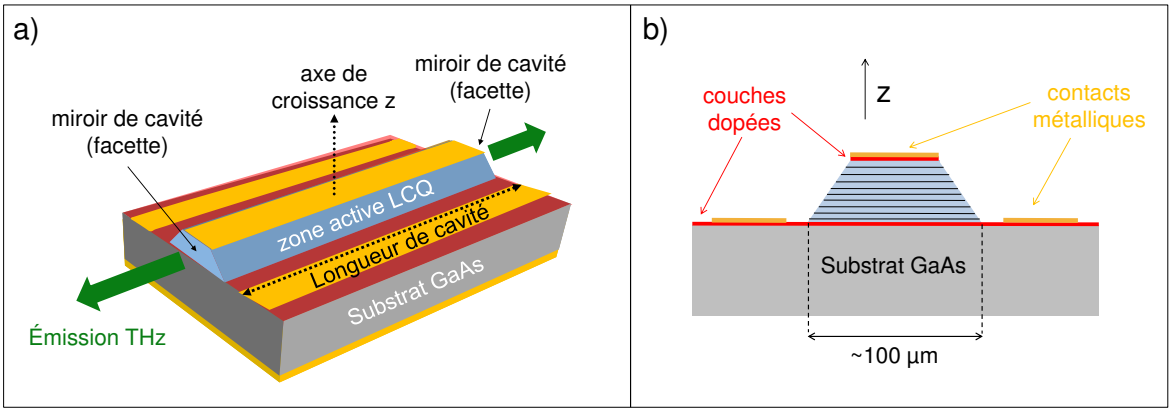


FIGURE 2.6 – Géométrie typique d'un laser à cascade quantique. La région active est en bleu clair, les contacts métalliques en jaune et le substrat en gris. a) Vue d'ensemble. b) Vue latérale d'une facette.

L'émission laser a une polarisation Transverse Magnétique (TM - champ électrique perpendiculaire au plan des couches). Pour la rendre possible, il faut confiner le mode optique dans la région active. Un guide d'onde diélectrique à contraste d'indice peut être utilisé pour les LCQs moyen-infrarouge. Il est formé à l'aide de revêtements à indice de réfraction plus faible que les couches du milieu à gain qu'ils enserrent. L'épaisseur des revêtements doit être de l'ordre de la longueur d'onde. Pour les lasers THz, il faudrait donc effectuer la croissance de revêtements d'épaisseur de plusieurs dizaines de microns (une fréquence de 2 THz correspond à une longueur d'onde de 150 μm dans

l'air et environ 40 μm dans le GaAs), non envisageable pour des raisons de coût et de temps de croissance. Les guides d'onde plasmoniques [13] constituent une alternative à ce problème. Les plasmons de surface correspondent à des ondes qui se propagent parallèlement à l'interface de deux matériaux. L'existence de ces ondes n'est possible que si ces deux matériaux ont des permittivités diélectriques dont les parties réelles sont de signe opposé [79]. Cette condition est respectée à l'interface d'un métal (partie réelle négative) avec un semiconducteur (permittivité réelle positive). Deux types de guides plasmoniques ont été développés pour les LCQs THz : respectivement "simple plasmon" et "métal-métal". Ils se distinguent par un confinement différent du mode, quantifié par la grandeur Γ, recouvrement du mode avec la région active du LCQ.

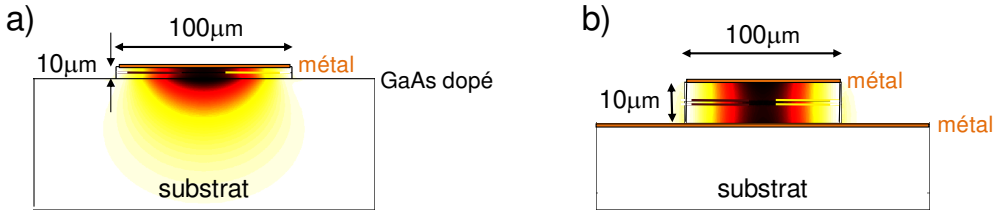


FIGURE 2.7 – Vue transverse du ruban d'un laser à cascade quantique. Distribution d'énergie du mode plasmonique fondamental a) guide simple plasmon. b) guide métal-métal.

Le guide simple plasmon (figure 2.7 a)) est constitué d'une part d'une couche de métal qui recouvre le dessus de la région active. Par ailleurs, une couche fortement dopée de GaAs d'épaisseur comprise entre 0,2 et 0,8 μm est placée immédiatement au dessous de la région active [72] et recouvre le substrat épais de GaAs non dopé. Le mode plasmonique associé s'étend largement au-delà de la région active (Γ de 0.1 a 0.5).
Les guides métal-métal (figure 2.7 b)) sont constitués de deux couches de métal dans laquelle la région active est prise en sandwich. Le confinement y est très élevé et Γ approche la valeur de 1 [80]. Ces lasers ont ainsi de meilleures performances en température que les simples plasmons. Par ailleurs, des seuils de courant pour l'émission laser généralement plus faibles sont obtenus. En revanche, le couplage à la facette entre le mode confiné et le mode d'espace libre est au désavantage de ce guide. D'une part, il se traduit par une réflectivité aux facettes beaucoup plus forte pour les guides métal-métal (de 0.5 à 0.9 à comparer à environ 0.35 pour un simple plasmon). En conséquence, les pertes par transmission aux facettes sont bien plus faibles que celle par absorption du guide: peu de photons s'échappent de la cavité (de 5 à 20%) avant d'être réabsorbés. La puissance optique de quelques mW est donc beaucoup plus faible que pour un simple plasmon (1 W est le record de puissance rayonnée obtenue pour un laser simple plasmon [66]). D'autre part, la taille transverse du mode métal-métal, sub-longueur d'onde, se traduit par une forte divergence du faisceau laser en espace libre.

2.2.3 Caractéristiques courant-tension-puissance optique

Le seuil d'émission laser, la plage d'émission en fonction du courant injecté ou encore l'évolution de la puissance optique sont des caractéristiques essentielles du comportement d'un LCQ et peuvent être obtenues par des mesures couramment appelées LIV (pour "Luminescence-Intensité-Voltage"). Les LIV correspondent au protocole de caractérisation systématique de ces lasers.

Après la fabrication de l'échantillon décrite dans les paragraphes précédents, il est nécessaire de fixer l'échantillon et le connecter pour permettre l'injection de courant, et donc son usage. Les différents échantillons étudiés dans cette thèse sont fournis par nos collaborateurs de l'Université de Leeds (équipe du Prof. E.H. Linfield) et de l'Université de Cambridge (équipe du Prof. D.A. Ritchie). Une fois l'étape de fabrication terminée, ces lasers se présentent initialement sous la forme d'un "wafer" de surface de l'ordre du cm^2. Afin de définir la longueur de cavité (entre 1.5 et 3 mm pour les lasers étudiés ici), il est nécessaire de cliver ce "wafer", c'est à dire de le tailler. Ceci est fait en utilisant une pointe diamant. La qualité des facettes après la coupe est vérifiée à l'aide d'un microscope. Le LCQ, une fois clivé est positionné sur une embase en cuivre enduite d'or. La fixation se fait via une feuille d'indium intercalée entre le laser et la monture en cuivre. L'indium porté au-dessus de son point de fusion (156 °C) permet d'effectuer une brasure. Ce procédé de fixation favorise une bonne dissipation thermique du LCQ vers son embase. Des contacts électriques sont ajoutés de part et d'autre du LCQ et connectés au montage électrique externe. Ces contacts peuvent être soit des plots en céramique recouverts d'or, soit des guides d'ondes (pour les applications hautes fréquences - voir chap. 3 fig. 3.4). La connexion entre les contacts et le LCQ se fait via des fils de microsoudure (voir figure 2.8).

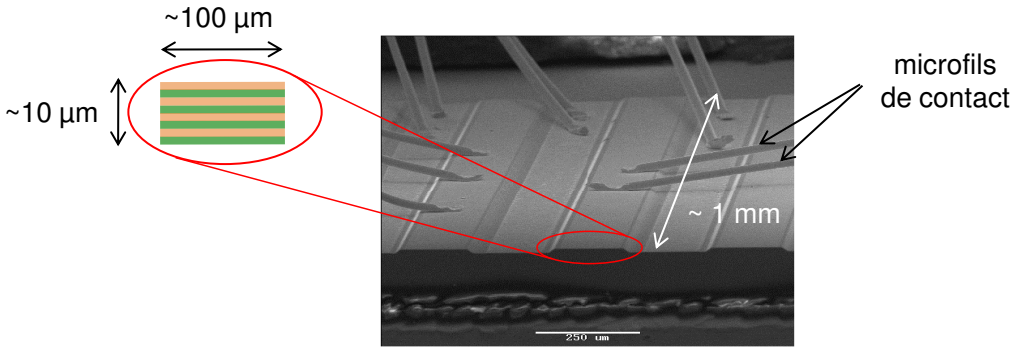


FIGURE 2.8 – Image au microscope électronique à balayage d'un LCQ clivé et contacté avec ses dimensions caractéristiques (les traits rouges mettent en évidence la facette du laser).

Le LCQ et son embase en cuivre sont ensuite fixés sur le doigt froid du cryostat placé au centre du dispositif de spectroscopie dans le domaine temporel illustré sur la figure 1.4 (chap.1). Pour déterminer les propriétés du LCQ, on modifie la valeur du courant appliqué au LCQ. Le courant injecté est modulé par une fonction créneau à 10 kHz. Nous

utilisons typiquement un rapport cyclique de 10 % permettant d'éviter des effets de dissipation thermique forts dans le laser. L'émission THz est collectée via les miroirs paraboliques qui focalisent le rayonnement sur un détecteur pyroélectrique, positionné à la place du cristal de détection (enlevé pour la mesure de la caractéristique LIV). Une modulation supplémentaire est appliquée au LCQ à une fréquence basse (associée à la réponse lente du détecteur pyroélectrique, typiquement 25 Hz) et sert de référence pour la détection synchrone.

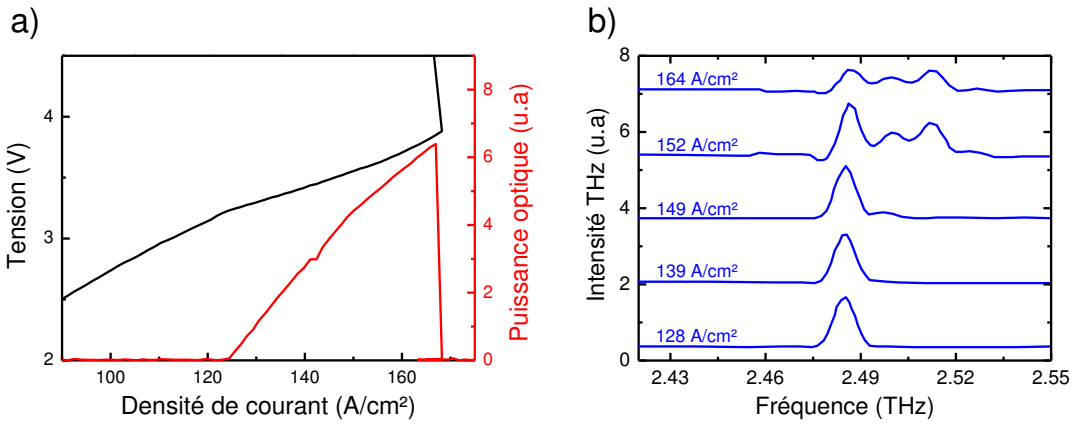


FIGURE 2.9 – Caractéristique de l'échantillon de croissance L182 émettant à 2.5 THz à 10 K pour une longueur de cavité 2.85 mm (feuille de croissance en annexe B). a) Caractéristiques courant-tension-puissance optique. b) Spectres du laser (mesures FTIR effectuées par nos collaborateurs de l'université de Leeds) pour diverses densités de courant.

Le résultat de la caractérisation Luminescence-Intensité-Voltage est représenté sur la figure 2.9.a) pour un laser émettant à environ 2.5 THz (croissance L182 donné en annexe B.). On distingue trois régimes de fonctionnement différents. Pour des densités de courant comprises entre 0 à 124 A/cm^2, la puissance rayonnée par le laser est nulle. Le laser est en-dessous du seuil. Les valeurs du champ électrique appliqué perpendiculairement ne permettent pas un bon alignement des niveaux de la structure de bande. Par conséquent, l'injection/l'évacuation des porteurs n'est pas assez efficace pour favoriser une inversion de population suffisante pour initier l'émission laser. Le seuil de l'émission laser se situe à 124 A/cm^2. Pour des densités de courants comprises entre 124 et 168 A/cm^2, la puissance rayonnée est non nulle, c'est le régime de fonctionnement du LCQ. Il se traduit par une baisse de la résistance dynamique du laser (la pente de la courbe tension-courant s'infléchit de part et d'autre de 124 A/cm^2). C'est le signe d'un alignement optimal des niveaux de la structure. Enfin, au-delà de 168 A/cm^2, la structure de bande est totalement désalignée et l'effet laser cesse. On peut également mesurer le spectre émis par le laser avec un spectromètre InfraRouge à Transformée de Fourier (FTIR). Comme on peut le voir sur la figure 2.9.b), le laser émet sur un seul mode (à la fréquence de 2.485 THz) aux densités de courant inférieures à 149 A/cm^2. A des densités de courant supérieures à 149 A/cm^2, le spectre du laser est multimode.

2.3 Gain de LCQs THz

Après cette introduction sur les LCQs THz, nous abordons dans cette section la notion de gain, son comportement et sa mesure via la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous verrons que cette grandeur joue un rôle essentiel pour les expériences discutées dans les chapitres 3 et 4.
Les mesures de gain sont un outil important de caractérisation des LCQs. Elles permettent par exemple d'évaluer expérimentalement les pertes du guide d'onde, qui sont un facteur limitant des performances du laser (valeur du seuil et efficacité de pente). Une méthode standard pour effectuer la mesure du gain de lasers semiconducteurs est la méthode dite de Hakki-Paoli [81]. Elle consiste à mesurer le contraste des franges d'interférence des modes Fabry-Pérot de cavité en fonction du courant injecté. La valeur du contraste permet de remonter à celle du gain [13]. Cette méthode présente deux fortes limitations: elle ne permet pas d'étudier le gain au-delà du seuil laser et ne peut être faite que dans une bande étroite autour de la fréquence d'émission. Les mesures de gain par transmission du rayonnement d'une source externe apportent plus d'informations. En particulier, l'usage d'un système de spectroscopie dans le domaine temporel est très intéressant. La détection est cohérente et n'est donc sensible qu'aux impulsions THz sources transmise dans le LCQ: ceci permet l'extraction du gain de part et d'autre du seuil laser (le détecteur n'est pas "aveuglé" par le rayonnement incohérent du LCQ). De plus, les impulsions THz large-bande permettent d'explorer les propriétés du gain sur une gamme étendue de plusieurs THz autour de la fréquence d'émission du LCQ. Dans la gamme THz, ces mesures ont été effectuées pour la première fois en 2007 à l'université de Vienne [12] et ensuite par l'équipe THz du LPA [11]. Cette méthode est également applicable aux lasers moyen IR [82].

2.3.1 Expression analytique du gain

Lorsque le LCQ est porté au-dessus de son seuil laser, l'alignement des niveaux de la structure de bande est ajusté de sorte à réaliser une densité volumique d'inversion de population Δn suffisante pour que l'oscillation laser démarre. Il y a plus de porteurs dans l'état haut $|e\rangle$ que dans l'état bas $|g\rangle$ de la transition laser. Le régime transitoire de "démarrage" du laser se manifeste alors par une amplification de la lumière dans la cavité du laser par émission stimulée. Cela signifie que l'onde électromagnétique dans la cavité laser subit un gain $g(\omega)$ supérieur aux pertes du milieu $\alpha(\omega)$, définis suivant la relation :

$$I(\omega, z) = I(\omega, 0)\mathrm{e}^{(g(\omega)-\alpha(\omega))z} \tag{2.1}$$

$g(\omega)$ et $\alpha(\omega)$ correspondent respectivement à un coefficient d'amplification et à un coefficient d'atténuation rapportés à la distance parcourue par une onde d'intensité $I(\omega, z)$ qui se propage dans la cavité laser. Le gain est proportionnel à l'inversion de population comme on peut le voir via l'expression [13] :

$$g(\omega) = \frac{e^2 z_{eg}^2}{\varepsilon_0 n_{ref} c} \frac{\omega}{\Delta\omega_0} \Delta n \tag{2.2}$$

où en particulier z_{eg} est l'élément de matrice dipolaire associé à la transition radiative, n_{ref} l'indice de réfraction du matériau et $\Delta\omega_0$ la largeur à mi-hauteur du profil spectral de $g(\omega)$ supposé lorentzien centré sur l'énergie de la transition radiative.

Au fur et à mesure de l'amplification, le nombre de photons dans la cavité augmente et l'inversion de population décroît jusqu'à atteindre un régime permanent où l'amplitude de l'onde électromagnétique est constante après un tour de cavité. D'après la relation 2.1, on a alors:

$$g(\omega) = \alpha(\omega) \tag{2.3}$$

Le gain compense exactement les pertes en régime permanent. On parle de gain saturé et on notera par la suite dans ce cas $g(\omega) = \gamma$. Les pertes correspondent aux pertes par absorption dans le matériau α_w mais également aux pertes par transmission aux facettes de la cavité α_m. Les pertes α_m sont liées au coefficient de réflexion en énergie aux facettes ainsi qu'à la longueur de la cavité L par la relation:

$$\alpha_m = \frac{1}{L}\ln\left(\frac{1}{R}\right) \tag{2.4}$$

R vaut 0.32 [83] pour un guide simple plasmon et des fréquences comprise entre 2 et 3 THz. On peut voir sur la figure 2.10 que le mode THz s'étend bien au delà de la région active du laser. Cela signifie que seule une fraction Γ du mode (Γ est définie comme le facteur de recouvrement avec la région active) peut subir le gain $g(\omega)$. Le gain subi par le mode Γg_{th} (gain modal) nécessaire pour atteindre le seuil d'émission laser est donc tel que :

$$\Gamma g_{th} = \alpha_m + \alpha_w \tag{2.5}$$

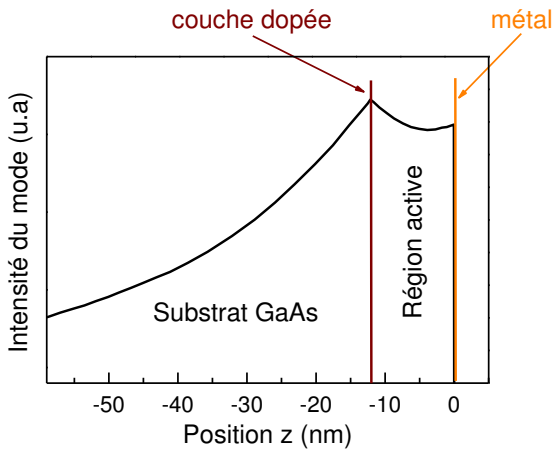


FIGURE 2.10 – Profil d'intensité du mode laser THz pour un guide simple plasmon. La position z est suivant l'axe de croissance du LCQ. La région active est comprise entre 0 et -12 μm. Un proportion importante du mode se propage dans le substrat de GaAs.

2.3.2 Couplage d'une impulsion THz dans un LCQ

Les mesures de gain se font donc par analyse des impulsions THz transmises dans la cavité du LCQ (figure 2.11). La comparaison des coefficients de transmission lorsque que le laser est éteint et porté au-dessus du seuil permet de déterminer le profil spectral du gain. Le dispositif expérimental utilisé pour effectuer cette mesure est celui décrit dans la section **1.4.1** (chap.1). Le LCQ est placé dans un cryostat à doigt froid au centre du dispositif.

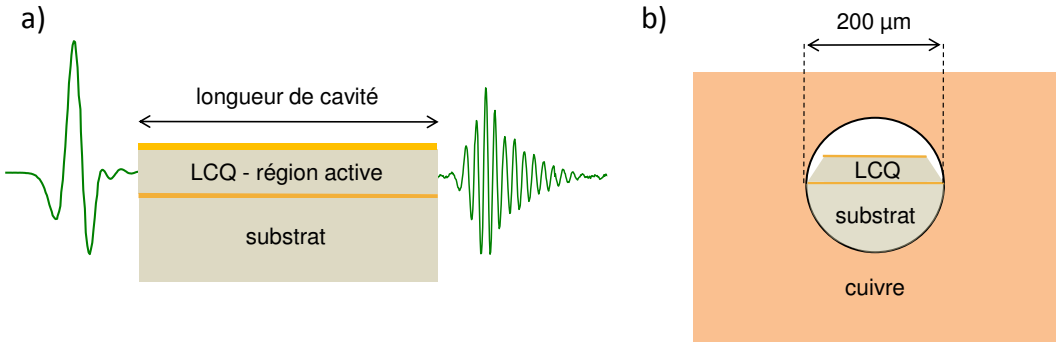


FIGURE 2.11 – Configuration pour la mesure de gain. a) Le gain est extrait à partit de la mesure de l'impulsion émise par l'antenne transmise dans la cavité du LCQ. b) Une plaque en cuivre est placée devant la facette d'entrée du LCQ afin de minimiser la proportion de l'impulsion THz de l'antenne transmise dans le substrat.

En préalable à la mesure de gain, les impulsions THz émises par l'antenne sont caractérisées seules. Le profil temporel associé à une impulsion THz émise par l'antenne photoconductrice est détecté via l'échantillonnage électro-optique et représenté sur la figure 2.12. L'impulsion à t = 0 ps est celle émise par l'antenne. On observe ensuite une succession d'échos qui correspondent à des réflexions successives dans différents éléments du montage. L'antenne utilisée ici est constituée d'une couche de GaAs d'épaisseur 500 μm montée sur un substrat de 2 mm de Si. L'impulsion THz générée suite à l'excitation optique traverse ces différents matériaux et est ainsi susceptible d'être partiellement réfléchie à chaque interface. Par exemple, la double réflexion (réflexion successive aux deux interfaces) dans une épaisseur de 500 μm de GaAs d'indice 3.6 conduit à un retard de $\Delta t = \frac{2nl}{c} = 12$ ps par rapport à l'impulsion THz originelle à t = 0 ps. Ceci correspond au premier écho observé sur la figure 2.12.

Le LCQ est ensuite ajouté au montage. Le faisceau THz de l'antenne focalisé par les miroirs paraboliques couvre une surface bien supérieure à celle de la facette du LCQ. Par conséquent le couplage n'est pas optimal vu la surface typique de la facette du LCQ (200 × 10 μm) comparé à la longueur d'onde à 1 THz égale à 300 μm. Pour minimiser le proportion du faisceau THz couplée dans le substrat qui ne présente pas d'intérêt pour la mesure, une plaque en cuivre percée d'un trou de diamètre $\sim$ 200 μm est placée devant le LCQ (figure 2.11.b). L'alignement du LCQ pour le coupler aux impulsions de l'antenne se fait à l'aide des platines de translation micrométrique montées sur le

cryostat à doigt froid. La mesure du champ de l'antenne transmis dans le LCQ éteint est représentée sur la figure 2.13. Une fraction de l'impulsion THz se propage dans le LCQ, une autre dans le substrat, et une troisième dans aucun des deux. On retrouve donc des similarités avec le profil temporel sans LCQ dans le montage. L'écho observé sur la figure 2.13 à t = 25 ps correspond au rayonnement THz couplé dans le LCQ mais aussi en partie dans le substrat associé.

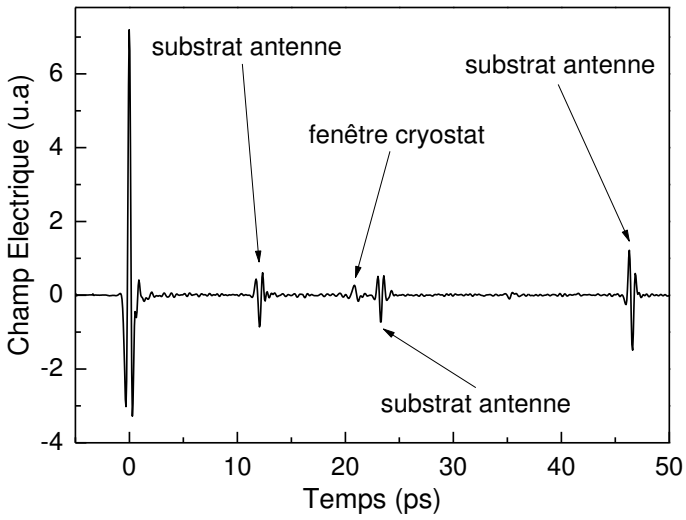


FIGURE 2.12 – Acquisition temporelle de champ électrique de l'impulsion THz rayonnée par l'antenne propagée en espace libre.

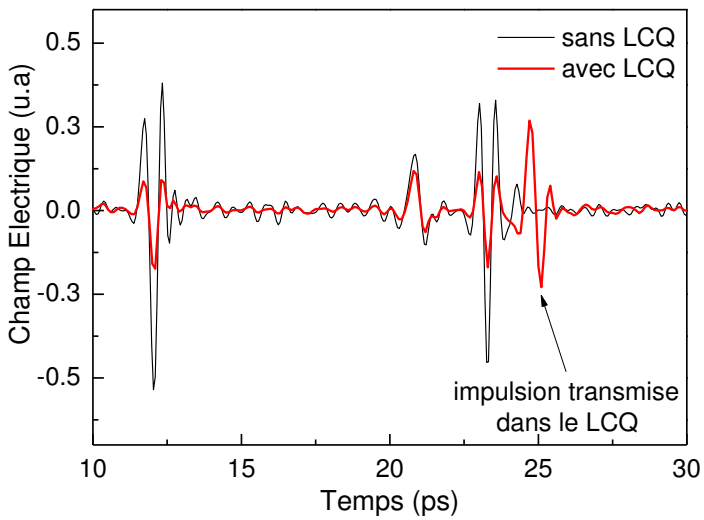


FIGURE 2.13 – Acquisition temporelle de champ électrique de l'impulsion THz rayonnée par l'antenne en espace libre (noir) et dont une partie est transmise dans un LCQ de longueur de longueur de cavité L=2.85 mm et dans son substrat (rouge).

2.3.3 Mesure du gain

Le gain est obtenu à l'aide d'une mesure différentielle du champ transmis dans le LCQ lorsque celui-ci est allumé et éteint, dite mesure $f - 2f$ [11]. Nous détaillons dans cette section les choix des modulations électroniques appliqués à l'antenne et au LCQ qui permettent de déduire le profil spectral du gain à partir des mesures.

Le LCQ est piloté par un courant créneau à la fréquence f tandis que l'antenne est modulée à la fréquence $2f$. On choisit $f = 10$ kHz avec un rapport cyclique associé de 25% et $2f = 20$ kHz avec un rapport cyclique de 50%. le schéma de la modulation électronique est reporté sur la figure 2.14.

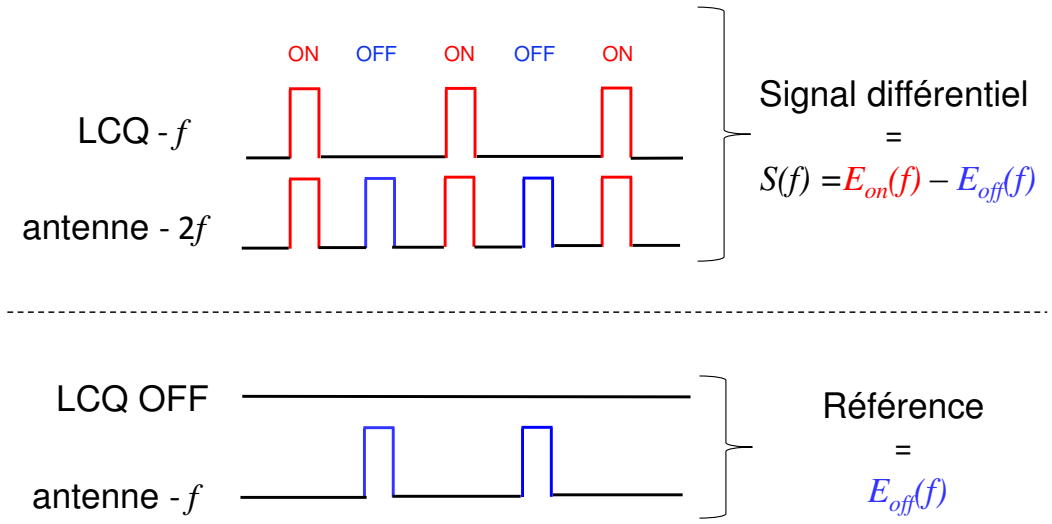


FIGURE 2.14 – Modulations électroniques appliquées sur le LCQ et l'antenne pour la mesure de gain. Deux choix de modulations différentes sont successivement appliqués et permettent de mesurer la différence des champs transmis entre le LCQ allumé et éteint (signal différentiel $S(f)$) ou le champ transmis lorsque le LCQ est éteint (référence $E_{off}(f)$). La fréquence de référence de la détection synchrone est toujours $F_{ref} = f$.

Le signal associé à la fraction de l'impulsion THz transmise dans le LCQ va subir des variations périodiques à la fréquence f à cause de la modulation de courant et donc de gain du LCQ. En revanche la fraction de l'impulsion THz transmise dans le substrat ne subit pas ces changements. La détection synchrone associée à la fréquence de référence $F_{ref} = f$, permet ainsi de détecter uniquement la contribution du LCQ et pas celle du substrat. Le signal différentiel à la fréquence $f = 2\pi\omega$ peut s'écrire :

$$S(\omega) = \pm(E_{on}(\omega) - E_{off}(\omega))$$

En effet, sur une période $T = \frac{1}{f}$, le LCQ est successivement porté au-dessus et au-dessous de son seuil d'émission par la modulation de courant. On a par ailleurs :

$$E_{on}(\omega) = E_0(\omega) t_{in} t_{out} e^{i\varphi_{on}} e^{(-\alpha_w + \gamma)L/2}$$

$$E_{off}(\omega) = E_0(\omega) t_{in} t_{out} e^{i\varphi_{off}} e^{-\alpha_w L/2}$$

où α_w, γ et φ_{on}, φ_{off} correspondent respectivement au pertes par absorption, au gain saturé (laser allumé uniquement), et au déphasage, apportés lors de la propagation de l'impulsion THz dans la cavité. E_0 est l'amplitude du champ électrique à l'entrée de la cavité, les facettes d'entrée et de sortie ayant des coefficients de transmission en amplitude égaux respectivement à t_{in} et t_{out}. Le gain saturé γ s'exprime selon :

$$\gamma = \frac{2}{L} \ln \left| \frac{E_{on}}{E_{off}} \right| = \frac{2}{L} \ln \left| \frac{S(\omega) \pm E_{off}(\omega)}{E_{off}(\omega)} \right| \tag{2.6}$$

$E_{off}(\omega)$ est obtenu expérimentalement en modulant l'antenne à la fréquence f avec un rapport cyclique de 25%, LCQ éteint (mesure de la "référence", voir figure 2.14). L'ambiguïté sur le signe $\pm$ est levée en rejetant la solution non physique après la mesure.

2.3.4 Résultats

La mesure du gain du LCQ L182 émettant à 2.5 THz et de longueur de cavité 1.5 mm est effectuée à l'aide de la démarche précédente. Sur la figure 2.15, on peut voir l'impulsion transmise dans le LCQ, quand le laser est porté respectivement au-dessous (a) et au-dessus (b) de son seuil (la caractéristique courant-tension-puissance optique est reportée sur la fig 2.16.a).

On observe tout d'abord sur les courbes a-b) des oscillations à une fréquence typique de 2.5 THz, fréquence d'émission laser. Le profil spectral du gain du laser se manifeste par un effet de filtrage fréquentiel (fig 2.15.c-d): les composantes fréquentielles les plus éloignées de 2.5 THz sont les plus fortement atténuées. En conséquence, à mesure de sa progression dans le LCQ, l'impulsion THz de l'antenne de spectre large et de durée courte, voit son spectre devenir plus étroit et s'allonge temporellement. Par ailleurs, les oscillations à 2.5 THz sont plus marquées quand le laser est allumé. En effet, dans la zone d'émission le gain spectral associé est maximisé. Le résultat de l'extraction du profil de gain à partir de la relation 2.6 est représenté sur la figure 2.16 (a-b) en fonction de la densité de courant quasi-DC injectée dans le LCQ. Dans la zone d'émission du laser, on observe un plateau où le gain est constant. C'est le phénomène de saturation. Le gain est plus faible en dehors de la zone d'émission de lumière, signe du désalignement des niveaux de la structure laser: le mécanisme d'inversion de population est rompu. Seules les fréquences proches de 2.5 THz subissent l'effet du gain comme on peut le voir sur la figure 2.16.c) avec le profil spectral du gain tracé pour divers points de fonctionnement. La largeur typique de la courbe de gain dans la zone d'émission laser est d'environ 300 GHz (courbe rouge), avec un maximum à 2.5 THz, où le gain est saturé.

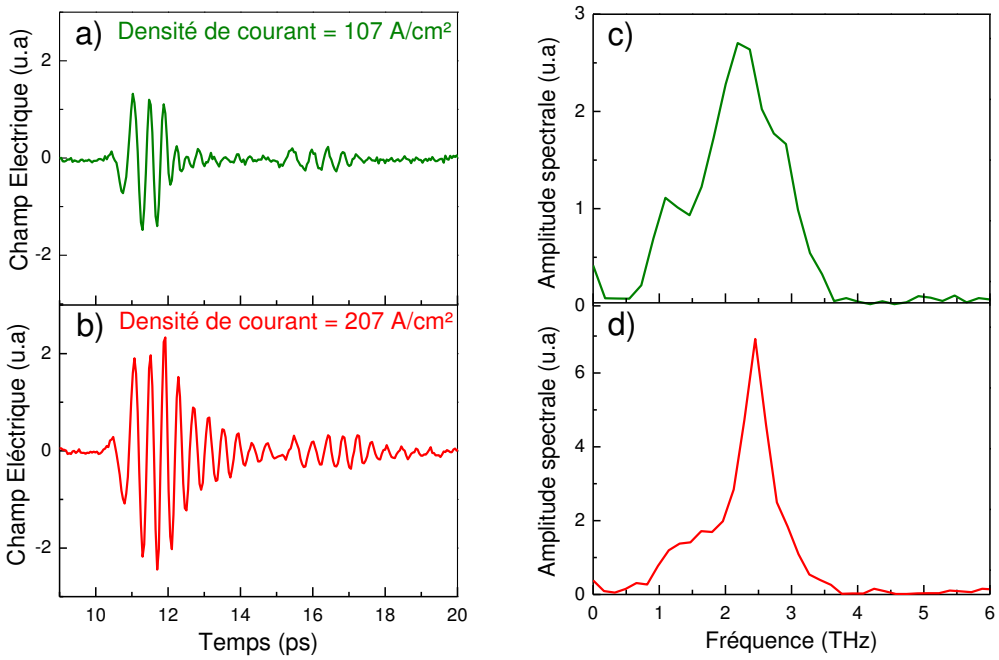


FIGURE 2.15 – Mesure du gain - a) et b) Profil temporel en configuration "f-2f" de l'impulsion transmise à travers le LCQ respectivement au-dessous et au-dessus du seuil d'émission laser - c) et d) Spectres associés aux profil temporels a) et b) obtenus par transformée de Fourier rapide.

La valeur du gain saturé vaut environ $\gamma = 11$ cm^{-1} et comporte deux contributions: les pertes par transmission aux facettes α_m et les pertes par absorption α_g. Avec un coefficient de réflexion de 0.32, on obtient α_m= 7.6 cm^{-1}. Les pertes par absorption évaluées à partir de la courbe sont donc $\alpha_g = \gamma - \alpha_m = 3.4$ cm^{-1}. La cavité laser peut supporter l'existence de plusieurs modes transverses entre la couche de métal et la couche dopée (en contraste avec les modes longitudinaux définis par les facettes du LCQ). Lorsque que le LCQ est allumé, l'émission laser se fait sur un seul des modes transverses. Ainsi, le signal $S(\omega) - E_{off}(\omega)$ résulte de la contribution unique du mode transverse amplifié alors que $E_{off}(\omega)$ peut résulter du couplage de l'impulsion THz à plusieurs modes transverses différents. Ceci peut conduire à une sous-estimation de α_g [11].

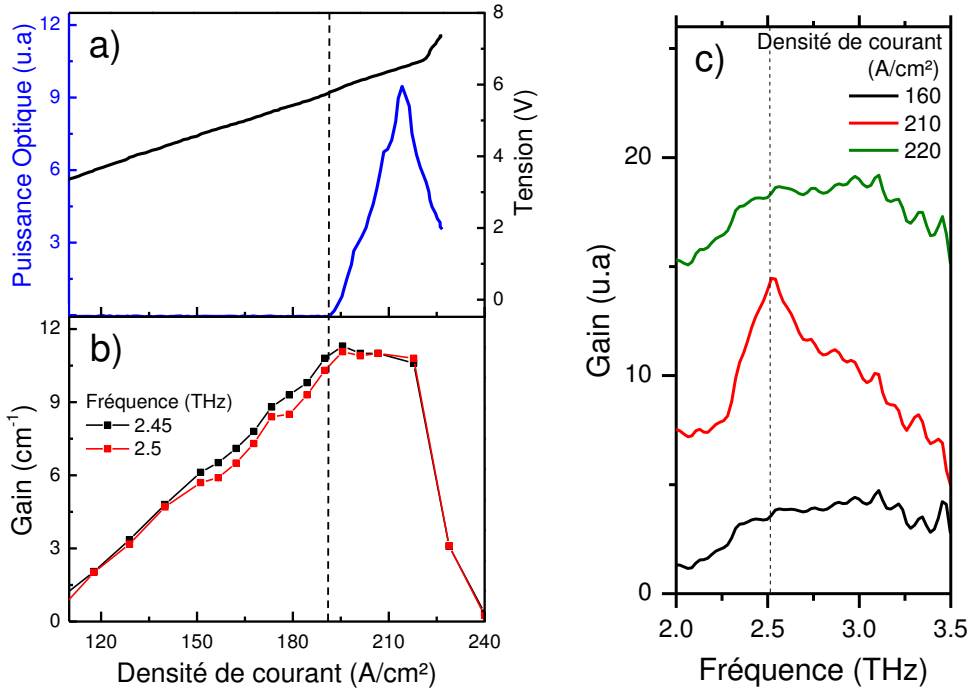


FIGURE 2.16 – a) Caractéristique courant-tension-puissance optique du LCQ. b) Gain en fonction du courant à 2.45 et 2.5 THz. c) profil spectral du gain pour différentes densités de courant.

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit les concepts clés pour la compréhension du fonctionnement des LCQs ainsi que les outils de caractérisation (LIV et gain) utilisés dans les prochains chapitres. Au-delà de la caractérisation électrique standard (caractéristique courant-tension-puissance optique) de ces dispositifs, on voit que la spectroscopie THz dans le domaine temporel est très intéressante pour étudier les propriétés de ces lasers. Nous avons présenté la technique usuelle de mesure du gain avec une TDS. Le couplage d'impulsions THz large-bande dans le LCQ et l'analyse de leur transmission dans la cavité laser permet simplement d'étudier les propriétés du gain en régime permanent. On peut ainsi extraire le profil du gain de part et d'autre du seuil laser. La mesure du gain saturé donne également accès aux pertes. Dans le chapitre suivant, nous allons constater qu'il est également possible de remonter aux propriétés dynamiques du gain à l'aide de la spectroscopie THz dans le domaine temporel. De plus, nous verrons que nos travaux menés sur les LCQs offrent des perspectives pour l'usage de ces lasers comme source de rayonnement THz pour la TDS.

3

Contrôle de la phase d'émission de LCQs THz

Les lasers à cascade quantique THz bénéficient de nombreux avantages (compacité, émission fine spectralement ou bien mutlimodale) qui les rendent pertinents comme source pour la spectroscopie THz dans le domaine temporel. La puissance THz émise par un LCQ (jusqu'à 1 W [66]) est par exemple bien supérieure à celle d'une antenne photoconductrice (μW en moyenne), source standard pour la TDS. Cependant, l'usage des LCQs comme source de rayonnement pour la TDS se heurte à une difficulté. Le champ laser n'est de prime abord pas détectable car il n'a aucune relation de synchronisation avec les impulsions fs d'échantillonnage (voir chap.1 section 1.4.2). Cet obstacle peut être dépassé en contrôlant les propriétés du champ émis par le LCQ.

Le blocage par injection ("injection locking") est une technique de contrôle commune pour réduire le bruit en phase ou en intensité d'un laser [27]. Un laser "esclave" dont on souhaite réduire le bruit est injecté par un laser "maître", de faible puissance et faible bruit. Les propriétés du laser maître peuvent être ainsi "transférées" au laser esclave, ce qui permet par exemple d'améliorer le bruit modal de diodes lasers [84]. Une méthode de contrôle sensiblement différente est la technique d'injection par ensemencement ("injection seeding") [27]. L'injection seeding consiste à effectuer l'injection lors du démarrage du laser esclave. Les propriétés du champ électromagnétique naissant dans la cavité du laser esclave sont alors initiées par celles du signal maître. Pour cette raison, le signal maître est désigné comme le "seed" (équivalent du mot graine). L'injection seeding est utilisée par exemple pour l'obtention d'une plus fine largeur spectrale de lasers à impulsions déclenchées [85, 86].

C'est cette technique qui a permis de démontrer en 2010 la possibilité d'initier la phase du rayonnement de LCQs THz [17]. Dans ce cas précis, une des originalités de la technique d'injection seeding employée est que le signal maître (le seed) n'est pas un faisceau continu mais impulsionnel. En effet, le seed utilisé est une impulsion THz émise par une antenne photoconductrice, de phase connue. La relation de synchronisation des impulsions THz de l'antenne avec les impulsions fs est ainsi transférée au LCQ et rend possible la détection par échantillonnage électro-optique du champ électrique émis par le laser

THz. Dans la perspective de l'usage de LCQs comme source pour la spectroscopie THz résolue en temps, il est très important de s'assurer que le rayonnement THz émis est totalement synchronisé. Un champ THz non synchronisé est non détectable par une détection cohérente mais peut affecter les propriétés de l'échantillon étudié. Il fausse donc une mesure de spectroscopie. Dans ce chapitre, nous quantifions l'efficacité du processus d'injection seeding et montrons que cette efficacité peut être très bonne. Le champ électrique du laser est ainsi complètement détecté en temps. La mesure du profil temporel de l'émission offre de plus une grande richesse d'informations que nous mettons à profit pour explorer les propriétés dynamiques du gain du LCQ.

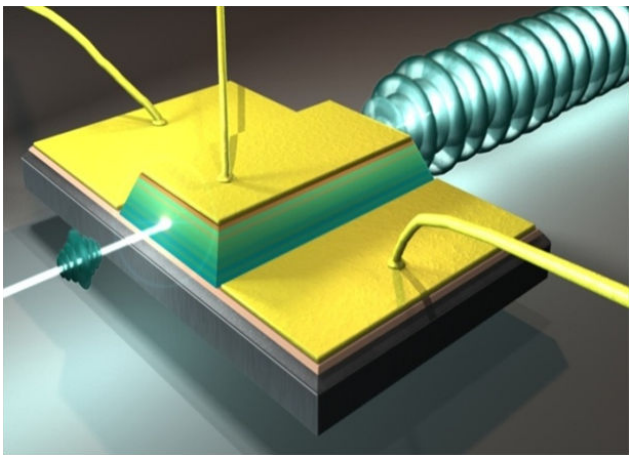


FIGURE 3.1 – Principe du contrôle de phase - Une impulsion THz issue d'une antenne photoconductrice (à gauche de l'image) est injectée dans la cavité d'un LCQ. Ainsi, le champ laser résultant (à droite) peut être contrôlé en phase.

La section **3.1** présente le principe de l'injection seeding appliqué au LCQ et le dispositif expérimental associé. Le montage permet de synchroniser le champ du laser THz avec les impulsions fs. Le profil de l'émission est ainsi détecté dans le domaine temporel (section **3.2**). Il est une signature de la dynamique du gain. A l'aide d'une modélisation de Maxwell-Bloch, nous montrons dans la section **3.3** que la mesure du champ permet d'estimer une constante de temps associée à cette dynamique, le temps de recouvrement du gain [20]. Sa connaissance est très importante car sa valeur affecte fortement les propriétés de l'émission laser (notamment la possibilité de générer des impulsions courtes). Dans la section **3.4**, nous proposons une méthode pour quantifier l'efficacité de l'injection [18] en fonction de l'amplitude du seed. Enfin, nous étudions dans la section **3.5** une méthode alternative pour la génération du seed [19], intégrée au LCQ, qui permet de simplifier le dispositif.

Sommaire

3.1 Dispositif expérimental 45
3.1.1 Paramètres clés de l'injection 45
3.1.2 Montage expérimental 48
3.1.3 Réglages préliminaires 52
3.2 Mesure du champ rayonné 53
3.2.1 Profil temporel 53
3.2.2 Dynamique du gain 55
3.3 Modélisation de l'émission laser 59
3.3.1 Principe 59
3.3.2 Description du modèle 61
3.3.3 Profil simulé du champ 64
3.3.4 Estimation du temps de recouvrement du gain 67
3.4 Efficacité du contrôle de phase 70
3.4.1 Influence de l'amplitude du seed 70
3.4.2 Mesure du rayonnement total émis 72
3.4.3 Compétition seed/émission spontanée 75
3.5 Optimisation du couplage de l'impulsion THz au LCQ . . . 80
3.5.1 Génération du seed dans la cavité du LCQ 80
3.5.2 Caractérisation électrique 82
3.5.3 Régime d'injection seeding 83
3.5.4 Perspectives 86
3.6 Conclusion 87

3.1 Dispositif expérimental

3.1.1 Paramètres clés de l'injection

En régime permanent, le gain apporté par le milieu laser compense exactement les pertes de la cavité (dues à la transmission non nulle des miroirs de cavité et à l'absorption). Ainsi le champ électromagnétique dans la cavité est auto-entretenu: c'est la saturation du gain ("gain clamping" en anglais).
Le comportement du gain est complètement différent dans le régime de construction du champ laser. En effet, l'émission stimulée est initiée par l'amplification de l'émission spontanée, de phase aléatoire. Immédiatement après que le laser soit porté au-dessus de son seuil, l'inversion de population est maximisée. Le gain, proportionnel à l'inversion de population [27], est alors supérieur aux pertes (voir figure 3.2) ce qui permet d'amplifier le champ électromagnétique naissant de l'émission spontanée. Au fur et à mesure de l'augmentation du nombre de photons dans la cavité, l'inversion de population diminue et le gain également jusqu'à la saturation.
La technique d'injection seeding consiste ici à substituer l'émission spontanée (de phase aléatoire) par un seed (de phase fixée) pour initier l'émission laser sur une phase connue, ce qui permet la détection cohérente. Pour que le processus soit efficace, il faut injecter le seed dans la cavité lorsque le laser se comporte comme un amplificateur de lumière,

c'est à dire pendant le régime de construction du champ. L'efficacité du mécanisme dépend également de l'amplitude respective de l'émission spontanée et du seed.

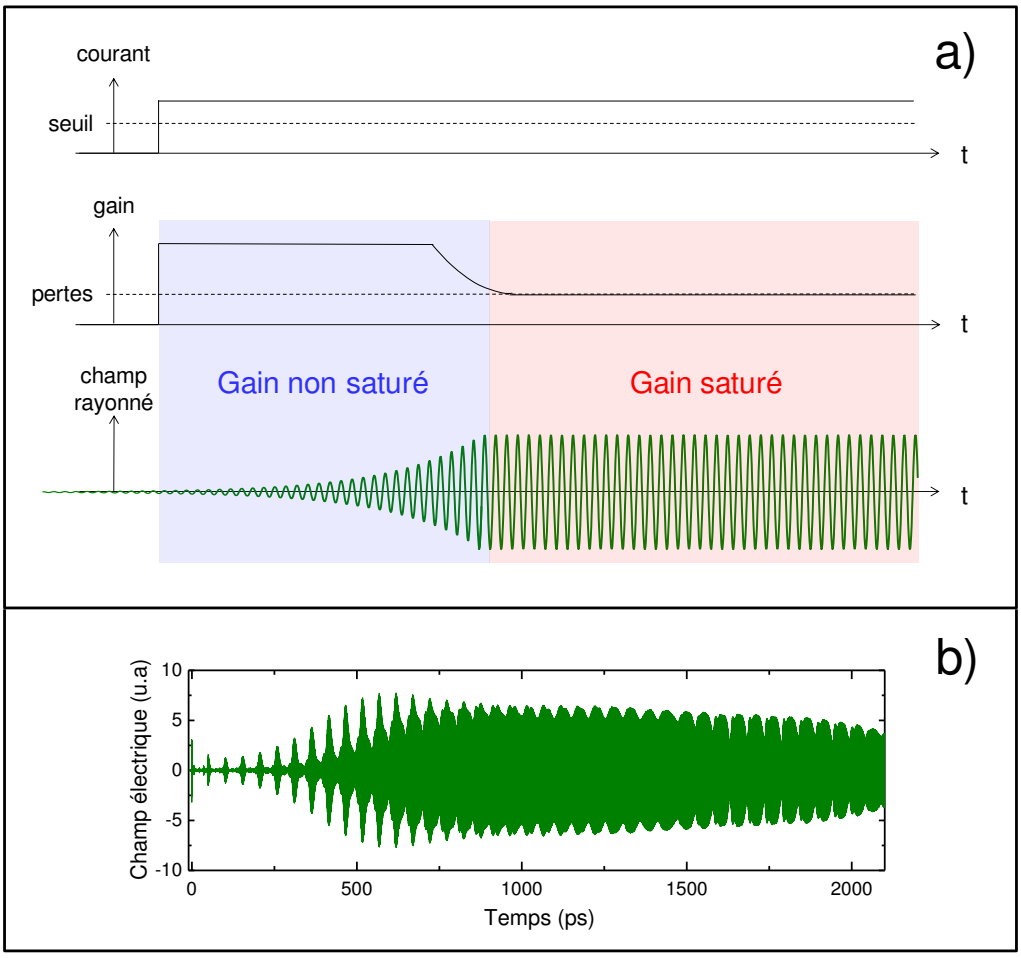


FIGURE 3.2 – a) Représentation simplifiée de l'évolution de l'émission laser après l'allumage du milieu à gain. Le profil temporel du champ rayonné est marqué par deux régimes: le régime transitoire où le gain est supérieur aux pertes (gain non saturé) et permet d'amplifier le champ ; le régime permanent où le gain compense exactement les pertes (gain saturé) et permet d'entretenir le champ rayonné. b) Profil temporel du champ laser d'un LCQ THz contrôlé en phase d'après [17]. Les oscillations du champ électrique ont une période de 0.5 ps.

Si l'amplification du seed exploite plus rapidement l'énergie stockée par le matériau sous forme d'inversion de population que l'amplification de l'émission spontanée, alors l'injection est efficace. Cette condition est favorisée quand on augmente l'amplitude du seed. On accroît ainsi le nombre de photons injectés dans la cavité laser par rapport au nombre de photons émis spontanément. On peut ainsi définir un seuil d'amplitude de l'impulsion externe injectée pour parvenir à une injection efficace. La valeur du seuil

est liée à l'amplitude de l'émission spontanée et dépend donc fortement du milieu laser considéré [87]. Finalement, pour dépasser ce seuil et optimiser l'injection, il est donc très important :

- de contrôler précisément le moment où le seed est injecté dans la cavité, pour bénéficier d'un gain élevé.
- d'utiliser un seed avec une amplitude élevée dans la zone de recouvrement spectral avec le mode laser.
- de favoriser le couplage d'un point de vue géométrique.

Une théorie détaillée de l'injection seeding est faite dans la référence [87]. La valeur du seuil et l'efficacité de l'injection sont discutées à l'appui d'une étude expérimentale de l'injection d'un laser Ti :Saphir [88]. La technique d'injection seeding appliquée aux LCQs a été démontrée en 2010 par l'équipe du LPA. La mesure illustrée sur la figure 3.2.b) est la preuve que le contrôle de phase associé est effectif: il permet d'accéder au profil de l'émission laser en fonction du temps.

3.1.2 Montage expérimental

Le seed utilisé pour bloquer la phase du rayonnement laser est l'impulsion THz large-bande émise par l'antenne photoconductrice sous excitation IR. Ces impulsions THz sont synchronisées avec les impulsions fs (chapitre 1). En les utilisant comme seed, on souhaite transférer leur propriété de synchronisation avec les impulsions fs à l'émission laser du LCQ.

Le montage global associé à l'expérience est représenté sur la figure 3.3. L'ensemble du dispositif se décompose en trois parties distinctes:

- Les impulsions THz couplées au LCQ.
- Le courant produit à l'aide d'impulsions radiofréquences (RF) permettant de piloter le LCQ au-delà du seuil.
- Les impulsions fs IR utilisées pour la détection électro-optique.

Ces signaux THz - électronique RF et optique IR étant tous trois issus du faisceau émis par le laser Ti:Sa, on assure ainsi une synchronisation nécessaire à l'échantillonnage électro-optique. La technique d'injection seeding appliquée aux LCQs nécessite d'un point de vue pratique de coupler les impulsions THz à l'intérieur de la cavité d'un LCQ. Les LCQs étudiés dans ce chapitre sont des lasers émettant à 2.5 THz (de croissance L182 détaillée en annexe B - issus d'une collaboration avec l'équipe du Prof. Edmund Linfield, de l'Université de Leeds) et à 2.9 THz (de croissance V557 détaillée en annexe B - issus d'une collaboration avec l'équipe du Prof. David Ritchie, de l'Université de Cambridge). Ils sont tous munis d'un guide simple plasmon. Le mode THz laser a donc une extension spatiale transverse plus grande qu'avec par exemple un guide métal-métal. Ceci rend beaucoup plus aisé le couplage avec les impulsions THz incidentes (en comparaison avec un guide métal-métal, voir chapitre 2). Pour cela, les platines de translation du cryostat permettent d'ajuster finement la position du LCQ par rapport aux rayonnement THz de l'antenne, focalisé à l'aide d'un miroir parabolique.
Le courant électrique pilote injecté dans le LCQ doit être porté au-dessus du courant seuil simultanément à l'injection du seed qui arrive sur le LCQ périodiquement au même taux de répétition que celui du laser Ti:Sa (76.54 MHz - une impulsion toutes les 13.06 ns). En effet, l'échantillonnage électro-optique est rendu possible si chaque événement d'échantillonnage se fait dans des conditions identiques, pour une position de la ligne à retard optique fixe. Le courant électrique pilote doit donc permettre de porter le LCQ au-dessus de son seuil pour chaque impulsion fs successive. Ce courant pilote joue finalement le rôle d'un commutateur synchronisé avec les impulsions fs. Il est produit à l'aide d'impulsions RF (radiofréquence) d'amplitude et de durée ajustable (typiquement quelques ns, voir figure 3.4 a)). Pour obtenir la synchronisation des impulsions RF avec les impulsions fs, on utilise le laser Ti:Sa comme source de déclenchement. Le faisceau optique consacré à la détection est donc séparé en deux à l'aide d'un séparateur pour prélèvement de faisceau. Une partie est toujours dédiée à la détection (environ 300 mW), l'autre (environ 1 mW) étant collectée par une photodiode ultrarapide (modèle hamamatsu G4176-03 - temps de réponse typique de 30ps). Les impulsions optique fs sont alors converties en impulsions électriques picosecondes qui vont être utilisées comme source de déclenchement d'un générateur de signaux arbitraires (modèle agilent 81160A avec un taux d'échantillonnage de 2.5 GSa/s). Ce dernier délivre des impulsions nanose-

conde RF envoyées vers un amplificateur de puissance large bande (modèle aethercomm GaN - gain typique 50dB).

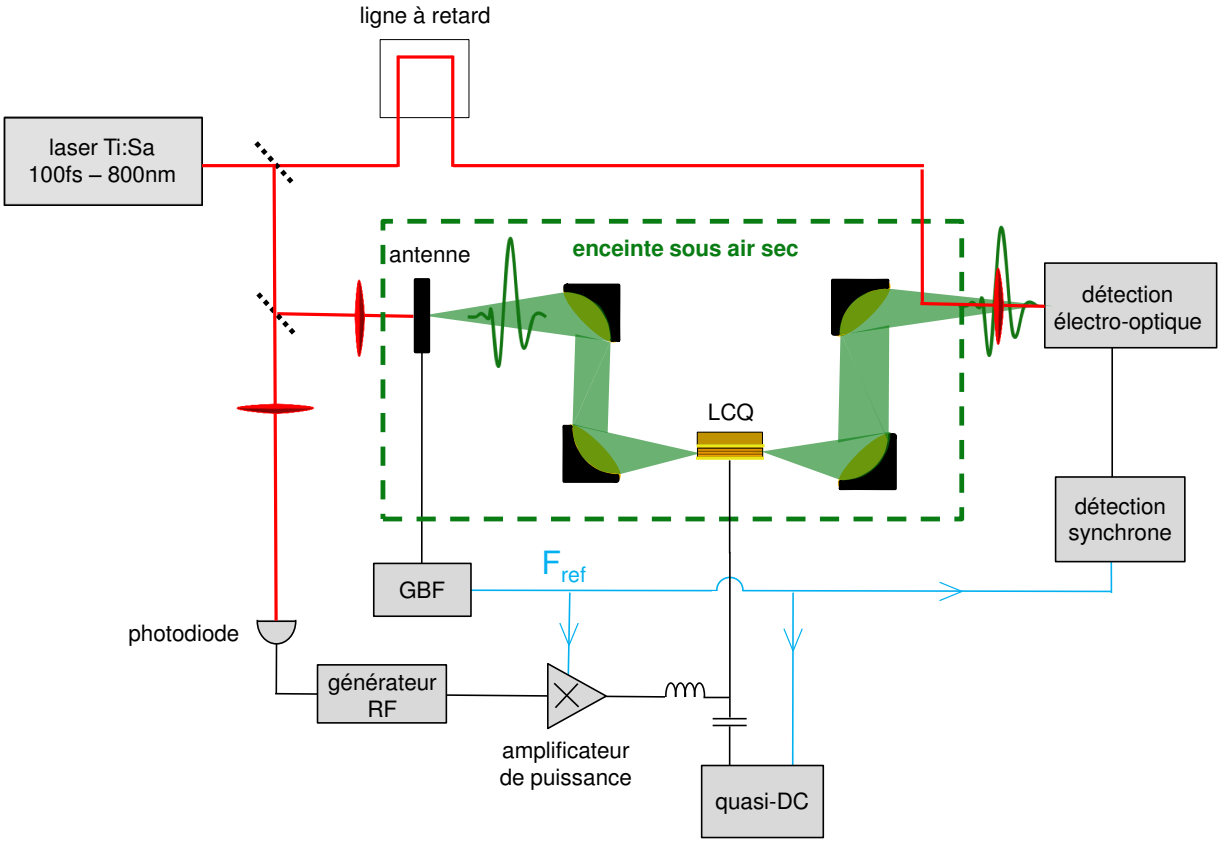


FIGURE 3.3 – Vue d'ensemble du montage permettant le contrôle de phase. Le LCQ est inséré dans un cryostat à doigt froid (non représenté). L'ensemble du trajet THz se fait dans une enceinte purgée (trait vert en pointillés).

Les impulsions RF générées sont ensuite envoyées vers le LCQ à l'aide d'un câblage RF et de connecteurs SMA/SMP (voir figure 3.4 b)). Les contacts électriques sur le LCQ sont par ailleurs effectués à l'aide de microfils. La connexion du cablage RF aux microfils présente une forte désadaptation d'impédance, se traduisant par une réflexion non négligeable du signal RF. Pour réduire partiellement cet effet, des guides d'onde coplanaires de taille millimétrique ont été ajoutées, permettant une meilleure transmission du câblage RF aux microfils soudés sur le ruban laser. La désadaptation d'impédance pourrait être très fortement réduite en utilisant une sonde coplanaire RF en place des microfils pour contacter le LCQ [89]. Toutefois, cette solution n'est pas adaptée à notre dispositif pour des raisons géométriques. L'encombrement de la sonde gêne soit le couplage des impulsions THz, soit la collection de l'émission du LCQ. Cette perte de signal RF par réflexion nous oblige à utiliser des amplitudes de courant plus fortes pour pouvoir piloter le LCQ. La puissance moyenne RF dans le montage électronique est de

l'ordre du Watt.

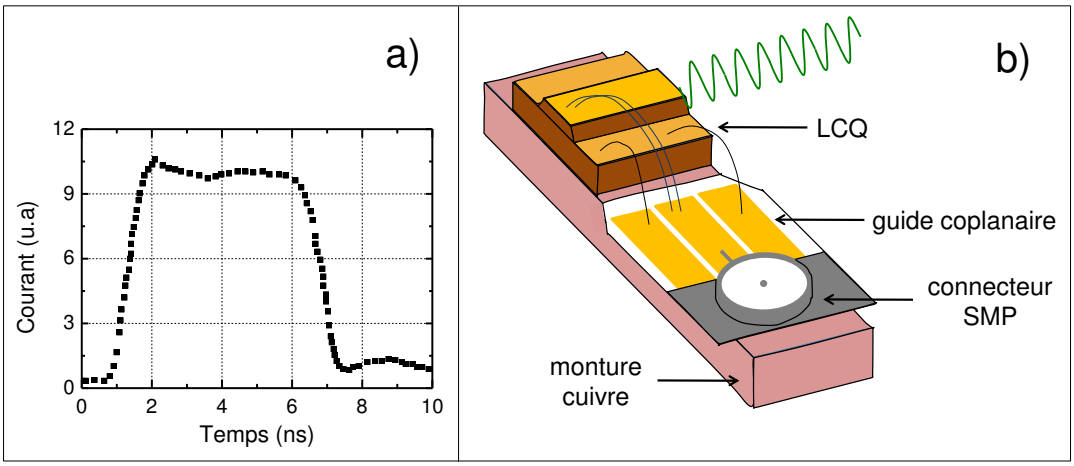


FIGURE 3.4 – a) Profil temporel des impulsions RF en amont du LCQ mesuré avec un oscilloscope de bande passante 8 GHz (marque IBZ Electronics). Les impulsions RF subissent des distorsions lors de leur couplage au LCQ. b) Connexions électroniques du LCQ (échelle non respectée). Le LCQ est piloté par les impulsions RF ajoutées à un courant quasi-DC. Le câblage RF est connecté au connecteur SMP (en gris). L'âme du connecteur SMP est en contact avec la piste centrale d'un guide d'onde radio-fréquence spécialement conçu. Des microfils soudés permettent de relier la piste centrale au contact supérieur du LCQ. Les deux pistes externes du guide coplanaires permettent de contacter le plan de masse du laser. L'ensemble laser + guide coplanaire + connecteur SMP est fixé sur une monture en cuivre, fixée elle-même sur le doigt froid.

Pour comprendre le processus de déclenchement du LCQ, nous avons représenté le profil temporel du courant sur la figure 3.5. Les impulsions RF sont ajoutées à la modulation quasi-DC (typiquement 10 kHz) à l'aide d'un Té de polarisation, formant ainsi le courant total injecté dans le LCQ (fig. 3.5.a). Le signal RF est modulé à la même fréquence que le quasi-DC à l'aide d'un interrupteur précédant l'amplificateur de puissance (fig 3.5.c). La modulation quasi-DC (fig 3.5.b) a quant à elle deux rôles. Elle permet d'une part de créer la modulation nécessaire à la détection synchrone. D'autre part, elle peut porter le courant pilote du LCQ juste en dessous du seuil, et ainsi minimiser la contribution du signal RF.
La figure 3.6 illustre le schéma global de la synchronisation pour un retard donné de la ligne à retard optique. Chaque impulsion RF successive (en bleu) vient allumer le LCQ en portant son courant au-dessus du courant seuil. En conséquence, le gain du LCQ (noir) devient transitoirement supérieur aux pertes, permettant l'amplification de lumière. La graine (vert) est injectée simultanément dans la cavité du LCQ et est donc susceptible de subir l'amplification conduisant à l'émission laser (oscillations vertes). L'émission est échantillonnée par les impulsions IR. La synchronisation assure que les évènements d'échantillonnage successifs (à retard fixé), correspondent à un champ THz à phase et amplitude fixes.

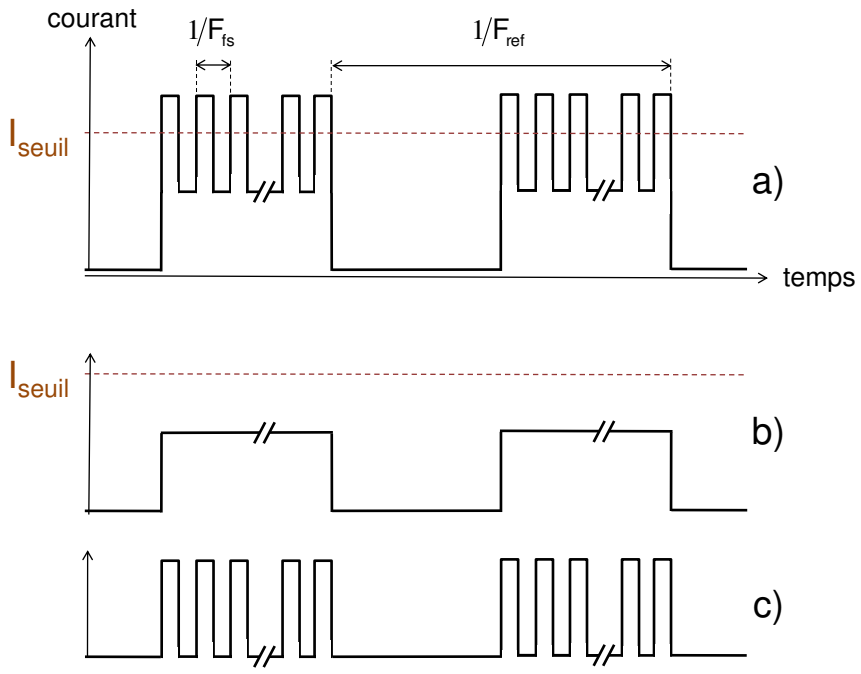


FIGURE 3.5 – Profil temporel a) du courant pilote total injecté dans le LCQ avec les composantes RF et quasi-DC b) de la composante de courant quasi-DC c) de la composante de courant RF.

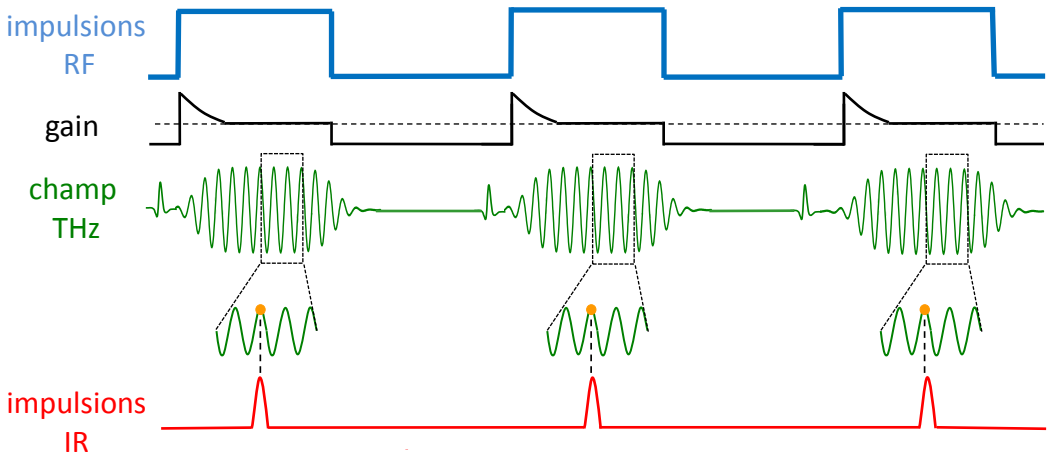


FIGURE 3.6 – Synchronisation simultanée du courant électrique pilote - des impulsions THz injectées dans le LCQ - et des impulsions IR. Les impulsions RF permettent de commuter le gain chaque fois qu'une impulsion THz émise par l'antenne est injectée dans la cavité. la synchronisation est indispensable pour que la détection cohérente soit possible.

3.1.3 Réglages préliminaires

Dans cette section nous détaillons le "protocole" expérimental adopté pour parvenir au contrôle de la phase du champ THz émis par le LCQ.

Tout d'abord on effectue un alignement géométrique pour rendre possible le couplage des impulsions THz (seed) dans le guide d'ondes des LCQs. Il se fait de la même manière que pour les mesures de gain (voir chapitre 2) en ajustant la position du cryostat à l'aide de platines de translation micrométriques.
De plus, il est nécessaire de commuter le gain du LCQ, précisément lorsque le seed pénètre dans le guide d'onde. Pour cela, il faut d'abord estimer les amplitudes de courant quasi-DC (pour être en dessous mais proche du seuil) et du courant RF à appliquer (pour passer au-dessus du seuil). Les estimations des amplitudes de courant se font en mesurant la puissance rayonnée du LCQ en fonction du courant à l'aide d'un détecteur pyroélectrique. Sur la figure 3.7 est représentée la puissance rayonnée en fonction de l'amplitude de courant quasi-DC pour diverses amplitudes d'impulsions RF appliquées sur le LCQ.

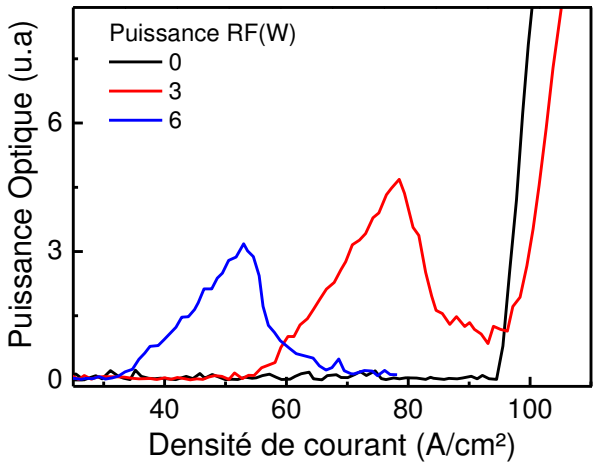


FIGURE 3.7 – Caractéristiques courant-puissance optique pour différentes amplitudes des impulsions RF appliquées (L182-longueur de cavité 2.85 mm). La puissance moyenne des impulsions RF est estimée à la fin de la chaîne d'amplification.

La courbe noire correspond à la puissance THz détectée en fonction de la densité de courant quasi-DC pour une puissance RF minimale appliquée au LCQ. Le seuil laser est mesuré à 95 A/cm^2. Pour une puissance RF de 3 W, on constate que l'allure de puissance (courbe rouge) est marquée par un premier seuil à 55 A/cm^2 puis un second à environ 95 A/cm^2. Le premier seuil correspond à l'allumage transitoire du laser exposé au courant apporté par une impulsion RF (d'une durée de quelques ns). Le LCQ est dans ce cas périodiquement allumé et éteint. Si on augmente suffisamment la densité de courant quasi-DC, le LCQ est allumé en permanence (le LCQ est allumé quelle que soit la valeur du courant instantané apporté par le courant RF). Ce régime correspond aux densités de courant supérieures au second seuil de 95 A/cm^2. Plus la puissance RF

appliquée est forte, plus le laser s'allume pour une densité de courant faible. Le choix du couple courant quasi-DC/puissance RF est donc fait de manière suivante. La valeur du courant quasi-DC choisie est celle qui correspond au maximum de puissance rayonnée entre le premier et le second seuil. Pour éviter les problèmes de dissipation thermique, on utilise une puissance RF pas trop élevée. Typiquement 6 W pour les impulsions RF et environ 50 A/cm^2 pour le quasi-DC pour l'échantillon associé à la figure 3.7.
Il faut enfin ajuster précisément l'écart de temps entre l'injection du seed et l'application d'une impulsion RF de courant qui permet de commuter le gain. Le générateur de fonctions arbitraires (agilent 81160A) est doté d'une fonction permettant d'ajuster grossièrement le retard du signal généré par rapport à la source de déclenchement (les impulsions IR collectées par le photodétecteur), avec un pas de 10 ps. L'ajout d'une ligne à retard optique sur le chemin du faisceau IR qui excite l'antenne permet de contrôler beaucoup plus finement ce retard. En pratique, nous avons constaté qu'un ajustement du retard avec un pas de 10 ps est suffisant. La méthode de réglages adoptée consiste à ajuster le retard "impulsion RF/seed" de sorte à observer une amplification des réflexions successives du seed dans la cavité du LCQ.

3.2 Mesure du champ rayonné

3.2.1 Profil temporel

La technique d'injection seeding appliquée aux LCQs a été initialement démontrée par Dimitri Oustinov en 2010 [17]. Depuis ce premier résultat, le dispositif expérimental a été amélioré. On peut voir sur la figure 3.8 l'efficacité de la technique qui permet d'observer dans le domaine temporel le champ laser, incluant son régime de construction.

L'échantillon choisi ici est un LCQ à guide simple plasmon, de longueur 1.5 mm émettant à environ 2.5 THz (croissance L182), fréquence pour laquelle la sensibilité de la détection électro-optique est élevée. Le retard des impulsions RF est ajusté précisément pour commuter le gain quand le seed pénètre dans la cavité, au temps t=0 ps (fig 3.8.a). On observe tout d'abord à t=12 ps l'impulsion THz photoconductrice produite par l'antenne (le seed) transmise dans la cavité du LCQ (surlignée en rouge sur la figure 3.8.b). Plusieurs impulsions se succèdent ensuite à intervalles de temps réguliers. Elles correspondent aux réflexions successives du seed aux deux extrémités de la cavité du LCQ. Elles sont espacées en temps par une durée de 36 ps, qui correspond au temps d'aller-retour dans la cavité laser $T_c = \frac{2nL}{c}$ (avec $n \simeq 3.6$ indice de réfraction du matériau et $L = 1.5$ mm la longueur de cavité). Un régime d'amplification est nettement visible à partir de 200 ps jusqu'à environ 800 ps, lorsque l'impulsion photoconductrice s'élargit temporellement en même temps que l'amplitude du champ s'accroît. C'est le régime de construction du champ émis par le LCQ. Dans la fenêtre de 1100 à 1800 ps, le laser a atteint un régime quasi-permanent et le champ rayonné évolue peu. La valeur du champ électrique THz maximal mesuré est de l'ordre de 2 V.cm^{-1}. Dans ce régime, le rayonnement émis est marqué par une oscillation du champ électrique à la période de 410 fs (l'inverse de la fréquence d'émission à 2.45 THz) comme le met en évidence un zoom sur une fenêtre temporelle étroite (fig 3.8.c).

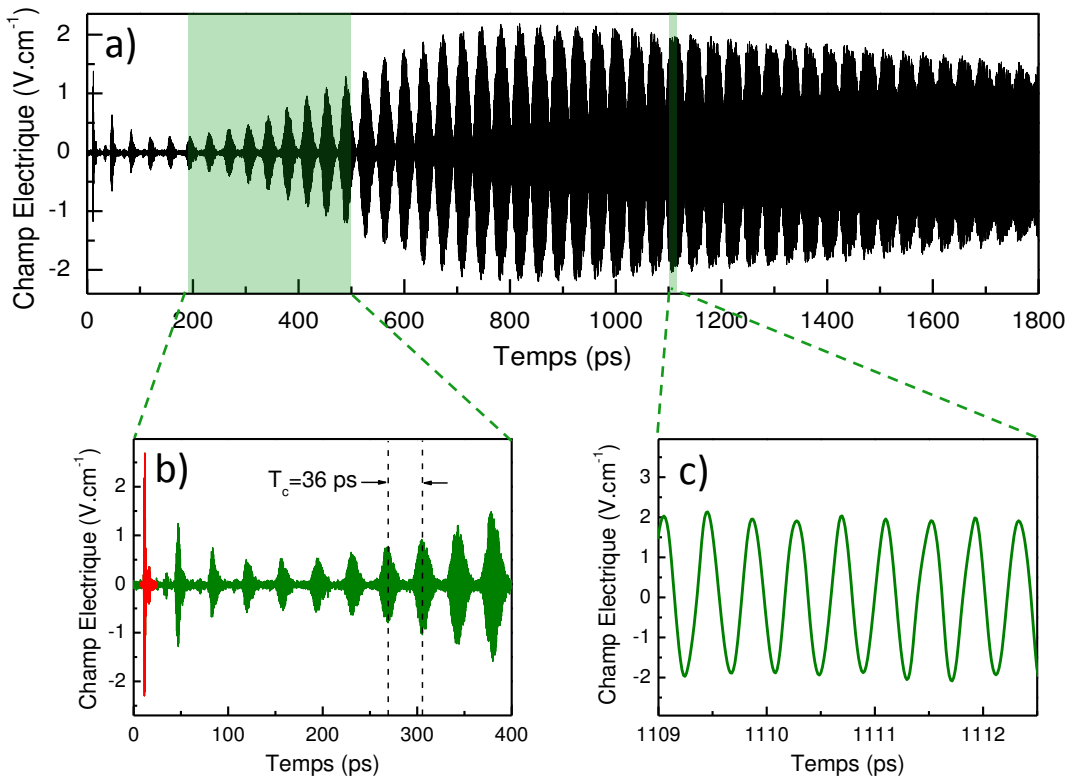


FIGURE 3.8 – a) Profil temporel du champ électrique du LCQ en fonction du temps. b) Zoom sur la fenêtre temporelle [0 - 400] ps. c) Zoom sur la fenêtre temporelle [1109 - 1112.5] ps.

L'émission n'est pas monomode. Le spectre obtenu par transformée de Fourier rapide du signal dans le fenêtre [1100-1800] ps, représenté sur la figure 3.9 a), met en évidence la présence de plusieurs modes centrés autour de 2.45 THz. Ce sont des modes longitudinaux de la cavité Fabry-Pérot formée par le LCQ. Ils sont donc espacés par l'intervalle spectral libre, égal à $\frac{1}{T_c} = 27$ GHz. Au cours de sa propagation dans la cavité laser, le seed large-bande subit de multiples réflexions et s'allonge progressivement. Ceci s'explique par la largeur spectrale du profil de gain du LCQ (de l'ordre de 100 GHz), très petite devant celle des impulsions photoconductrices (plusieurs THz). Les pertes ne sont compensées par le gain que dans une bande de fréquence étroite autour de 2.45 THz. Les composantes spectrales en dehors de cette bande sont donc très rapidement atténuées. L'évolution des modes en présence dans la cavité peut être visualisée à l'aide d'une transformée de Fourier glissante du signal en temps. Sur les figures 3.9 b) et c), sont représentées les spectres obtenus pour des fenêtres temporelles de 215 ps. De nombreux modes de cavité sont effectivement initialement présents (fig 3.9.b) puis le spectre évolue jusqu'à la présence de deux modes dominants uniquement (fig 3.9.c). L'évolution du champ est donc caractérisée par une diminution du nombre de composantes spectrales et par un élargissement en temps des impulsions.

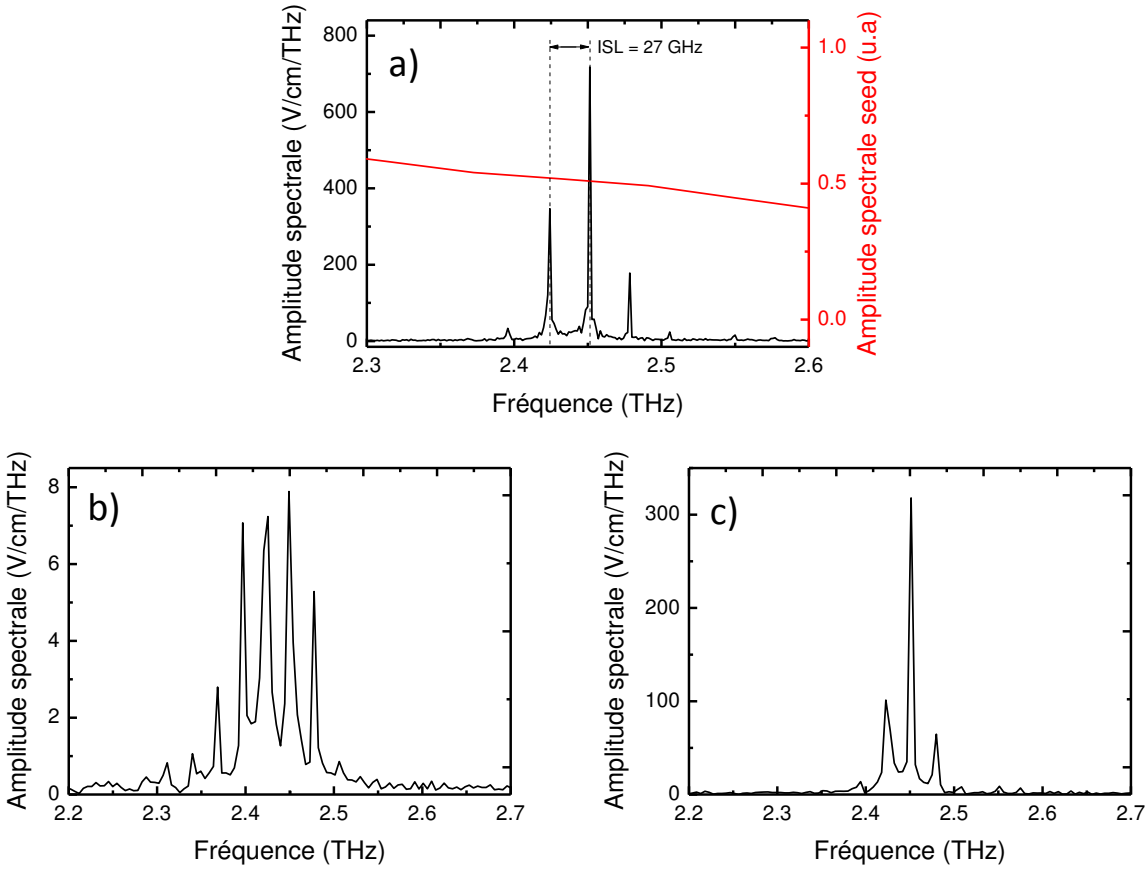


FIGURE 3.9 – Profil spectral du rayonnement émis par le LCQ. Les spectres sont obtenus par transformée de Fourier rapide (FFT) du signal en temps mesuré dans la fenêtre temporelle a) [1100-1800] ps. Le spectre normalisé de l'impulsion THz couplée dans la cavité est ajouté à titre indicatif (courbe rouge). b) [100-310] ps c) [1425-1635] ps .

L'usage des impulsions THz émises par l'antenne photoconductrice permet donc de fixer la phase initiale de l'oscillation laser. Ceci permet de caractériser complètement le rayonnement émis par le LCQ, en mesurant l'amplitude et la phase du champ électrique. De plus, l'observation du régime de construction du champ permet l'étude de la dynamique du gain du LCQ (voir section suivante).

3.2.2 Dynamique du gain

Nous allons voir maintenant que ces mesures nous permettent de décrire le comportement transitoire du gain. En effet, la mesure du profil de l'émission laser dans le domaine temporel donne accès au régime de construction du champ laser. Pour obtenir l'évolution temporelle du gain, la démarche suivante a été adoptée. Nous avons vu que le gain du laser modifie la forme temporelle et spectrale du seed (chap.2 section 2.3.4). Le seed transmis par la cavité peut donc jouer le rôle de la sonde du gain apporté par l'impulsion RF qui commute le laser. Il suffit pour cela de changer le retard de l'im-

pulsion RF par rapport au seed. Pour chaque valeur du retard "seed/impulsion RF", le profil de gain spectral est obtenu à l'aide de la mesure à double modulation "f-2f" présentée dans le chapitre 2. La valeur du pic du profil de gain spectral en fonction du retard est ainsi tracée sur la figure 3.10 b). Aux temps courts (inférieurs à 180 ps), le gain induit par l'impulsion RF reste en dessous des pertes (trait tireté). L'augmentation progressive du gain est liée à l'élévation de courant due au front montant de l'impulsion RF. A t=180 ps, le gain dépasse le niveau des pertes. C'est le moment précis où le laser s'allume. Dans la fenêtre [180-1100] ps, le gain est non saturé (en rouge). Il est au-dessus des pertes et on observe donc une amplification du champ électrique en fonction du temps. Dans ce régime transitoire d'amplification, le gain est au début élevé, puis diminue progressivement et continûment. Entre 1.1 et 1.8 ns, on observe finalement un plateau de gain avec un champ stabilisé. Le gain est constant dans le temps et égalise les pertes: c'est la saturation du gain.

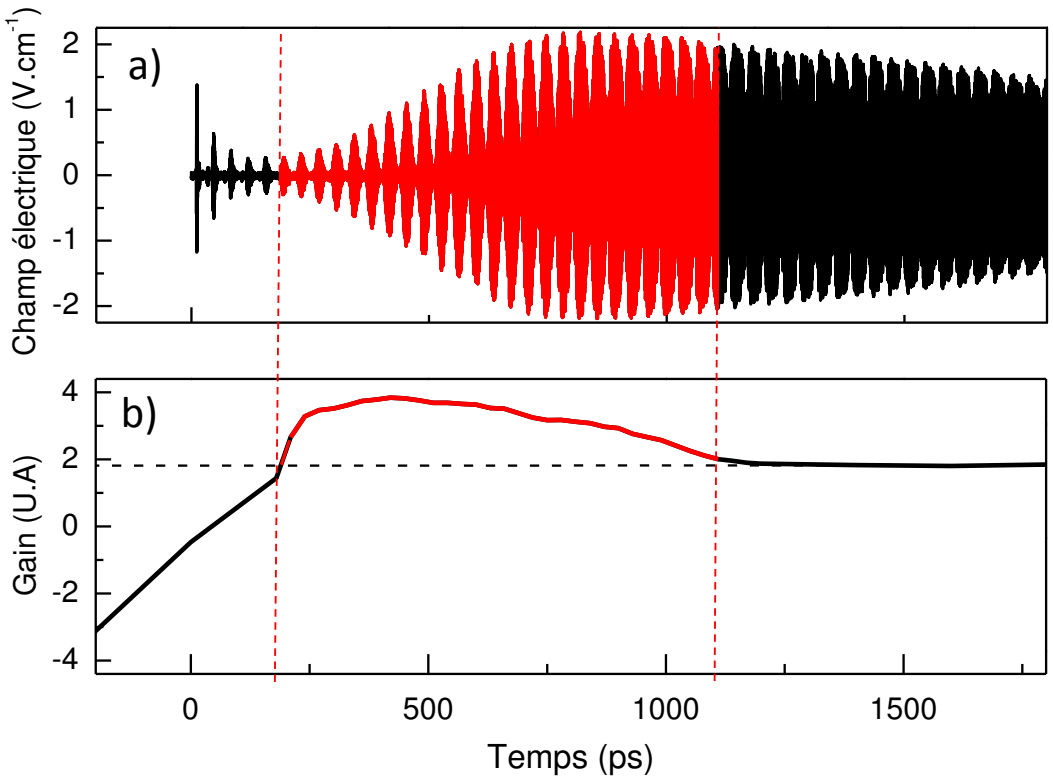


FIGURE 3.10 – a) Profil temporel du champ électrique. b) Gain spectral à 2.45 THz - le régime d'amplification correspondant à un gain non saturé est surligné en rouge. Le trait tireté noir correspond à la valeur du gain saturé, égale aux pertes du laser.

L'effet de l'évolution du gain sur le seed est exposé sur la figure 3.11 pour un laser simple plasmon de longueur 5 mm émettant à 2.9 THz (croissance V557 donnée en annexe B). La différence observée entre le gain non saturé et le gain saturé est plus marquée qu'avec

le laser émettant à 2.45 THz décrit jusqu'ici [1].
Sur la figure 3.11 a), on peut observer un pic de gain non saturé élevé dû à la commutation du laser par les impulsions RF à t=2.2 ns. On observe à nouveau un plateau correspondant au gain saturé pour des retards seed/impulsion RF compris entre environ 3 ns et 7 ns. La valeur maximale du gain est environ 50% supérieure à celle du gain saturé. Son évolution avec la valeur du courant quasi-DC appliqué est la même que celle de la puissance THz rayonnée. En effet, on s'attend à ce que la puissance émise par le laser soit proportionnelle au gain non saturé [90]. Le gain non saturé se traduit par une amplification forte de l'impulsion THz incidente. Sur la figure 3.11 b), on peut voir effectivement que l'impulsion THz transmise dans la cavité subit une amplification maximale pour un retard seed/impulsion RF de 2.2 ns. L'amplification des composantes de fréquences proches de 2.9 THz se manifeste par un allongement en temps du seed. Les composantes basses fréquences du seed (autour de 1 THz), marquées près de t=3 ps ne sont pas amplifiées quelque soit le retard de l'impulsion RF car elles ne sont pas dans la zone de gain du laser. A un retard seed/RF égal à 1 ns, le LCQ est éteint et le seed est fortement atténué lors de son passage dans la cavité.

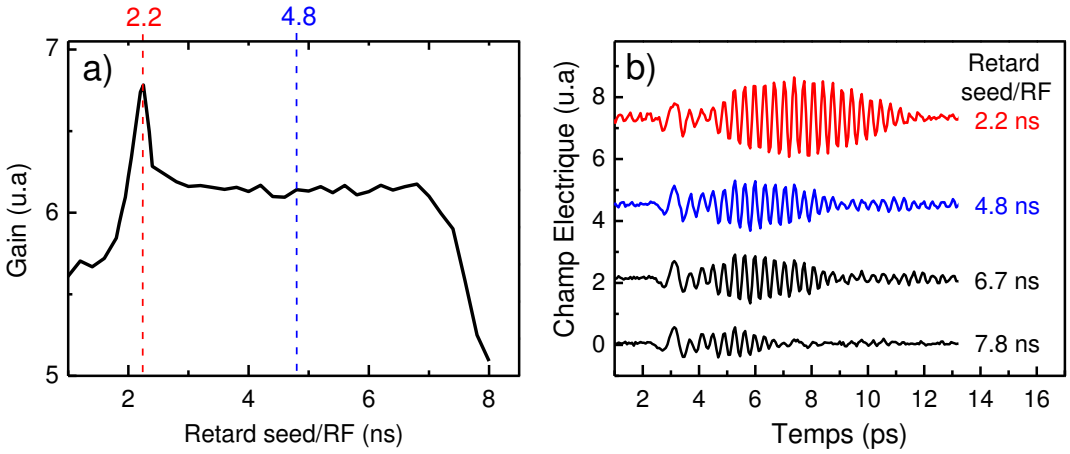


FIGURE 3.11 – a) Gain spectral à 2.9 THz subit par l'impulsion THz en fonction de son retard par rapport à l'impulsion de courant RF pour le LCQ V557 5 mm. b) Profil temporel de l'impulsion THz transmise dans le LCQ pour différents retards seed/RF.

.

A partir des profils temporels du seed, on peut accéder à l'évolution du profil spectral du gain non saturé vers le gain saturé. On a représenté sur la figure 3.12 a) le profil spectral du gain non saturé et du gain saturé. Le gain non saturé peut être plus facilement ajusté par une allure gaussienne plutôt que par une allure lorentzienne (fig 3.12.b). L'élargissement de la courbe de gain est en effet lié aux inhomogénéités. L'élargissement inhomogène de la courbe de gain pour les LCQs est notamment due à des écarts de taille

1. En particulier, le gain saturé est plus bas pour le laser émettant à 2.9 THz, car les pertes par transmission aux extrémités sont plus faibles. Les pertes linéiques par transmission subies par le champ $-\frac{1}{2L}ln(R)$ sont de 70 % plus faibles pour le laser à 2.9 THz (longueur de 5 mm) par rapport au laser à 2.45 THz (longueur de 1.5 mm).

entre des puits de périodes successives où s'effectue la transition radiative. Les profils spectraux des gains saturé et non-saturé se superposent dans la gamme 2.1 a 2.8 THz. En effet, dans le cas d'un élargissement inhomogène, le gain saturé a le même profil spectral que le gain non-saturé en dehors de la région de saturation. On note malgré tout la différence de comportement spectral au-delà de 2.9 THz qui n'est pas attendue. Cet écart entre les comportements des gains saturé et non saturé pourrait résulter d'effets de relaxation croisée [27].

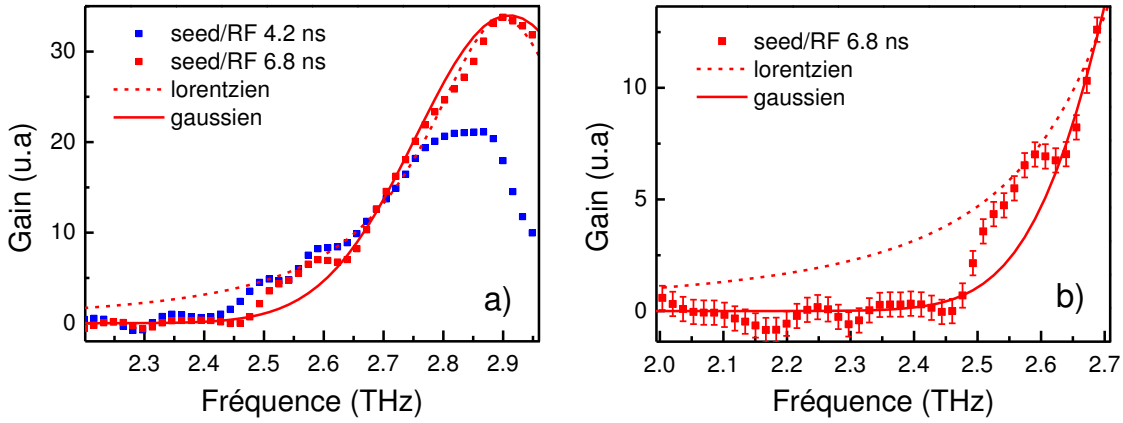


FIGURE 3.12 – a) Gain spectral saturé (bleu) et non saturé (rouge) pour le LCQ V557 5 mm. La courbe de gain non saturé a été ajusté par un profil gaussien et lorentzien. b) Queue du profil de gain non saturé. Les mesures au-delà de 3 THz présentent un rapport signal à bruit faible.

3.3 Modélisation de l'émission laser

Le montage expérimental permet d'accéder au profil temporel de l'émission laser sur des échelles de temps de l'ordre de quelques nanosecondes. Ceci nous donne accès à la totalité du régime transitoire de construction du champ laser et à l'évolution du gain. En particulier, la possibilité de générer des impulsions courtes à partir d'un laser dépend fortement des propriétés dynamiques du gain, qui sont donc très intéressantes à étudier. Nous présentons ici un modèle de l'émission du LCQ, qui permet, avec l'appui des données expérimentales, de déterminer le temps de vie caractéristique de la dynamique du gain.

3.3.1 Principe

L'émission d'un LCQ peut être modélisée à partir d'un système à deux niveaux ouvert (figure 3.13) [91]. Une période de la structure de bande est représentée par les états haut $|e\rangle$ et bas $|g\rangle$ de la transition radiative. Les phénomènes de transport d'une période à l'autre ne sont pas pris en compte dans cette représentation. Ceci revient à considérer que le temps de vie de l'état bas est nul. Le remplissage de l'état haut se fait à partir de la densité de courant J. La dynamique du gain est donnée par celle de l'inversion de population entre les états $|e\rangle$ et $|g\rangle$, notée Δn. Le comportement du système à deux niveaux est décrit à l'aide de deux temps de vie.

T_1 est le temps de recouvrement du gain et correspond à la durée nécessaire pour que l'inversion de population et le gain retrouvent leurs valeurs d'équilibre après une perturbation. Ce temps est lié au temps d'évacuation τ_g des électrons de l'état $|g\rangle$ et au temps de vie τ_e des électrons dans l'état $|e\rangle$. Dans la mesure où le processus d'évacuation des électrons de l'état $|g\rangle$ est très efficace, on a : $T_1 \sim \tau_e$ (τ_g est sub-picoseconde pour les dessins LO-phonon [76] et égal à environ 1 ps pour les dessins bound-to-continuum [92]). La valeur de T_1 influence très fortement les caractéristiques de l'émission du laser. Par exemple, lorsque T_1 est très supérieur au temps d'aller-retour de la cavité T_c, l'émission est marquée lors de son démarrage par de fortes oscillations de relaxation [27]. C'est le cas des lasers de classe B, dont font partie un grand nombre de lasers à diodes. Au démarrage, l'enveloppe de l'intensité émise par le laser subit de fortes oscillations qui s'ammenuisent au cours du temps. Dans notre cas, nous n'observons pas ce type de régime comme on peut le voir sur la figure 3.8: l'enveloppe de l'intensité augmente de manière progressive et régulière jusqu'à une valeur stabilisée. Les effets de la dynamique de recouvrement du gain sont marqués au démarrage du laser, mais également lors de tout phénomène perturbatif. En particulier, ils permettent ou non une modulation rapide du gain du laser, essentielle pour un certain nombre d'applications: modulation pour la transmission d'informations, génération d'impulsions courtes (voir chapitre 4) ou de peignes de fréquences [93].
T_2 est le temps de décohérence correspondant aux processus de perte de cohérence. Ils se traduisent par exemple par un changement de vecteur d'onde d'un électron au sein d'une même sous-bande par diffusion électron-électron [94], sans changer les populations dans les états haut et bas de la transition radiative.

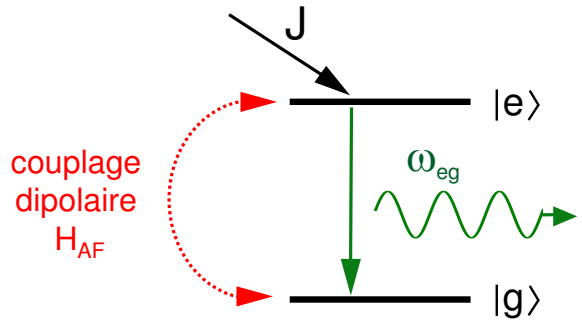


FIGURE 3.13 – Système à deux niveaux ouvert. Le pompage est représenté par la densité de courant J.

L'évolution des populations du système à deux niveaux en interaction avec un champ électromagnétique est décrite à l'aide des équations de Bloch. Pour décrire l'émission laser, il faut prendre en compte la propagation du champ électromagnétique. La description complète se fait donc à l'aide des équations de Bloch couplées aux équations de Maxwell pour un système à deux niveaux avec l'outil de la matrice densité. Ce modèle a l'avantage d'être simple. L'utilisation du modèle de Maxwell-Bloch pour un système à deux niveaux a été exploité dans plusieurs travaux pour décrire la dynamique d'émission des LCQs : blocage actif de modes [91], instabilités cohérentes [95] ou encore blocage de modes par transparence auto induite [96].

3.3.2 Description du modèle

Les expériences décrites sont basées sur l'usage de la spectroscopie dans le domaine temporel qui permet d'accéder au profil temporel du champ électrique. Il est judicieux d'effectuer une modélisation qui donne la même richesse d'informations. Nous effectuons donc une modélisation à l'aide des équations de Maxwell-Bloch en suivant la méthode décrite dans la référence [97]. L'usage d'un algorithme FDTD (Finite Difference Time Domain) permet en effet de simuler l'évolution temporelle de l'émission laser de sa naissance au régime permanent.

Équations de Maxwell-Bloch

La mise en équations est explicitée en détails dans l'annexe A.1 suivant les notations de [97] [2]. Nous en donnons ici les points essentiels. L'état du système $|\Psi\rangle$ peut s'écrire comme une combinaison linéaire des états $|g\rangle$ et $|g\rangle$: $|\Psi\rangle = c_e|e\rangle + c_g|g\rangle$. La matrice densité, dans cette base d'états, s'écrit sous la forme :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix}$$

où ρ_{ee} et ρ_{gg} correspondent aux populations alors que ρ_{eg} et ρ_{ge} sont les cohérences. L'interaction avec la lumière se traduit par un couplage dipolaire. Le hamiltonien du système $H = H_A + H_{AF}$ peut ainsi être décomposé en deux contributions. Celle du système isolé s'écrit :

$$H_A = \frac{\hbar\omega_{eg}}{2}(c_e|e\rangle - c_g|g\rangle)$$

Celle du couplage avec la lumière est donnée par :

$$\begin{aligned} H_{AF} &= -exE_x \\ &= eE_x\left(|c_e|^2\langle e|x|e\rangle + c_e^* c_g\langle e|x|g\rangle + c_g^* c_e\langle g|x|e\rangle + |c_g|^2\langle g|x|g\rangle\right) \end{aligned}$$

où E_x est le champ électrique. En posant $X = \frac{e}{2}\{\langle e|x|e\rangle - \langle g|x|g\rangle\}$, $M = e\langle g|x|e\rangle$ et avec les notations de [97], les équations de Maxwell-Bloch s'écrivent:

$$\partial_t H_y = -\frac{1}{\mu_0}\frac{\partial E_x}{\partial z} \tag{3.1}$$

$$\begin{aligned} \partial_t E_x &= -\frac{1}{\epsilon_0}\frac{\partial H_y}{\partial z} - \frac{NM}{\epsilon_0 T_2}\rho_1 + \frac{NM}{\epsilon_0}\left(\omega_{eg} - \frac{5E_x X}{\hbar}\right)\rho_2 \\ &- \frac{2NX(\Delta n - \Delta n_0)}{\epsilon_0 T_1} - lc_0 E_x \end{aligned} \tag{3.2}$$

$$\partial_t \rho_1 = -\frac{1}{T_2}\rho_1 + \left(\omega_{eg} - \frac{E_x X}{\hbar}\right)\rho_2 \tag{3.3}$$

$$\partial_t \rho_2 = -\frac{1}{T_2}\rho_2 + \left(\omega_{eg} - \frac{E_x X}{\hbar}\right)\rho_1 + \frac{2E_x M}{\hbar}\Delta n \tag{3.4}$$

$$\partial_t(\Delta n) = -\frac{\Delta n - \Delta n_0}{T_1} - \frac{2E_x M}{\hbar}\rho_2 \tag{3.5}$$

2. Dans ce travail, ce modèle est utilisé pour l'étude de l'effet de transparence auto-induite dans un système à deux niveaux.

Tous les constantes qui apparaissent dans ces équations sont données dans le tableau 3.1. Les équations 3.1 et 3.2 décrivent l'évolution temporelle du champ électrique E_x et du champ magnétique H_y qu'on suppose polarisés linéairement, respectivement suivant x et y avec une propagation suivant z. Le terme $-lc_0E_x$ permet d'introduire de manière phénoménologique les pertes par absorption du LCQ avec l en cm^{-1}. Les équations des populations correspondent aux relations 3.3 à 3.5. ρ_1 et ρ_2 sont liées aux cohérences via la relation : $2\rho_{ge} = \rho_1 - j\rho_2$. L'inversion de population est donnée par $\Delta n = \rho_{ee} - \rho_{gg}$.

Symbole	Nom
ϵ_r	constante de permittivité relative du matériau
T_1	temps de recouvrement du gain
T_2	temps de décohérence
w_0	inversion de population à l'équilibre
N	nombre d'oscillateurs
M/e	élément diagonal de la matrice dipolaire
$2X/e$	différence des éléments hors diagonaux de la matrice dipolaire
ω_{12}	pulsation de transition radiative
l	pertes du guide par absorption
L	longueur de cavité

TABLE 3.1 – Constantes du modèle de Maxwell Bloch.

Principe de la simulation

Les équations de Maxwell-Bloch sont résolues numériquement en utilisant un algorithme Finite Difference Time Domain (FDTD) écrit sous Matlab par Joshua Freeman, de l'université de Leeds. Cet algorithme consiste en particulier à remplacer toutes les dérivées par des différences finies. On définit un réseau 2D de points ayant chacun une coordonnée spatiale (correspondant à la cavité et à deux régions absorbantes à ses extrémités) et une temporelle (durée sur laquelle on souhaite simuler l'émission). Étant données des conditions initiales, les différentes grandeurs physiques sont évaluées à chaque pas en temps via une boucle de convergence. La méthode est décrite plus en détails dans l'annexe A.2. L'approximation séculaire et l'approximation de l'enveloppe lentement variable sont couramment effectuées pour la résolution de ces équations mais pas dans notre modélisation. Ces approximations permettent de s'intéresser aux échelles de temps très longues (par rapport au cycle temporel d'oscillation des porteurs) en augmentant la rapidité de la résolution numérique. Ici, nous souhaitons visualiser le champ électrique de l'émission laser et sommes dans un régime où l'enveloppe des champs peut varier très rapidement par rapport à l'oscillation des porteurs [3]. En pratique, nous n'utilisons donc pas l'approximation de l'enveloppe lentement variable et ne faisons aucune hypothèse simplificatrice supplémentaire sur les équations (3.1) à (3.5). Pour finir, on peut évaluer

3. Pour le seed, la durée de l'enveloppe d'environ 1 ps correspond à un cycle d'oscillation du champ électrique.

indépendamment la plupart des constantes du modèle. Pour le laser émettant à 2.5 THz (croissance L182) :

- la permittivité relative du milieu ϵ_r est estimée a 12.9 à partir de l'indice.
- La valeur de T_2 a été ajustée de manière à respecter la largeur spectrale expérimentale du gain saturé. $T_2 \simeq 2.35$ ps.
- $w_0 = 1$ (1 : tous les porteurs dans l'état haut $|e\rangle$ - 0 : tous les porteurs dans l'état bas $|g\rangle$) .
- La densité d'oscillateurs N a été choisie de manière à correspondre au gain maximal non saturé à 2.45 THz égal à 21 cm^{-1} (estimé dans la référence [98]). La valeur obtenue $N = 3.7.10^{20}$ m^{-3} correspond à environ 0.5 % de celle obtenue à partir de la feuille de croissance. Ce pourcentage est en bon accord avec les évaluations d'efficacité quantique.
- $X = 16$ nm d'après la structure de bande.
- $M/e = 6.2$ nm à partir de la structure de bande.
- $2\pi\omega_{12} = 2.45$ THz.
- l est estimé à 3 cm^{-1} [11].

La simulation est initiée de la manière suivante. Le gain initial est maximal et homogène dans la cavité, nul en dehors. Le champ à une des extrémités de la cavité (interface absorbeur-région active gauche sur la figure 3.14 a),b)) est fixé égal à l'amplitude de l'impulsion THz couplée dans la cavité pendant la durée de son passage. Après cet intervalle de temps, les conditions aux limites à cette extrémité sont données par des coefficients de réflexion/transmission associés à un changement de milieu.

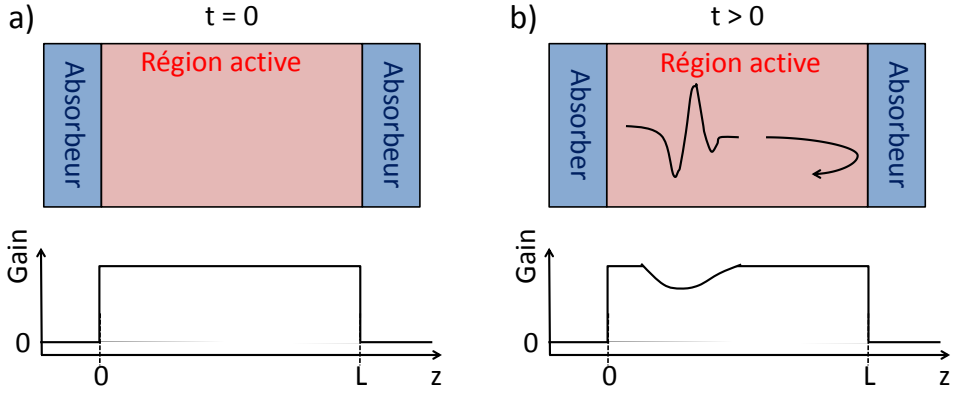


FIGURE 3.14 – Représentation de l'espace des positions dans la simulation. La cavité (en rose) est entourée de deux régions sans gain mais fortement absorbantes (les pertes valent 3.10^4 cm^{-1}) pour éviter des réflexions artificielles dues à la taille finie du domaine spatial simulé. a) A t=0, le gain est maximal sans lumière dans la cavité b) A t>0, le gain évolue avec le champ intracavité

Cette modélisation est particulièrement appropriée pour la comparaison avec les expériences et permet d'interpréter un certain nombre d'effets tel que l'influence du seed sur l'émission laser mais aussi d'estimer des paramètres clés de la dynamique, comme le

temps de recouvrement du gain T_1. En effet, elle donne naturellement accès au profil de construction du champ (temps court) qui est exactement ce que nous pouvons obtenir expérimentalement. La simulation peut également donner accès au régime permanent mais nécessite alors des temps longs de calcul. A l'aide de la simulation, on peut donc analyser toute la richesse des informations apportées par l'expérience.

3.3.3 Profil simulé du champ

Le profil typique de champ temporel obtenu est représenté sur la figure 3.15 pour le laser émettant à 2.45 THz avec une longueur de cavité de 1.5 mm et une valeur du temps de recouvrement du gain $T_1 = 15$ ps. Contrairement à l'expérience, le milieu à gain est ici allumé instantanément et on observe une amplification rapide de l'impulsion THz externe sur une durée d'environ 300 ps (fig.3.15.a). Le profil temporel est caractérisé par une forme liée à la coexistence de 4 modes longitudinaux (respectivement ν_1=2.413 THz, ν_2=2.438 THz, ν_3=2.464 THz et ν_4=2.490 THz), dont deux sont particulièrement marqués (fig.3.15.b).

La compétition de ces modes affecte la dynamique intra-cavité. Le champ électrique intracavité à t = 645 ps (illustré sur en 3.15 c)) résulte en effet de l'interférence des ondes propageantes et contrapropageantes associées à chacun des modes longitudinaux. Tout d'abord, on observe une oscillation rapide du champ à la fréquence d'émission laser ($\nu = 2.45$ THz) associée à une longueur d'onde spatiale de $\frac{c}{n\nu} = 34.0$ μm. De plus, si on se restreint aux deux modes dominants de fréquences ν_2=2.438 THz et ν_3=2.464 THz, l'onde résultante va se manifester par une modulation de l'enveloppe du champ à la fréquence $(\nu_3 - \nu_2)/2$. La période spatiale associée à l'enveloppe est estimée à $\frac{2c}{n(\nu_3-\nu_2)} = 6.4$ mm.
L'inversion de population Δn, proportionnelle au gain, est visualisée sur la courbe 3.15 d) à t = 645 ps. Les oscillations rapides ont une période associée à celle de l'intensité lumineuse (deux fois plus petite que la période du champ électrique). Du fait de la réflexion non nulle aux extrémités du milieu à gain, des ondes propageantes et contra-propageantes coexistent dans la cavité. Leurs interférences conduisent à une intensité inhomogène suivant la direction de propagation dans le milieu à gain. Une intensité localement forte diminue le gain accessible. Il s'agit du "hole-burning" spatial. Cet effet est observé pour les LCQs [91, 95] et tend à favoriser l'existence des régimes d'émission multimodes. L'enveloppe de l'intensité intracavité induit également une modulation supplémentaire "lente" à l'inversion de population. En suivant le lien vidéo (ou référence [99]), on peut accéder dans la rubrique "supplemental material" à la simulation complète. Elle montre l'évolution temporelle du champ intracavité, de l'inversion de population et du champ rayonné à partir de l'injection du seed dans la cavité.

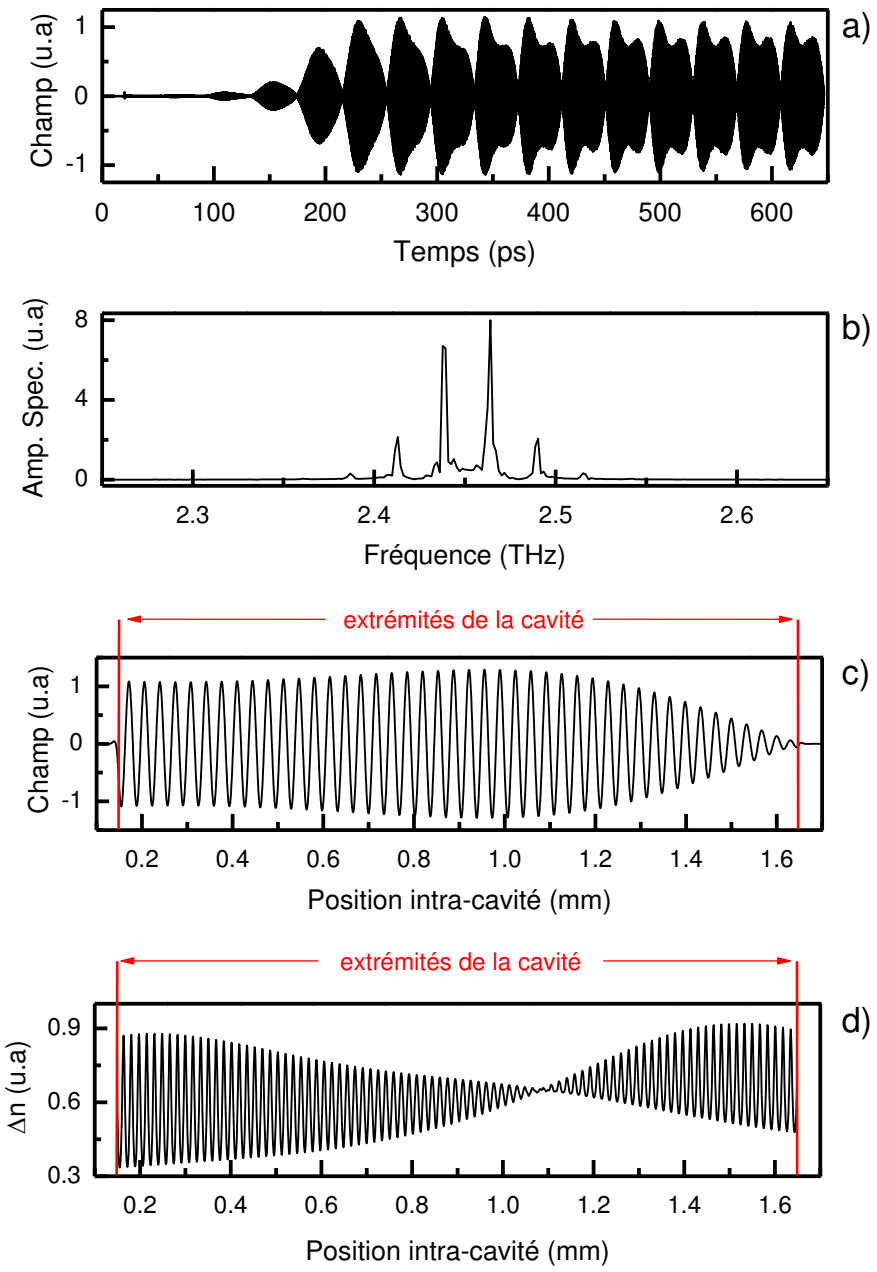


FIGURE 3.15 – Résultats de la simulation avec $T_1 = 15$ ps a) Profil du champ émis - b) Spectre associé - c) Champ intra-cavité au temps t=645 ps - d) Inversion de population au temps t=645 ps.

Il est de plus très intéressant d'observer l'effet de la forme du seed sur le profil du champ émis. Nous avons représenté sur la figure 3.16, le profil du champ simulé pour trois formes très différentes du seed avec une même valeur du champ électrique maximum: un seed qui correspond à une impulsion étroite (durée 350 fs, fréquence centrale 1.3

THz, courbe-a)), un seed "résonant" avec la fréquence de transition (durée de 50 ps, fréquence centrale de 2.45 THz, courbe b)), un seed qui reflète l'émission spontanée (valeur du champ aléatoire initialement aléatoire sur l'ensemble de la cavité). Aux temps courts (inférieurs à 350 ps), on observe une allure différente entre les divers profils. En particulier, le gain est saturé beaucoup plus rapidement avec le seed "résonant". Ce résultat a du sens car le seed "résonant" est celui qui apporte le plus photons avec une énergie proche de celle de la transition radiative. D'autre part, on note que pour des temps inférieurs à 200 ps, la structure du champ a l'allure la moins "impulsionnelle" pour le seed qui représente l'émission spontanée. Dans le régime transitoire, la forme du seed influe donc de manière logique la forme de l'enveloppe du champ émis.
En revanche, on peut remarquer que les différences entre les profils temporels associés aux différents seeds s'estompent au cours du temps. A partir de 400 ps, les différentes allures sont identiques. Ce résultat de la simulation est important. Il montre que la forme du seed influe peu le profil du rayonnement émis aux temps longs. Cette conclusion suggère que l'injection seeding permet de contrôler la phase du champ sans modifier notablement son enveloppe et que le profil temporel du champ que nous mesurons expérimentalement correspond à l'allure "naturelle" de l'émission laser.

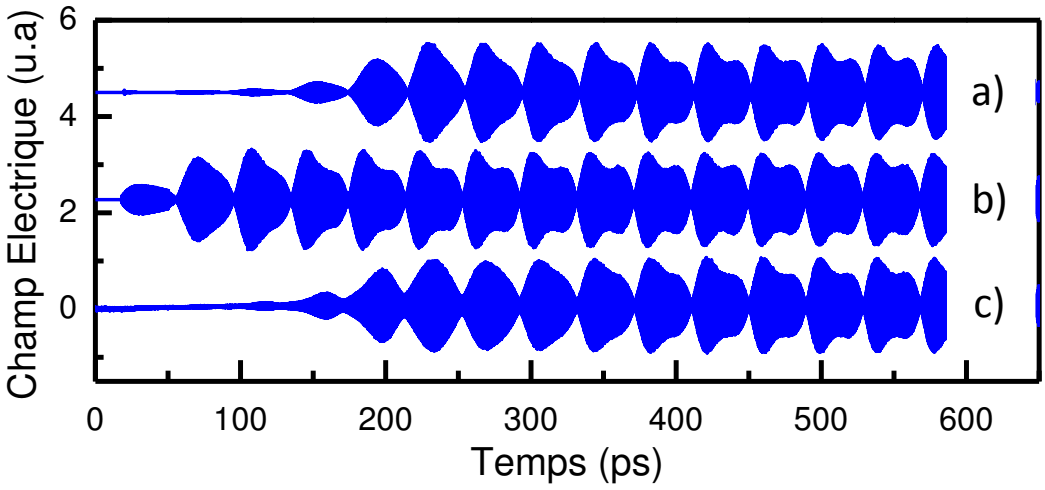


FIGURE 3.16 – Résultats de la simulation avec $T_1 = 15$ ps pour différentes formes du seed: a) Impulsion de durée 350 fs, centrée spectralement à 1.3 THz, d'amplitude du champ maximale de 100 V/cm. b) Impulsion de durée 50 ps, centrée spectralement à 2.45 THz, d'amplitude du champ maximale de 100 V/cm. c) Champ aléatoire dans l'ensemble de la cavité de champ maximal 100 V/cm.

3.3.4 Estimation du temps de recouvrement du gain

La force de ce modèle est qu'il peut être utilisé pour estimer la valeur de T_1 en comparant avec les données expérimentales. Pour faciliter l'extraction de cette constante de temps, nous avons utilisé les comparaisons avec les mesures associées à plusieurs échantillons, de même croissance (laser L182 émettant à 2.5 THz) mais de longueurs de cavité différentes. Les résultats de la simulation pour diverses valeurs de T_1 sont exposés sur la figure 3.17 pour des longueurs de cavité de 1.5 mm et 2.85 mm.

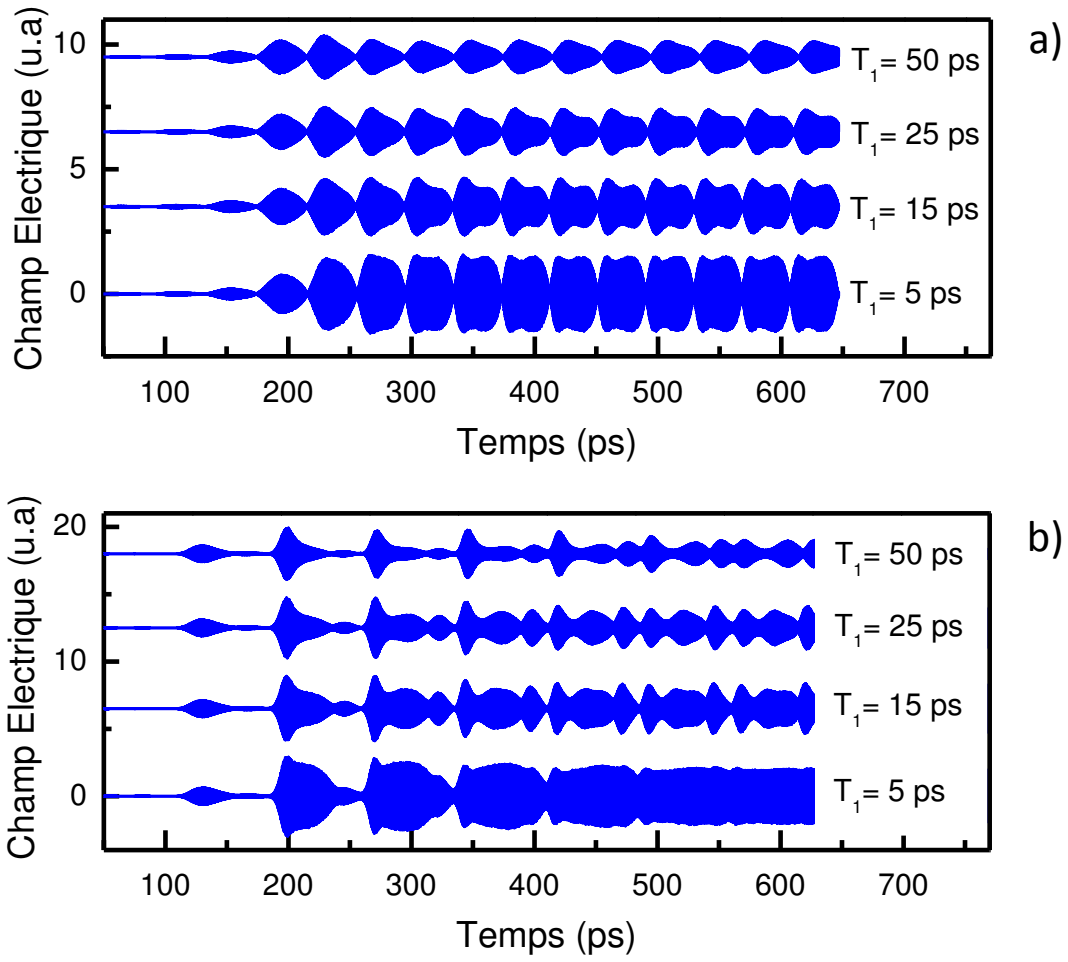


FIGURE 3.17 – Simulations du champ électrique rayonné par le LCQ L182 pour des longueurs de cavité de a) 1.5mm - b) 2.85mm.

On observe que l'émission tend vers un régime continu pour les basses valeurs du recouvrement du gain (typiquement 5 ps). En effet, dans ce cas l'inversion de population recouvre rapidement sa valeur d'équilibre. Ainsi, suite au creusement local du gain par l'impulsion qui se propage dans la cavité, un retour plus rapide du gain à l'équilibre (donc au-dessus des pertes) permet d'amplifier plus rapidement les queues de l'impulsion. En conséquence, pour des valeurs plus élevées de T_1 (50 ps), une structure au

caractère plus pulsé s'établit; la dynamique du gain, plus lente, dégrade l'effet d'amplification.

Pour valider le résultat de ces simulations, vérifions que la dépendance de la puissance moyenne intracavité avec la temps de recouvrement du gain est celle attendue. La puissance moyenne intracavité peut s'écrire [90] :

$$P = \Delta n V_m h\nu_{eg} W_{eg} \tag{3.6}$$

où $\Delta n \propto \gamma_s$ est la densité d'inversion de population en régime permanent, $V_m \propto L$ est le volume du mode et $W_{eg} = \frac{1}{\tau_{eg}} \left(\frac{\gamma_0}{\gamma_s} - 1 \right)$ le taux de transition entre les états $|e\rangle$ et $|g\rangle$ (γ_0 gain non saturé maximal). La dépendance en T_1 est donc donnée uniquement par le terme W_{eg}. Dans l'hypothèse où $\frac{1}{T_1} \sim \frac{1}{\tau_{eg}}$, on s'attend à ce que la puissance diminue avec l'accroissement de T_1 suivant une dépendance linéaire en $\frac{1}{T_1}$. Cette relation est effectivement observée ici. Par ailleurs, d'après la relation 3.6, la puissance est proportionnelle à $L\gamma_s \left(\frac{\gamma_0}{\gamma_s} - 1 \right)$ et augmente donc avec la longueur de cavité L. Avec les valeurs de γ_0 (21 cm^{-1} - gain maximal non saturé), γ_s (respectivement 11 et 7 cm^{-1} pour les cavités de L=1.5 et L=2.85 mm de longueur), la puissance moyenne émise pas le laser de longueur 2.85 mm est attendue 2.6 fois plus forte que pour le laser de 1.5 mm, pour une même valeur de T_1. Cette valeur est en bon accord avec la valeur de 2.35 obtenue à partir des profils simulés.

Une estimation de T_1 peut être obtenue en comparant les profils simulés et les mesures expérimentales pour les deux longueurs de cavité (représentées sur la figure 3.18). Le meilleur accord est obtenu pour une valeur de $T_1 = 15$ ps [20]. dans ce cas, on peut noter que les champs simulés reproduisent la forme des impulsions observées avec un bon accord qualitatif. La valeur peut être comparée aux estimations expérimentales obtenues pour des LCQs MIR [100] et THz [101]. Ces deux expériences sont basées sur des mesures pompe-sonde: une première impulsion THz fait baisser le gain, tandis que la suivante sonde le recouvrement du gain. Pour cela, il est indispensable de disposer d'une source THz de très forte puissance pour saturer le gain (usage d'un laser à électron libre FELIX dans [101]). Par ailleurs les facettes sont polies à 45° pour avoir un gain d'équilibre non saturé en empêchant l'émission laser. La valeur obtenue pour un laser bound-to-continuum émettant à 3 THz y est de 50 ps, en qualitatif bon accord avec l'estimation que nous obtenons. La différence observée pourrait s'expliquer par la grande variabilité de T_1 avec la structure de bande considérée.

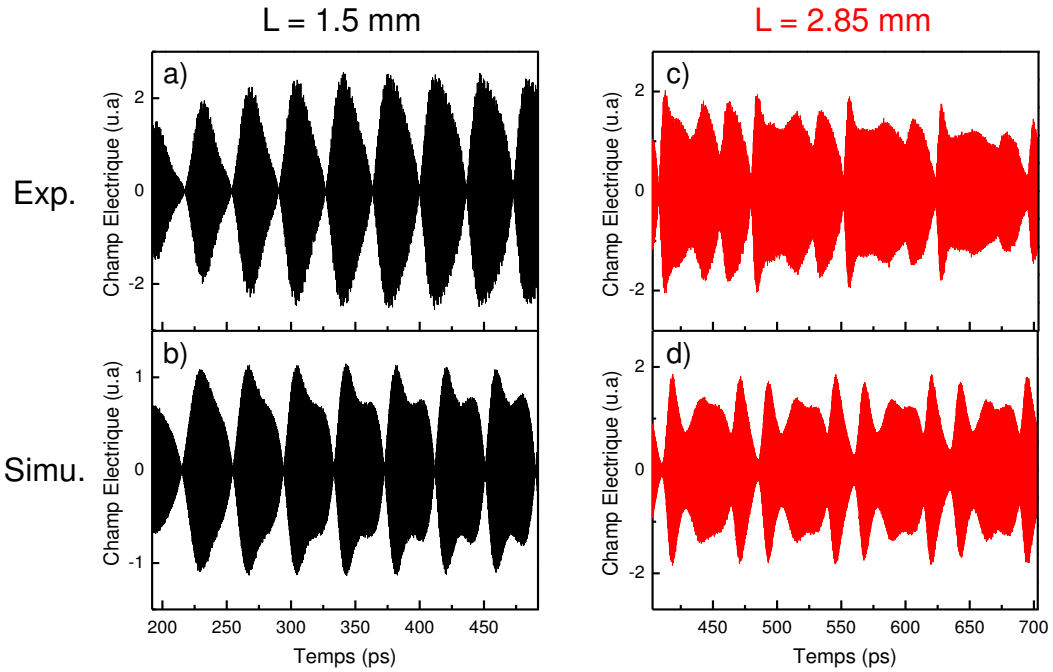


FIGURE 3.18 – Comparaison des profils de champs électriques temporels : pour la cavité de 1.5 mm (a) expérience - b) simulation avec $T_1 = 15$ ps) et pour la cavité de 2.85 mm (c) expérience - d) simulation avec $T_1 = 15$ ps).

Le modèle à partir des équations de Maxwell-Bloch pour un système à deux niveaux permet de reproduire avec un bon accord les profils temporels de l'émission mesurés. La méthode que nous proposons pour estimer T_1 est nouvelle et se démarque des techniques pompe-sonde [100, 101]. L'estimation de T_1 est en particulier un résultat intéressant, car ce temps détermine les propriétés dynamiques du laser. Une perspective pour enrichir cette description serait d'utiliser un modèle à trois niveaux [102], qui permet de considérer les effets liés à un temps de vie non nul de l'état bas.

3.4 Efficacité du contrôle de phase

La détection en temps du champ électrique d'un LCQ THz permet d'envisager son usage comme source de spectrocopie THz dans le domaine temporel. Dans ce contexte, il est très important de s'assurer que tout le rayonnement du LCQ est détecté de façon cohérente (et donc bien synchronisé). En effet, si une partie du rayonnement utilisé de la source THz n'est pas détecté, l'interprétation d'une mesure sur un échantillon étudié est faussée. Nous avons décrit deux processus qui peuvent initier l'émission stimulée du LCQ: l'émission spontanée et l'impulsion THz émise par l'antenne photoconductrice (le seed) et injectée dans la cavité. Les deux sont des mécanismes compétitifs pour le déclenchement de l'émission laser. Dans cette section ,nous allons analysé et quantifié l'effet de la compétition entre l'émission spontanée et le seed. L'étude est menée sur le laser de 2.5 THz (croissance L182) avec une longueur de cavité de 2.85 mm. Dans toute cette section, des impulsions RF de puissance moyenne 6 W et un courant quasi-DC de 70 A/cm^2 sont appliqués sur ce laser.

3.4.1 Influence de l'amplitude du seed

Quand on change l'amplitude du seed et que l'on fait l'acquisition du champ émis par le laser, on peut vérifier si le processus d'injection seeding est efficace, c'est à dire s'il permet de contrôler totalement la phase du champ électrique émis par le LCQ.

Pour tester l'effet de l'amplitude de l'impulsion THz externe (seed), nous avons changé la tension appliquée à l'antenne dans le régime où l'amplitude du champ THz rayonné (par l'antenne) lui est linéaire. Sur la figure 3.19 est représentée la mesure expérimentale de l'allure du champ électrique rayonné par le laser pour diverses valeurs de la tension sur l'antenne. La fenêtre temporelle choisie ici correspond à un champ électrique stable en fonction du temps: le régime d'amplification est terminé. Chacun des profils de champ mesurés (correspondant à une valeur différente de l'amplitude du seed) a une forme globale qui se répète avec une période de 69 ps, égale à $T_c = \frac{2nL}{c}$. On observe que la puissance THz moyenne rayonnée dépend fortement de l'amplitude de l'impulsion THz injectée.

L'amplitude du champ électrique du LCQ à t=453 ps (courbe noire) ainsi que la valeur maximale en champ du seed (courbe rouge) sont tracées en fonction de la tension appliquée sur l'antenne sur la figure 3.20. On peut observer deux régimes caractéristiques. L'amplitude du seed est proportionnelle à la tension appliquée sur l'antenne (courbe rouge). Pour les tensions supérieures à 0.5 V, on observe une saturation du champ électrique émis par le LCQ mesuré à t=453 ps. Cette saturation est le signe d'une injection efficace. A l'inverse, le champ électrique rayonné par le LCQ à t=453 ps croît linéairement aux basses tensions ([0 - 0.2] V). A t=453 ps, la période transitoire de construction du champ laser est terminée et le laser a atteint un régime quasi-permanent où le gain est saturé. La puissance totale rayonnée par le LCQ en régime permanent est indépendante des conditions initiales de démarrage de l'émission laser. Ainsi, même si on change l'amplitude du seed, on s'attend à ce que la puissance THz totale du LCQ soit toujours la même. Pourtant nous observons une évolution forte de l'amplitude du

champ THz à t=453 ps avec l'amplitude du seed. Cela signifie que nous ne détectons pas toute l'émission du LCQ de façon cohérente. Cette émission que nous ne pouvons pas détecter est initiée par l'émission spontanée. Dans le régime de tension de l'antenne [0 - 0.5] V, le laser est donc à la fois déclenché par l'émission spontanée et par le seed.

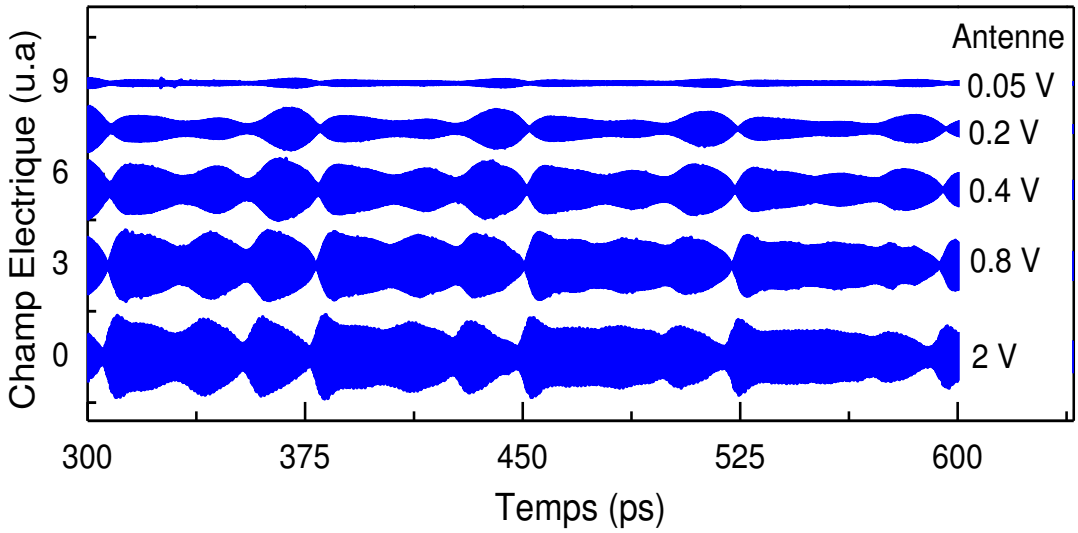


FIGURE 3.19 – Profil temporel du champ électrique en fonction de l'amplitude de l'impulsion THz externe injectée dans la cavité. Les différentes amplitudes du seed sont associées à des tensions appliquées sur l'antenne de : 0.05 V - 0.2 V - 0.4 V - 0.8 V - 2 V.

La limite entre les deux régimes (pour une tension appliquée sur l'antenne de 0.5 V) correspond à une amplitude maximale du champ électrique du seed de 2.7 V/cm. A 2.45 THz, nous estimons que la valeur associée du champ électrique du seed effectivement injecté dans la cavité est de l'ordre de 10 mV/cm [4]. Si l'amplitude de l'impulsion THz externe est supérieure à cette valeur, elle domine l'émission spontanée et suffit à saturer le gain du LCQ. Cette valeur seuil peut être comparée à l'amplitude du champ électrique de l'émission spontanée dans la cavité. Une estimation de 100 μV/cm est obtenue à l'appui de la référence [87]. La valeur seuil de l'amplitude du seed et l'amplitude de l'émission spontanée sont très différentes. Ceci peut s'expliquer par les propriétés différentes des champs électromagnétiques associés au seed et à l'émission spontanée: le champ associé à l'émission spontanée est homogène dans la cavité ce qui n'est pas le cas pour le seed. En effet l'impulsion THz injectée a une extension spatiale petite immédiatement après avoir pénétré dans le LCQ au regard de la longueur de cavité. Cette extension est estimée à 100 μm, bien inférieure à la longueur de cavité de 2.85 mm. Cet effet défavorise l'efficacité du processus d'injection. De plus, l'apport d'énergie par l'impulsion THz externe se fait durant une période très brève (de l'ordre de la picoseconde). La dynamique du laser étant très rapide (T_1 = 15 ps), il faut donc

4. En évaluant l'amplitude du champ électrique à 2.45 THz et en supposant que 10% de l'amplitude de l'impulsion de l'antenne est couplé au LCQ.

injecter l'impulsion THz dans la cavité à des délais très courts après l'allumage pour favoriser le déclenchement sur le seed plutôt que sur l'émission spontanée. Expérimentalement, on constate en effet que l'efficacité de l'injection change fortement lorsque le seed est retardé/avancé de quelques dizaines de picosecondes par rapport à l'impulsion RF (l'efficacité de l'injection n'est pas sensible à un changement de retard inférieur à 10 ps).

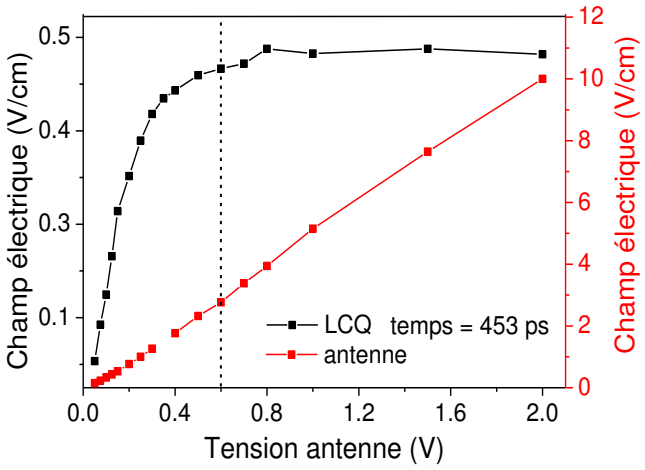


FIGURE 3.20 – Évolution de l'amplitude du champ électrique en fonction de la tension sur l'antenne : de l'impulsion THz externe (rouge) et de l'émission du LCQ pour un retard de 453 ps.

3.4.2 Mesure du rayonnement total émis

Dans le régime où l'amplitude du seed est faible (tension sur antenne inférieure à 0.5 V), l'émission laser est partiellement initiée par l'émission spontanée. Le champ laser initié par l'émission spontanée n'est pas synchronisé avec les impulsions fs du laser Ti:Sa et n'est donc pas détectable par échantillonnage électro-optique. En revanche, l'enveloppe lente du rayonnement émis par le LCQ est donnée par la forme des impulsions RF. Ces impulsions de courant sont toujours synchronisées avec les impulsions fs. L'enveloppe du rayonnement peut donc en principe être détectée par échantillonnage électro-optique quelque soit le mécanisme de déclenchement de l'émission laser (seed ou émission spontanée). Par la suite, nous présentons une méthode qui permet la mesure de l'enveloppe de l'intensité totale émise par le LCQ : déclenchée par l'émission spontanée et/ou le seed. Elle permet notamment de quantifier l'efficacité de l'injection.

Jusqu'ici, nous avons utilisé une configuration électro-optique qui est celle communément utilisée dans les montages de spectroscopie dans le domaine temporel mais qui ne permet pas de mesurer l'enveloppe du rayonnement initié par l'émission spontané, comme nous le verrons par la suite. Elle nécessite en particulier de placer une lame quart-d'onde ainsi qu'un cube séparateur de polarisation entre le cristal électro-optique et la balance de photodiodes. Pour la mesure du profil temporel de l'intensité totale, nous utilisons donc une configuration électro-optique différente [103, 104], représentée

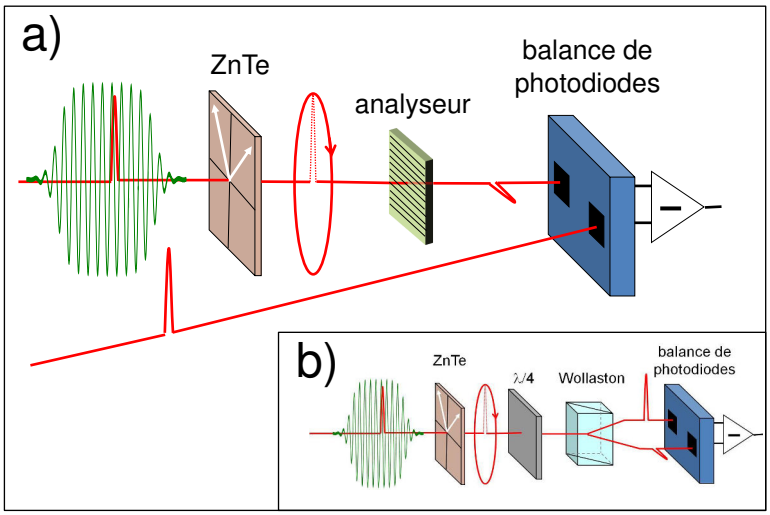


FIGURE 3.21 – a) Configuration électro-optique qui permet la mesure de l'enveloppe de l'intensité totale (due à l'émission spontanée ou au seed) émise par le LCQ. Le faisceau optique qui n'est pas transmis par le cristal de ZnTe et incide sur la seconde photodiode de la balance est utilisé pour empêcher la saturation du système d'amplification en aval de la balance. b) Configuration électro-optique standard qui permet la mesure du champ THz synchronisé avec les impulsions fs.

sur la figure 3.21 a) et discutée en détails dans l'annexe C. La lame quart-d'onde et le cube séparateur sont remplacés par un analyseur. L'analyseur est croisé avec la polarisation rectiligne du champ IR en l'absence du cristal de ZnTe. Le faisceau IR n'est ainsi pas transmis par l'analyseur et l'intensité collectée par la photodiode est nulle. Le cristal de ZnTe est ensuite ajouté. L'état de polarisation rectiligne du champ IR est alors modifié, à cause d'une biréfringence induite par le champ THz mais également d'une biréfringence résiduelle du cristal électro-optique. Une portion de l'intensité du champ IR est ainsi transmise à travers l'analyseur et l'intensité I_2 instantanée collectée sur la photodiode qui suit l'analyseur vaut alors (Annexe C) :

$$I_2(t) = \frac{I_0}{4}(\Gamma^2(t) + 2\Gamma(t)\Gamma_0) \tag{3.7}$$

où I_0 est l'intensité IR correspondant au faisceau qui incide sur l'analyseur. La biréfringence du cristal induit un déphasage entre les composantes du champ électrique IR suivants les axes propres du cristal. Γ et Γ_0 sont les déphasages liés à la biréfringence dynamique induite par le rayonnement THz et à la biréfringence résiduelle du cristal. t représente le retard entre l'enveloppe du rayonnement THz et les impulsions fs d'échantillonnage. A retard fixe, l'extraction du déphasage $\Gamma(t)$ nécessite un grand nombre d'événements d'échantillonnage successifs et résulte de leur moyennage [5]. A ce stade, il est utile de décomposer le déphasage Γ en deux contributions sommées : celle due à un champ synchronisé Γ_s (déclenchée par le seed) et celle due à un champ non-synchronisé

5. Des mesures avec un événement unique d'échantillonnage sont possibles pour des champs THz intenses [105].

Γ_{ns} (initié par l'émission spontanée). On a ainsi:

$$\Gamma(t) = \Gamma_s(t) + \Gamma_{ns}(t) \tag{3.8}$$

L'intensité moyennée sur un grand nombre d'événements d'échantillonnage s'écrit alors (d'après les relations 3.7 et 3.8):

$$\langle I_2(t)\rangle = \frac{I_0}{4}\left\{\left\langle\Gamma_s^2(t)\right\rangle + \left\langle\Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle + 2\Gamma_0\left\langle\Gamma_s(t)\right\rangle + 2\Gamma_0\left\langle\Gamma_{ns}(t)\right\rangle\right\} \tag{3.9}$$

$$= \frac{I_0}{4}\left\{\left\langle\Gamma_s^2(t)\right\rangle + \left\langle\Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle + 2\Gamma_0\left\langle\Gamma_s(t)\right\rangle\right\} \tag{3.10}$$

$\langle\Gamma_{ns}(t)\rangle = 0$ car le champ initié par l'émission spontanée n'est pas synchronisé. En revanche, la moyenne de la quadrature $\left\langle\Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle$ ne s'annule pas. En effet l'enveloppe est synchronisée avec les impulsions fs. Même pour un champ non synchronisé, la mesure moyennée sur plusieurs évènements d'échantillonnage de son carré est proportionnelle à l'enveloppe et donc non nulle. Ceci permet de déduire des informations sur le rayonnement déclenché par l'émission spontanée. Avec la configuration électro-optique standard, on obtiendrait une différence d'intensité collectée égale à $\Delta I(t) \propto \langle\Gamma_s(t) + \Gamma_{ns}(t)\rangle = \langle\Gamma_s(t)\rangle$ (chapitre 1). Ce nouveau procédé présente donc l'avantage de permettre la détection de tout le rayonnement émis par une source THz. En revanche, l'inconvénient est que le signal détecté est très faible (rapport signal sur bruit de 10^1 à 10^2) comparé à celui obtenu avec la détection usuelle ($\Gamma_0 \sim 10^3\Gamma$ d'ou $\Gamma_0\Gamma >> \Gamma^2$).
On peut par exemple observer l'émission THz lorsque le LCQ est commuté avec les impulsions de courant RF en l'absence de seed. Dans ce cas, le champ est totalement non synchronisé ($\Gamma_s(t) = 0$) et on a simplement :

$$\langle I_2(t)\rangle = \frac{I_0}{4}\left\langle\Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle$$

L'allure du rayonnement lorsque le LCQ est piloté par des impulsions RF sans couplage avec une impulsion THz externe, est initiée par l'émission spontanée et représentée sur la figure 3.22 b). L'allure de puissance rayonnée correspond qualitativement à la forme de l'impulsion de courant RF appliquée sur le LCQ, représentée en trait pointillé rouge. On peut noter que l'aspect impulsionnel dans le régime transitoire disparaît. Auparavant, la forme impulsionnelle du seed injecté dans le LCQ conduisait à une enveloppe de l'émission laser pulsée lors du régime transitoire.
On note également que l'allumage s'effectue sur une période extrêmement courte. Le temps de montée (10-90 %) est estimé expérimentalement à 55 ps. On peut comparer ce temps de montée avec celui obtenu à partir de la modélisation de Maxwell-Bloch. L'émission spontanée est prise comme source de déclenchement pour la simulation et modélisée par un champ électrique de distribution uniforme sur l'ensemble des points de la cavité. Nous avons effectué une simulation à l'aide du modèle de maxwell-Bloch avec l'hypothèse que le laser est porté instantanément au-dessus de son seuil (allure temporelle du courant en forme de "marche d'escalier"). Dans ce cas, le profil de l'intensité rayonnée simulé pour $T_1 = 15$ ps présente un temps de montée 10-90% de 70 ps. Cette valeur est en bon accord avec la mesure expérimentale. Le temps de montée de l'impulsion RF ne limite pas ici la durée d'allumage.

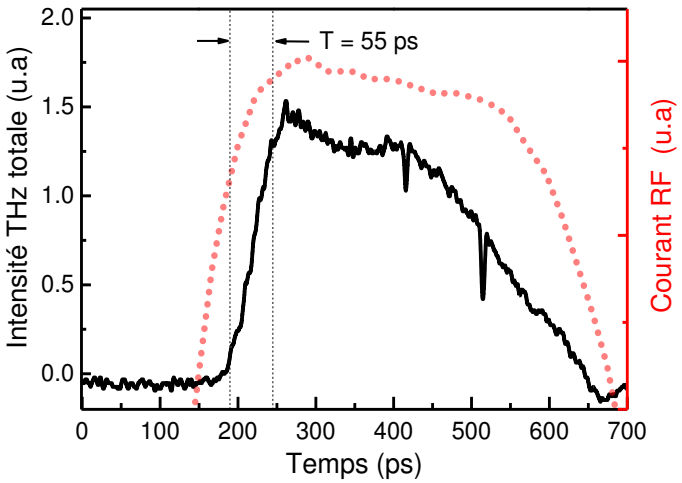


FIGURE 3.22 – Mesure de l'émission non synchronisée du LCQ L182 2.85 mm. On peut voir l'intensité THz émise (noir) sous l'application d'impulsions de courant RF (profil de courant en rouge) en l'absence de seed couplé à la cavité.

3.4.3 Compétition seed/émission spontanée

En ajoutant le seed lors de la commutation du laser par les impulsions RF, on peut maintenant analyser l'effet de la compétition entre le seed et l'émission spontanée sur le profil temporel du rayonnement. On a cette fois-ci :

$$\langle I_2(t)\rangle = \frac{I_0}{4}\left\{\left\langle \Gamma_s^2(t)\right\rangle + \left\langle \Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle + 2\Gamma_0\left\langle \Gamma_s(t)\right\rangle\right\}$$

La procédure suivante est adoptée pour la détection simultanée des contributions synchronisée et non synchronisée lors du couplage de l'impulsion THz externe dans la cavité :

- $\langle \Gamma_s(t)\rangle$ est obtenue en utilisant la géométrie standard pour la détection synchrone.
- La nouvelle détection est utilisée pour mesurer l'intensité totale (synchronisée + non synchronisée), c'est à dire $\left\langle \Gamma_s^2(t)\right\rangle + \left\langle \Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle$. Comme le terme $2\Gamma_0\left\langle \Gamma_s(t)\right\rangle$ est très fortement dominant, une méthode de modulation électronique (décrite dans l'annexe C.3) est utilisée pour la minimiser sans affecter les deux autres termes.
- On peut passer d'une détection à l'autre en utilisant un miroir basculant qui permet de dévier le faisceau optique après le cristal.

La mesure de l'intensité synchronisée et de l'enveloppe de l'intensité totale est reportée sur la figure 3.23 pour une tension appliquée sur l'antenne de 2 V. En particulier, on observe que l'enveloppe de l'intensité totale (en rouge fig 3.23.c) et l'enveloppe de l'intensité synchronisée se superposent quasi parfaitement. Cela signifie que l'émission stimulée est exclusivement initiée par le seed et que l'injection est efficace.

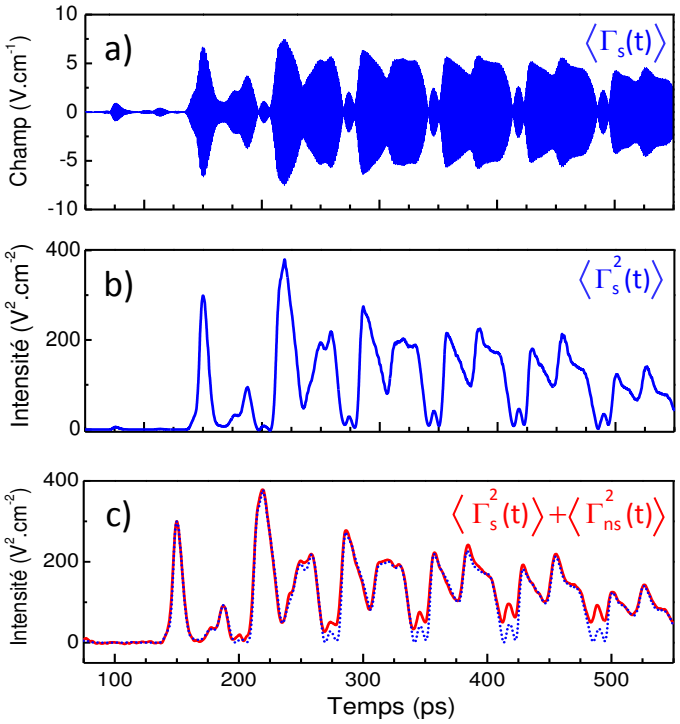


FIGURE 3.23 – Profil temporel de l'émission du LCQ L182 2.85 mm couplé à des impulsions THz externes faibles (tension sur antenne de 2 V) a) Champ synchronisé - b) Enveloppe de l'intensité synchronisée extraite à partir de la courbe a) - c) Enveloppe de l'intensité totale (synchronisée + non synchronisée), l'enveloppe de l'émission synchronisée est reportée en trait bleu pointillé.

En revanche, sur la figure 3.24 est illustrée le résultat de ces mesures pour une amplitude du seed faible (tension d'antenne égale à 0.4 V). Cette mesure constitue la démonstration expérimentale que le LCQ peut également à la fois être déclenché sur l'émission spontanée et sur l'impulsion THz externe. Les figures b) et c) mettent en avant un profil radicalement différent pour l'intensité synchronisée et l'intensité totale. La contribution due à l'émission spontanée est donc majoritaire et correspond à la différence entre les enveloppes tracées en rouge et en bleu. On note que le rapport des composantes synchronisée/non synchronisée n'est pas constant dans le temps (sur la figure 3.24.c) la composante synchronisée est par exemple majoritaire à 225 ps et minoritaire à 400ps).

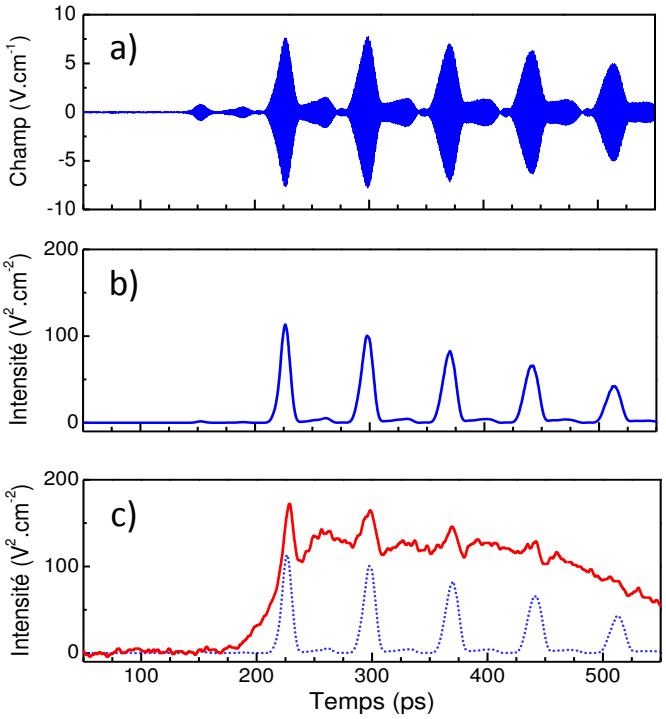


FIGURE 3.24 – Profil temporel de l'émission du LCQ L182 2.85 mm couplé à des impulsions THz externes faibles (tension sur antenne de 0.4 V) a) Champ synchronisé - b) Enveloppe de l'intensité synchronisée extraite à partir de la courbe a) - c) Enveloppe de l'intensité totale (synchronisée + non synchronisée), l'enveloppe de l'émission synchronisée est reportée en trait bleu pointillé.

La proportion synchronisée est plus forte aux retards proches d'une réflexion de l'impulsion THz dans la cavité (toutes les 72 ps). A $t = 225$ ps l'émission est majoritairement synchronisée. Les rapports de l'intensité totale sur l'intensité synchronisée aux retards 225 ps, 297 ps, 369 ps, 441 ps (pics successifs) sont respectivement de 1.51, 1.65, 1.78 et 1.95. Ceci indique une évolution qui tend de plus en plus vers une émission non synchronisée.

Pour quantifier l'efficacité de la synchronisation du champ du laser par le seed, on peut définir un degré de synchronisation $\gamma_s(\tau)$ comme le rapport des enveloppes du champ synchronisé et du champ total. Avec la détection électro-optique standard, le champ échantillonné $\mathrm{E}_s(\tau)$ s'exprime en fonction du champ THz $\mathrm{E}_{THz}(t)$ qui illumine le cristal de détection suivant la relation :

$$\mathrm{E}_s(\tau) = \frac{1}{\mathrm{NTP}_0} \int_0^{\mathrm{NT}} \mathrm{P}_{fs}(t-\tau)\mathrm{E}_{THz}(t)dt \tag{3.11}$$

où N est le nombre d'évènements d'échantillonnage répétés chaque T = 13 ns pour un retard τ fixe donné par la position de la ligne à retard optique (on a typiquement NT

$\sim$ 10 ms soit N = 10^6). La puissance du faisceau IR utilisé pour l'échantillonnage est :

$$\begin{aligned} \mathrm{P}_{fs}(t) &= \sum_{n=0}^{N} \mathrm{P}_n(t) \\ &= \sum_{n=0}^{N} \mathrm{P}_0 \delta(t - nT) \end{aligned}$$

Dans la mesure où les impulsions fs sont brèves par rapport à une oscillation du champ THz, le faisceau IR écrit comme la succession d'impulsions de puissance $\mathrm{P}_n(t)$ peut se réécrire comme une fonction de Dirac avec une puissance intégrée P_0. De même on peut écrire le champ THz, comme une succession d'impulsions THz associées à chaque évènement successif d'échantillonnage :

$$\mathrm{E}_{THz}(t) = \sum_{n=0}^{N} \mathrm{E}_n(t)$$

Les expressions de $E_{THz}(t)$ et $\mathrm{P}_{fs}(t)$ insérées dans l'équation 3.11 aboutissent à :

$$\mathrm{E}_s(\tau) = \frac{1}{\mathrm{P}_0} \langle \mathrm{P}_n(t-\tau)\mathrm{E}_n(t) \rangle$$

où le moyennage est fait sur les N évènements d'échantillonnage à τ fixe. La mesure du champ synchronisé $\mathrm{E}_s(t)$ correspond mathématiquement à une fonction de corrélation entre le champ IR et le champ THz. $\gamma_s(\tau)$ correspond donc à une mesure de la cohérence d'échantillonnage et peut se mettre sous la forme :

$$\gamma_s(\tau) = \frac{\langle \mathrm{P}_n(t-\tau)\mathrm{E}_n(t) \rangle}{\sqrt{\langle \mathrm{P}_n^2(\tau) \rangle \langle \mathrm{E}_n^2(\tau) \rangle}} \tag{3.12}$$

Nous avons représenté sur la figure 3.25 la mesure de la cohérence d'échantillonnage pour des amplitudes différentes du seed. Le panel a) est associé à une émission très fortement synchronisée [6]. En effet, 98 % de la puissance THz du LCQ intégrée sur la fenêtre de mesure est synchronisée. C'est le régime d'injection seeding efficace. La valeur de la cohérence d'échantillonnage est donc très proche de 1 sur l'essentiel de la fenêtre temporelle (fig 3.25.e), excepté lorsque la puissance totale THz est proche de zéro. Lorsque l'on diminue l'amplitude du seed (panel b-d)), on observe progressivement une contribution liée à l'émission spontanée de plus en plus forte, pour finalement être totalement dominante aux très faibles amplitudes du seed (panel d)). En conséquence, la cohérence d'échantillonnage diminue progressivement (e-h)) jusqu'à atteindre zéro (panel h)). Les corrélations entre le champ THz et les impulsions fs sont alors nulles et $\mathrm{E}_s(\tau) = 0$.

6. L'enveloppe du rayonnement initié par l'émission spontanée, en rouge, est obtenue en effectuant la différence entre les mesures de l'intensité THz totale et de l'intensité THz synchronisée (initiée par le seed).

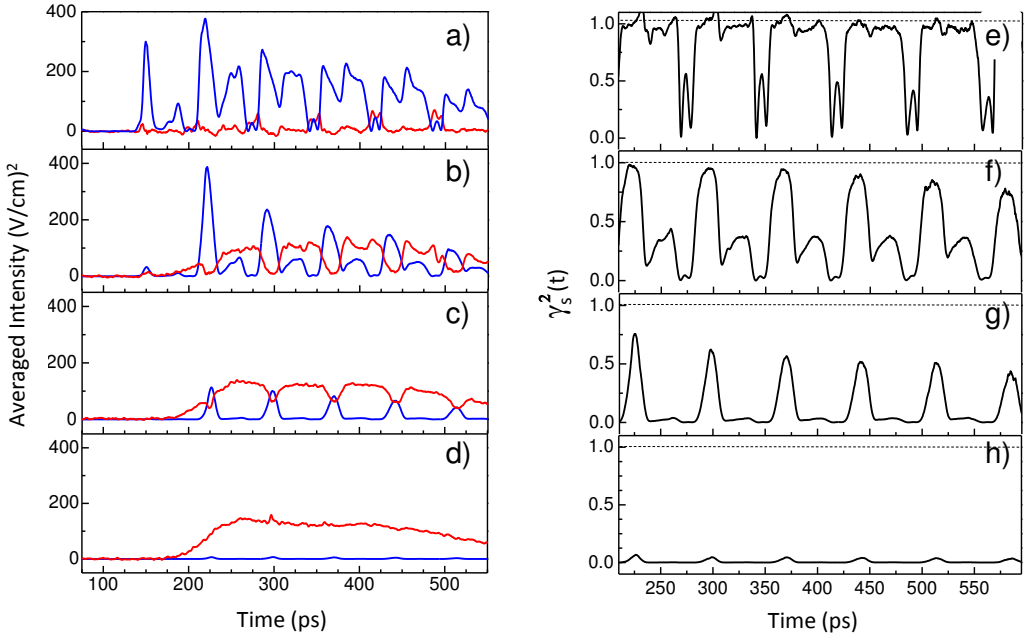


FIGURE 3.25 – Mesure de la cohérence d'échantillonnage pour différentes amplitudes du seed. Le seed est généré avec des tensions appliquées sur l'atenne photoconductrice de a)2 V b) 0.8 V c) 0.2 V d) 0.05 V. a-d) Les courbes correspondent à l'enveloppe de l'intensité THz initiée par le seed (courbes bleues) et initiée par l'émission spontanée (courbes rouges). e-h) Le carré du degré de cohérence d'échantillonnage $\gamma_s^2(t)$ en fonction du temps associé aux courbes a-d).

La technique présentée ici a permis d'établir que les profils d'émission expérimentaux discutés dans les sections 3.3 et 3.4 correspondaient à des régimes très fortement dominés par le déclenchement sur l'impulsion THz externe, où l'injection seeding est très efficace. Elle permet également de constater que les contributions de l'émission spontanée et de l'impulsion THz peuvent coexister. Il est donc intéressant de chercher des solutions pour minimiser la valeur de l'amplitude du seed nécessaire à une synchronisation totale.

3.5 Optimisation du couplage de l'impulsion THz au LCQ

Après avoir exploité la richesse des informations apportées par la mesure du champ des LCQs, puis quantifié l'efficacité d'injection, nous nous intéressons ici à des solutions qui permettent de simplifier le dispositif de contrôle de phase. Une proportion faible de l'impulsion THz qui illumine le LCQ est effectivement couplée à la cavité du laser. En effet, l'interface air/LCQ impose un coefficient de réflexion en énergie de l'ordre de 0.4. De plus, le couplage d'une onde THz en espace libre dans un dispositif sub-longueur d'onde est particulièrement inefficace. Deux types de solutions sont envisageables face à cette difficulté pour optimiser l'injection seeding: changer les propriétés du mode plasmonique [106] ou utiliser une génération interne de l'impulsion THz [19]. Dans cette section, nous détaillons spécifiquement l'étude menée sur la génération du seed directement à l'intérieur de la cavité du LCQ (génération intra-cavité).

3.5.1 Génération du seed dans la cavité du LCQ

Des impulsions THz peuvent être générées à l'intérieur de la cavité du LCQ sous excitation optique pulsée de manière analogue à une antenne photoconductrice. En effet, l'injection d'une impulsion IR dans dans le LCQ permet de générer une population hors-équilibre de paires électrons-trous. Sous l'effet de la tension électrique appliquée sur le laser, les porteurs photogénérés sont mis en mouvement. Le courant transitoire induit correspond à un rayonnement THz large-bande émis [107]. Le choix de la tension appliquée permet de modifier l'amplitude de l'impulsion THz générée. Afin de découpler la tension appliquée pour la génération de l'impulsion THz de celle utilisée pour piloter le LCQ, on peut graver le contact supérieur du laser. Une gravure sur le ruban métallique supérieur du LCQ émettant à 2.5 THz (croissance L182) de longueur de cavité 2.85 mm a donc été faite en collaboration avec l'équipe du Prof. E.H. Linfield de l'Université de Leeds. L'échantillon est représenté schématiquement sur la figure 3.26.

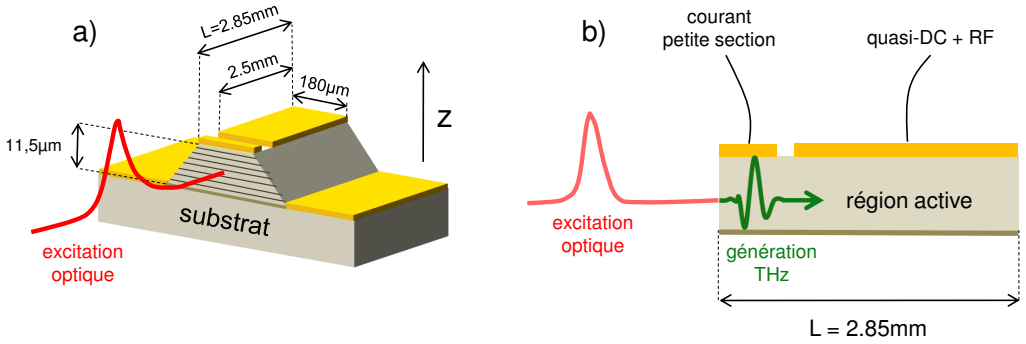


FIGURE 3.26 – Vue du LCQ L182. a) L'échantillon représenté ici a une longueur de cavité égale à 2.85 mm. Le contact métallique supérieur est gravé. b) Vue de profil avec la génération d'une impulsion THz dans la facette sous excitation optique.

La gravure (gravure ionique sèche) d'une épaisseur d'environ 20 μm sépare le contact supérieur en deux sections (figure 3.26): une petite (facette du LCQ) et une grande, de longueurs respectives 305 μm et 2.5 mm. La génération du seed intra-cavité permet par

exemple d'effectuer plus aisément les mesures de gain pour un LCQ à guide double métal, le couplage d'une onde THz externe étant rendu difficile à cause du fort confinement du mode plasmonique [108].

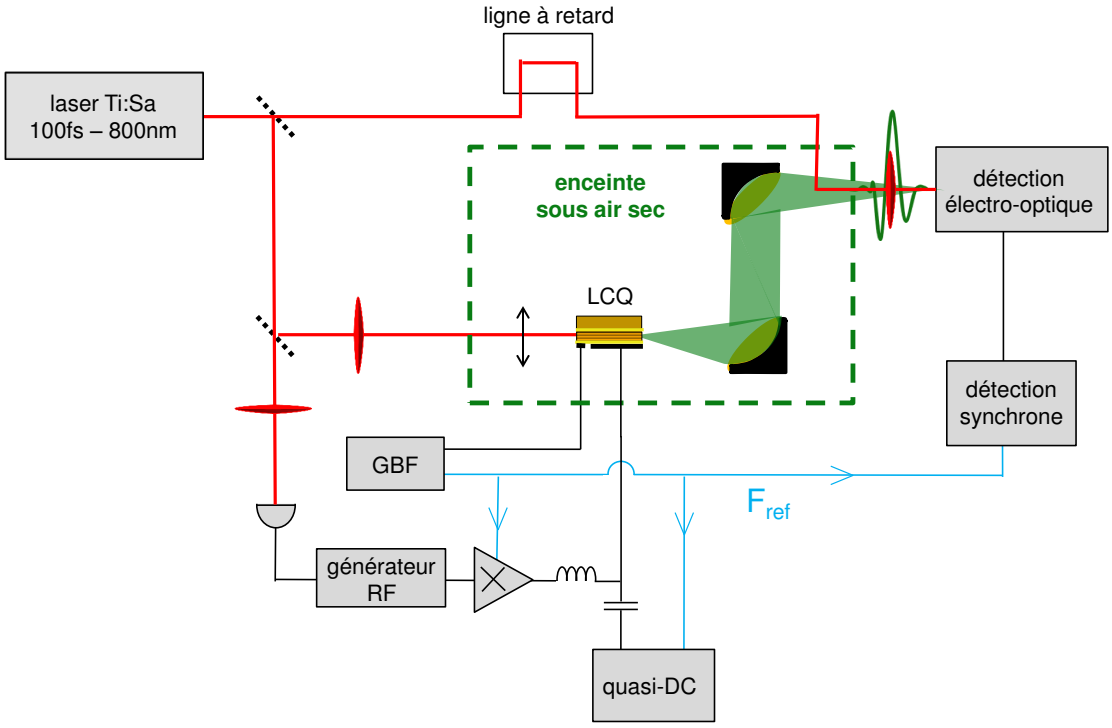


FIGURE 3.27 – Montage associé à la génération du seed à l'intérieur de la cavité du LCQ. Le faisceau IR est focalisé sur une des faces du LCQ. La petite section (305 μm) est pilotée à l'aide d'un GBF et la grande section (2.5 mm) est pilotée par les impulsions RF et le courant quasi-DC. Le courant quasi-DC et le courant appliqué sur la petite section ont la même fréquence.

Le montage expérimental associé à la génération intracavité, représenté sur la figure 3.27, diffère de celui exposé précédemment uniquement par la source d'impulsions THz. L'antenne est ôtée et le faisceau IR du laser Ti:Sa illumine directement la petite section du LCQ. La facette est pilotée par une tension créneau à environ 10 kHz et la grande section par l'association des courants quasi-DC (même fréquence de modulation que pour la facette) et RF. Le retard de l'impulsion RF est ajusté de sorte à allumer la grande section quand une impulsion fs illumine la facette. Toutes les mesures ont été effectuées à 10 K.

3.5.2 Caractérisation électrique

En préalable aux mesures, il est nécessaire de caractériser les propriétés du LCQ gravé. Les caractéristiques courant-tension-puissance rayonnée de la grande section ont été effectuées pour divers courants appliqués sur la petite section (facette). On constate sur la figure 3.28 a) que le courant appliqué sur la facette affecte notablement la caractéristique courant-puissance optique de la grande section pour des densités de courant (appliquées sur la facette) dans une gamme de 180 à 210 A/cm^2. Dans ce domaine, la petite section présente une résistance différentielle élevée (figure 3.28 b)). Ceci traduit un quasi-alignement des niveaux de l'hétérostructure permettant un transport efficace et se manifeste par une sensibilité faible du courant à un changement du champ électrique appliqué. Les pertes apportées par la facette sont ainsi minimisées dans la gamme 180-210 A/cm^2 par rapport à des courants supérieurs ou inférieurs. On observe dans ce domaine de courant que le seuil de courant dans la grande section, proportionnel aux pertes, est abaissé. Cela signifie que la facette et la grande section ne sont pas isolées optiquement. Une baisse des pertes en courant dans la facette réduit également les pertes de la grande section et donc le courant seuil pour l'émission laser. En revanche, en dehors du domaine [180-210]A/cm^2, une variation de la densité de courant appliquée sur la facette influe peu le comportement de la grande section.

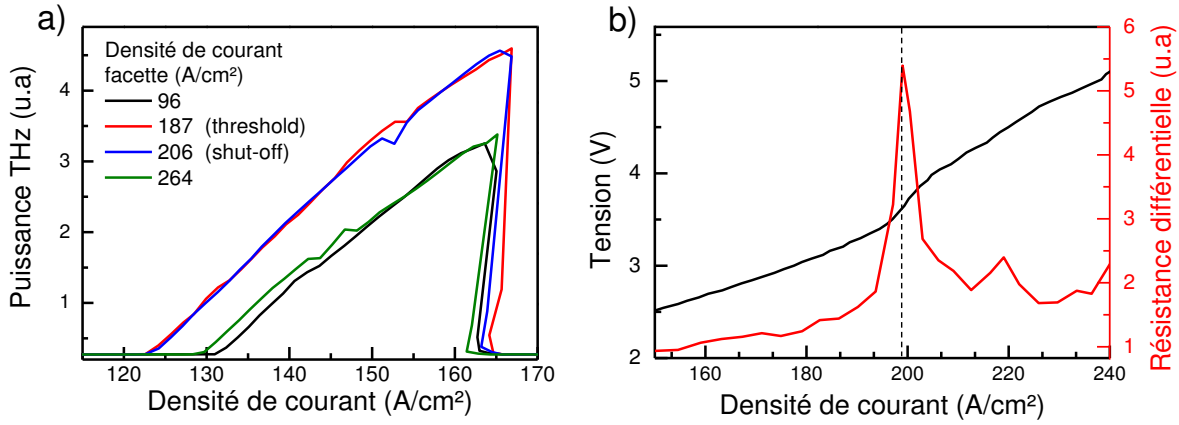


FIGURE 3.28 – a) Caractéristique courant-puissance optique de la grande section pour diverses valeurs de de densité de courant dans la facette b) Caractéristique courant-tension et résistance différentielle de la facette - grande section non connectée.

Quand on illumine la facette du laser avec les impulsions fs, on détecte en temps des impulsions THz cohérentes transmises dans le LCQ. Cependant, il n'est pas possible d'avoir accès directement à la forme de l'impulsion THz intracavité car on ne peut la mesurer en espace libre qu'une fois qu'elle est transmise à travers le LCQ. Toutefois l'allure du seed intracavité à travers le LCQ est représentée sur la figure 3.29 a). La forme de l'impulsion est complètement différente de celle générée par une antenne photoconductrice. En particulier, elle est beaucoup plus longue temporellement, et plus étroite spectralement. C'est l'effet du profil de gain de la grande section autour de 2.45

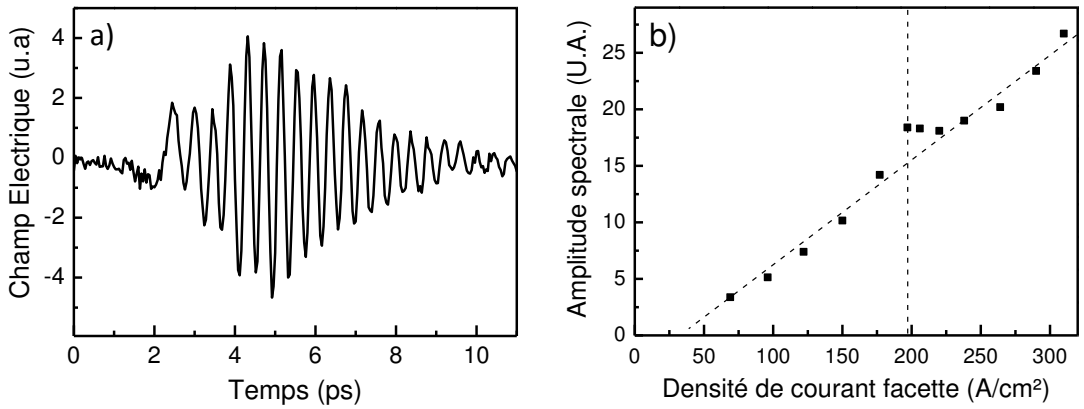


FIGURE 3.29 – Génération intra-cavité a) Profil temporel du champ électrique généré dans la facette et transmis dans la grande section pour des densités de courant respectives de 206 A/cm^2 (facette) et 70 A/cm^2 (grande section) b) Amplitude spectrale à 2.45 THz de l'impulsion THz transmise dans le LCQ (obtenue par transformée de Fourier rapide du profil temporel).

THz. Cet effet d'élargissement est d'autant plus marqué que le gain spectral apporté par la grande section est fort, en particulier dans la zone d'émission laser (la densité de courant sur la grande section se situe ici en dessous du seuil).
L'amplitude de l'impulsion THz varie linéairement avec la puissance IR incidente. Les mesures exposées par la suite sont faites à la puissance IR maximale de 600 mW. L'évolution de la composante fréquentielle dominante de l'impulsion THz à 2.45 THz, obtenue par transformée de Fourier du signal en temps, est tracée sur la figure 3.29 b) en fonction de la densité de courant dans la facette. La dépendance générale est linéaire dans la gamme des courants mesurés. On observe cependant une augmentation plus rapide à des densités de courant proches de 200 A/cm^2 : le gain spectral apporté par la petite section est plus fort (alignement des niveaux), ce qui permet de diminuer les pertes subies par l'impulsion THz.

3.5.3 Régime d'injection seeding

Suite à cette caractérisation, nous pouvons analyser l'effet de la commutation du gain par les impulsions RF quand le seed est injecté. L'impulsion THz est injectée dans la cavité au temps zéro. La grande section est simultanément portée au-dessus de son seuil par les impulsions RF. Le champ laser, déclenché par l'impulsion THz intra-cavité (figure 3.30 a)) présente une succession de pics correspondant aux réflexions successives de l'impulsion THz dans la cavité. Le profil spectral est caractérisé par la présence d'un dizaine de modes longitudinaux, dont cinq dominants répartis entre 2.472 THz et 2.530 THz. L'intervalle spectral libre $\Delta\nu_{ISL} = 14.0 \pm 0.3$ GHz est calculé à partir de ces cinq modes. La grande section et la cavité totale (grande + petite section) ont des longueurs respectives de 2.5 mm et 2.85 mm associés à un intervalle spectral libre $\Delta\nu_{ISL} = \frac{c}{2nL}$ de 16.7 GHz et 14.6 GHz. La valeur obtenue expérimentalement est proche de celle obtenue pour les modes longitudinaux d'une cavité de 2.85 mm. Ceci montre que la gravure sur le

ruban métallique ne crée pas de découplage optique entre la facette et la grande section.

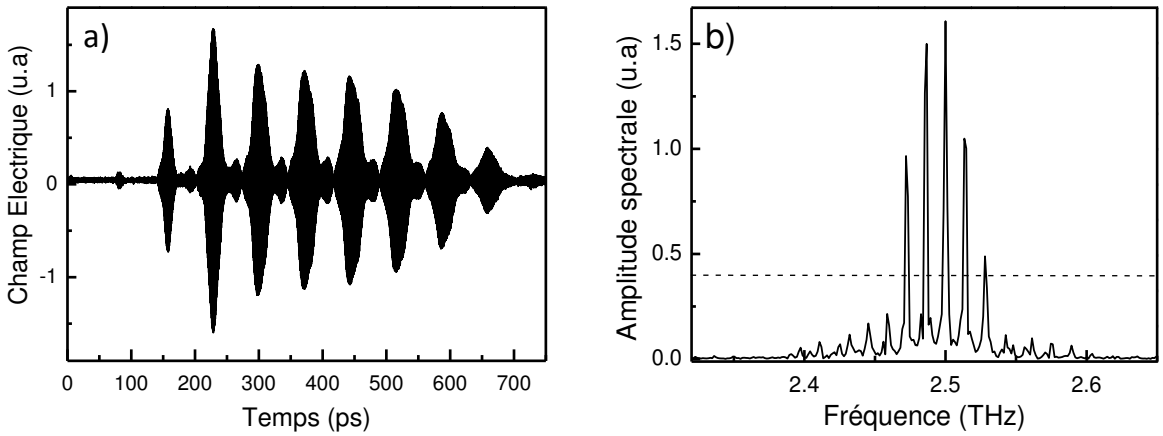


FIGURE 3.30 – Génération intracavité de l'impulsion THz a) Emission laser pour une densité de courant dans la facette égale à 201 A/cm^2 b) Spectre associé obtenu par FFT du signal en temps.

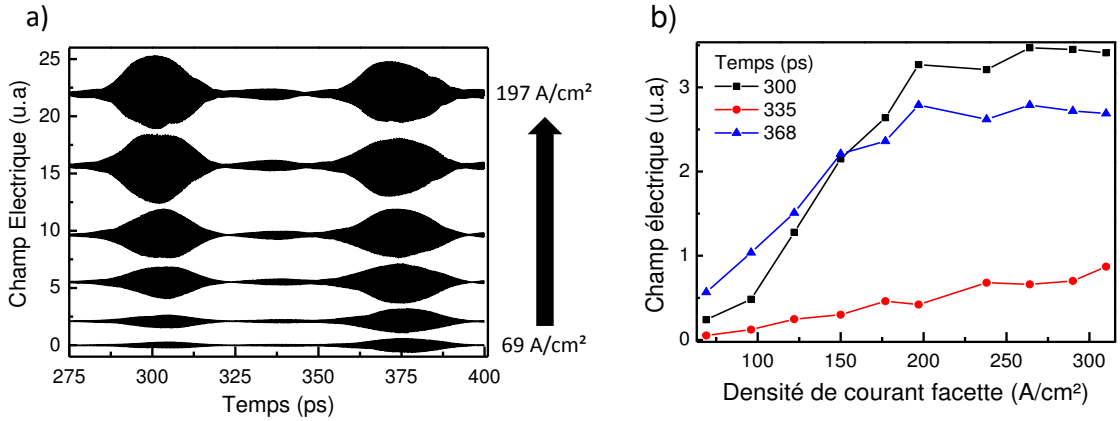


FIGURE 3.31 – a) Profil du champ laser pour différentes densités de courant appliquées à la facette b) Amplitude du champ électrique en fonction de la densité de courant.

L'efficacité du processus d'injection seeding peut être analysée en augmentant l'amplitude de l'impulsion THz intra-cavité. Nous avons progressivement augmenté la densité de courant de 69 A/cm^2 à environ 310 A/cm^2 ce qui revient à accroître l'amplitude spectrale de la graine à 2.45 THz d'un facteur 7.9 (figure 3.31 a)). Cela se traduit par une croissance globale du champ synchronisé. Sur la figure 3.31 b), l'évolution de l'amplitude du champ électrique aux retards de 300 ps et 368 ps (correspondant aux impulsions observées en temps) manifeste clairement une saturation au-delà de 200 A/cm^2. On constate par ailleurs que le profil temporel observé avec la génération intra-cavité est différent de celui obtenu avec la génération externe (profil typique sur la figure 3.18 c)), avec un caractère impulsionnel beaucoup plus marqué.

Les formes des impulsions externes (antenne) et intracavité sont différentes. D'une part, les deux impulsions ont des profils spectraux différents. De plus, l'injection de l'impulsion THz externe est suivie de l'injection de plusieurs impulsions plus petites (dues en particulier à des réflexions dans le substrat de l'antenne) ce qui n'est pas le cas pour la génération intracavité. Cependant, le champ total rayonné ne semble pas fortement sensible à la forme. En effet, la modélisation ne permet pas de rendre compte d'une telle différence en changeant la largeur du spectre de la source ou encore la position temporelle des échos induits par le substrat. Sur la figure 3.32 sont représentées des exemples de profils simulés pour trois formes d'impulsions THz externes différentes.

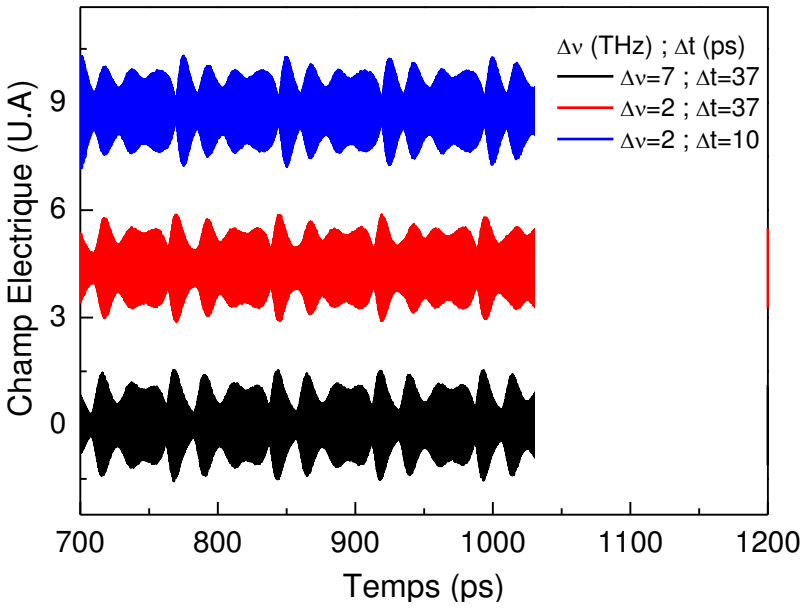


FIGURE 3.32 – Profils simulés du champ électrique pour diverses formes de l'impulsion THz. Courbe noire : la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$ du spectre est choisie égale à 7 THz et le retard de l'écho Δt est fixé à 37 ps. Courbe rouge : $\Delta\nu = 2$ THz et $\Delta t = 37$ ps. Courbe bleue : $\Delta\nu = 2$ THz et $\Delta t = 10$ ps.

Il faut enfin noter que l'émission THz n'est pas totalement synchronisée ici. On constate en effet que dans le régime de densité de courant accessible, la saturation du champ n'est pas marquée à t=335 ps (courbe rouge figure 3.31 b)). La mesure du champ total rayonné (et donc d'une contribution éventuelle de l'émission spontanée) n'est toutefois pas accessible par la méthode décrite dans la section 3.4.2 [7].

7. En effet, la détection de l'enveloppe de l'intensité totale émise par le LCQ (initiée par l'émission spontanée et/ou le seed) nécessite une modulation symétrique en tension de la source de l'impulsion THz (voir annexe C.3). Cette modulation ne peut être faite sur la facette car elle entraîne une modification périodique les propriétés du gain de la grande section.

3.5.4 Perspectives

La génération intra-cavité est une approche permettant le contrôle de phase pour un LCQ [19]. Elle présente le grand avantage de ne plus nécessiter l'usage d'une antenne externe. En particulier on s'affranchit expérimentalement des difficultés liées à l'alignement. De plus, elle permet d'envisager une source LCQ cohérente tout-intégrée. Dans ce but, il serait intéressant de réduire le couplage optique entre les deux sections pour pouvoir générer un seed plus intense et maximiser l'efficacité du contrôle de phase.

D'autres solutions ont été envisagées pour améliorer le couplage. L'extension spatiale du mode THz du LCQ est donnée par les propriétés du guide d'onde. Dans le cas des guides simple plasmon, une proportion forte du mode se propage dans le substrat de GaAs du laser. Ce n'est pas le cas pour les guides d'onde double-métal, ce qui rend le couplage bien plus difficile. En effet, une dimension typique de l'ouverture correspond à 10 μm soit un dixième de la longueur d'onde en espace libre à 3 THz. Une solution naturelle envisagée est de modifier la forme du guide d'onde pour changer les propriétés spatiales du mode THz. Plusieurs travaux ont été menés dans ce sens, pour modifier les propriétés d'émission du laser: cristaux photoniques [109], réseaux haut-ordre [110], structuration du substrat [111]. Ces différentes techniques sont sélectives en fréquence: elles ne sont ainsi pas particulièrement appropriées pour le couplage d'une impulsion THz externe large-bande. L'usage d'antennes cornets peut s'avérer pertinent pour ce type d'applications [112, 113]. Ces dispositifs sont couramment utilisés dans le domaine micro-ondes pour faciliter la transmission d'une onde d'un système guidé vers une ouverture large. Cependant, l'intégration de ces antennes sur les LCQs est délicate.

Une autre alternative proposée consiste à graver le ruban de métal supérieur de la cavité laser afin de réduire progressivement le confinement du mode plasmon en s'approchant de l'extrémité du ruban laser. De manière analogue à l'usage d'antennes cornet, la gravure permet d'introduire une adaptation d'impédance progressive entre le LCQ et l'espace libre.

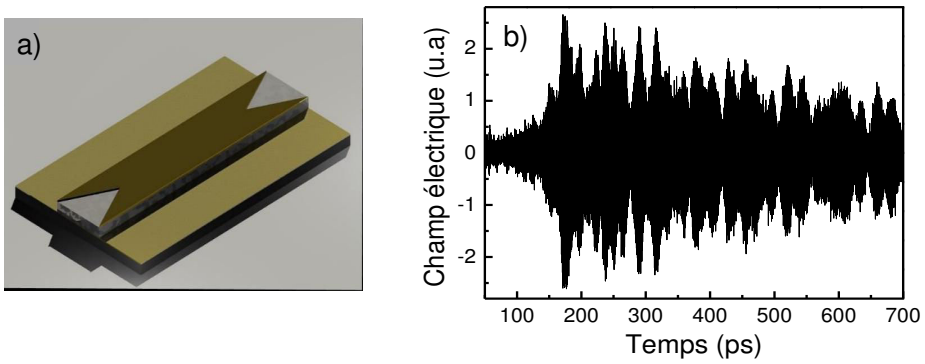


FIGURE 3.33 – a) Vue d'un laser à cascade quantique dont le rubam métallique supérieur a été gravé. Les gravures, en forme de V, permettent une meilleure adaptation d'impédance de l'onde THz de l'espace libre au mode confiné dans le laser. b) Profil typique du champ électrique émis par le laser détecté en temps.

Une étude a porté, au sein de l'équipe sur un laser $GaAs/Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ bound-to-continuum émettant à 2.9 THz, de largeur 80 μm et longueur de cavité 3 mm. Les gravures effectuées par faisceau ionique focalisé (FIB) permettent de retirer une partie de la couche de métal supérieure sur une longueur maximale de 250 μm (voir fig.3.33 a)). Cette technique est un atout pour coupler efficacement les impulsions THz photoconductrices avec des cavités métal-métal. En particulier, elle a permis la démonstration de la détection cohérente de l'émission d'un LCQ métal-métal [106] (voir fig.3.33 b)). L'introduction des gravures a toutefois une influence forte sur le champ lointain et une étude est actuellement menée pour étudier ces effets.

3.6 Conclusion

Le dispositif d'injection seeding appliqué aux LCQs permet d'avoir un contrôle sur les propriétés d'émission du laser. En effet, les impulsions THz de l'antenne photoconductrice injectées dans la cavité du LCQ se substituent à l'émission spontanée pour initier le rayonnement laser. La propriété de synchronisation des impulsions THz avec les impulsions fs est transférée au champ THz rayonné par le LCQ. On peut ainsi contrôler la phase du champ laser, ce qui permet sa détection par échantillonnage électro-optique [17].

Nous avons montré que la mesure du profil temporel du champ laser donne de nombreuses informations sur les propriétés du gain du laser. En particulier, il est possible de mesurer le profil du gain non saturé et d'étudier son évolution vers la saturation. Cette mesure constitue également une méthode originale pour accéder au temps de recouvrement du gain, difficile à mesurer. Cette estimation, d'environ 15 ps [20], est très intéressante car la dynamique du gain dicte les propriétés de l'émission laser. De plus, nous avons développé un outil qui permet de quantifier précisément la qualité de l'injection [18]. Ce travail ouvre la possibilité de l'usage des LCQs THz comme source de rayonnement dans un montage de spectroscopie dans le domaine temporel. Dans ce but, la proposition d'effectuer la génération du seed directement dans le LCQ via l'excitation fs est intéressante [19]. Elle permet en effet d'avoir un dispositif tout-intégré en supprimant la nécessité de l'antenne et rend plus simple la mise en oeuvre de la synchronisation du rayonnement du LCQ. Des études sont actuellement menées pour contrôler la phase de lasers à guide métal-métal, fonctionnant à plus haute température [106].

4

Émission de LCQs en régime de blocage de modes

Le blocage de modes (modelocking en anglais) est une technique appliquée aux lasers qui permet de générer des impulsions ultracourtes [27, 114] (femtoseconde, picoseconde). L'idée conceptuelle du blocage de modes consiste à bloquer la phase des différents modes longitudinaux de la cavité d'un laser. L'interférence constructive des modes qui en résulte à intervalle de temps régulier (temps d'aller-retour de la cavité) se manifeste par la génération d'impulsions de durée d'autant plus courte et d'intensité crête d'autant plus forte que le nombre de modes impliqués est important. Pour arriver à ce but, différentes techniques, passives ou actives, visent à exalter le maximum de modes de cavité et à verrouiller leurs phases respectives.

L'essor des lasers en régime de blocage de modes a abouti à un nombre considérable d'applications et a conduit à de nouvelles thématiques de recherche. L'intérêt de ces lasers s'explique pour l'essentiel par l'utilisation séparée ou combinée de deux propriétés fondamentales des impulsions en régime de blocage de modes: la brièveté des impulsions émises et les intensités crêtes très élevées qui peuvent être obtenues. Les applications couvrent des domaines aussi variés que le micro-usinage de surface, la chirurgie de la cornée [115] ou encore le transfert de données par fibres optiques. Dans ce dernier exemple, l'usage de diode lasers en régime de blocage de modes permet d'atteindre des taux de répétition des impulsions très élevés (jusqu'à 1 THz [116]), important pour la transmission de données à haut débit. Plus proche de notre domaine, les impulsions en régime de blocage de mode, comme celles émises par les lasers Ti:Sa dans le domaine proche IR (environ 700 à 1000 nm), sont à la base de nombreux mécanismes permettant la génération de rayonnement THz (voir chap.1 ou référence [1]). Il est donc d'un enjeu crucial de développer les performances de lasers en régime impulsionnel dans différents domaines de fréquence, dont la gamme THz.

Le développement du régime de blocage de modes en est à ses balbutiements pour les LCQs avec très peu d'études jusqu'ici. Il rencontre deux difficultés spécifiques. Tout d'abord, la dynamique du gain n'est pas très favorable à la génération d'impulsions courtes. Ceci est particulièrement vrai dans la gamme du moyen IR où le temps de

recouvrement du gain T_1 est très rapide (de l'ordre de 1 ps [100]) ce qui rend difficile la génération d'impulsions courtes et stables. La première démonstration en 2009 [61] pour les LCQs s'est appuyée sur une modification du dessin d'un laser émettant à 6.3 μm pour accroître T_1. Dans la gamme THz, le temps de recouvrement du gain (de l'ordre de la dizaine de ps [20, 101]), plus élevé est plus favorable à la génération d'impulsions courtes. Les techniques pour parvenir au blocage de modes s'appuient ici sur l'usage d'une modulation du gain [21, 22]. Nous verrons que cette modulation conduit, sous certaines conditions imposées par la dynamique du gain, à la génération d'impulsions courtes de largeur à mi-hauteur 15 ps.
L'autre obstacle à la génération d'impulsions courtes par les LCQs est la grande difficulté à caractériser le profil temporel d'éventuelles impulsions émises. En effet, les méthodes puissantes de caractérisation d'impulsions optiques [117] basées sur l'autocorrélation du second ordre se sont jusqu'ici révélées inefficaces dans la gamme THz. S. Barbieri et collaborateurs ont démontré en 2011 le blocage de modes pour les LCQs THz [21] avec une méthode d'échantillonnage électro-optique asynchrone de résolution 2 ps $\sim$ 6 oscillations THz (sous-échantillonnage). Nous présentons ici une technique basée sur l'injection seeding qui nous a permis de reconstruire complètement le champ électrique d'un train d'impulsions en régime de blocage de mode émis par un LCQ THz [23].

Dans la section **4.1** est abordé le principe et les divers mécanismes permettant l'obtention d'impulsions ultracourtes. L'état de l'art pour les LCQs est par ailleurs effectué à l'appui de leurs spécificités en terme de dynamique. Nous détaillons ensuite la technique utilisée ici pour favoriser la génération d'impulsions courtes (section **4.2**). Elle repose sur une modulation sinusoïdale du courant pilote du LCQ à la fréquence d'aller-retour de la cavité F_{rt}. L'étude et la caractérisation de l'effet de la modulation sont abordés dans les sections **4.3** et **4.4**. Dans le même temps, nous exploitons l'échantillonnage électro-optique pour une étude temporelle. Dans la section **4.3**, l'enveloppe de l'intensité THz rayonnée par le LCQ est étudiée en fonction des différents paramètres du courant pilote: la puissance et la fréquence de la modulation de courant ainsi que le point de fonctionnement du LCQ. La largeur des impulsions courtes dépend de la distribution d'amplitude et de phase des différents modes Fabry-Pérot impliqués. Étant donnée une distribution d'amplitude, les impulsions les plus courtes possibles sont obtenues lorsque tous les modes ont la même phase. Nous démontrons qu'il est possible d'accéder à ce régime (impulsions "transformée de Fourier"). Dans la section **4.4** est enfin mis en avant l'intérêt de l'injection seeding qui permet de contrôler la phase de l'émission THz mais également de reconstruire complètement le champ des impulsions THz rayonnées par le LCQ.

Sommaire

4.1 Lasers en régime de blocage de modes 91
4.1.1 Impulsions ultracourtes: domaine temporel vs fréquentiel . . 91
4.1.2 Obtention du verrouillage des modes 93
4.1.3 Lasers à cascade moyen infrarouge et THz 95
4.2 Modulation d'amplitude en courant 96
4.2.1 Courant pilote 96
4.2.2 Choix de la fréquence de modulation 100
4.2.3 Dispositif expérimental: modulation et détection de l'émission 104
4.3 Enveloppe de l'émission laser 106
4.3.1 Lasers étudiés 106
4.3.2 Génération d'impulsions courtes 108
4.3.3 Influence du point de fonctionnement 110
4.3.4 Interprétation 115
4.4 Des impulsions contrôlées en phase 116
4.4.1 Profil de l'émission avec/sans impulsion THz externe 116
4.4.2 Caractérisation complète d'impulsions bloquées en phase . . . 118
4.4.3 Influence de la fréquence de modulation 123
4.4.4 Intérêt pour la caractérisation d'impulsions courtes 126
4.5 Conclusion 127

4.1 Lasers en régime de blocage de modes

4.1.1 Impulsions ultracourtes: domaine temporel vs fréquentiel

Dans le cas d'une émission laser en régime pulsé, les impulsions les plus courtes possibles sont obtenues en exploitant le concept de "blocage de modes" ("modelocking" en anglais). Initialement suggéré en 1964 par W.E Lamb Jr [118], le blocage de modes correspond à un verrouillage des phases des différents modes longitudinaux de cavité sur laquelle l'émission laser existe simultanément.

Les deux facettes d'un LCQ en forme de ruban définissent une cavité Fabry-Pérot. Les fréquences de résonance de la cavité f_k sont données par les conditions aux limites de sorte que :

$$f_k = f_0 \pm k\frac{c}{2nL}$$

avec c célérité de la lumière dans le vide, n indice du milieu, L longueur de cavité et k nombre entier. $F_{rt} = \frac{c}{2nL}$ définit ainsi l'intervalle de fréquence entre deux modes successifs k et $k+1$.
Les modes laser Fabry-Pérot correspondent aux ondes de fréquence f_k amplifiées par le milieu à gain (figure 4.1). Si le milieu amplificateur est caractérisé par une fréquence centrale f_0 associée à une bande passante $\Delta f_{ampli} \sim NF_{rt}$ (où N entier pair) alors les modes laser sont tels que $k \in \left[-\frac{N}{2}; \frac{N}{2}\right]$.

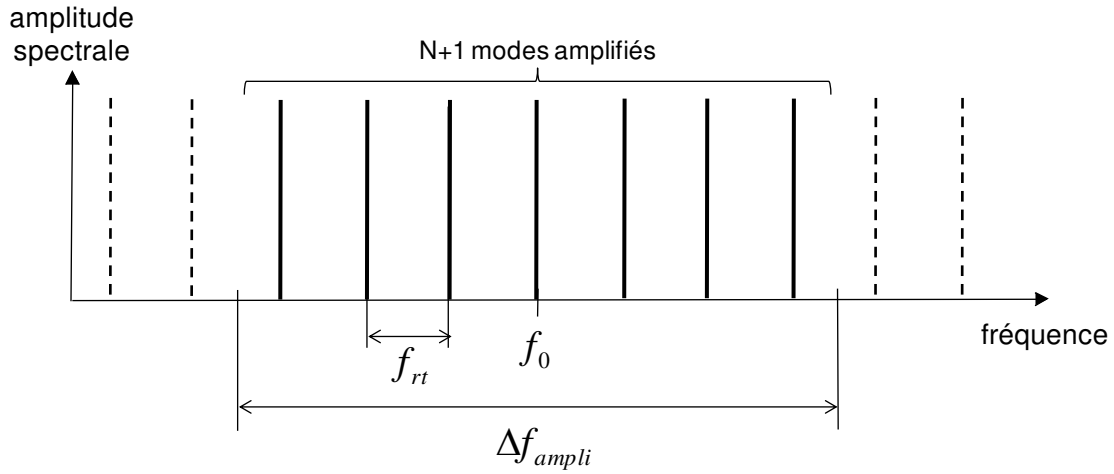


FIGURE 4.1 – Modes longitudinaux d'une cavité Fabry-Pérot. Seuls les modes longitudinaux dans la bande passante du LCQ peuvent être amplifiées (représenté en trait plein).

Le champ électrique $E_k(z,t)$ associé au mode d'indice k s'écrit:

$$E_k(z,t) = a_k(z) \exp\left[i2\pi \left(f_0 + kF_{rt}\right) t\right] \exp\left(i\varphi_k\right) \tag{4.1}$$

Le champ électrique $E_{\text{total}}(z,t)$ rayonné par le laser correspond à la superposition des champs électriques associés à chacun des modes (voir référence [114]):

$$E_{\text{total}}(z,t) = \sum_{k=-\frac{N}{2}}^{k=+\frac{N}{2}} E_k(z,t)$$

$$E_{\text{total}}(z,t) = \exp\left(i2\pi f_0 t\right) \sum_{k=-\frac{N}{2}}^{k=+\frac{N}{2}} a_k(z) \exp\left(i2\pi k F_{rt} t\right) \exp\left(i\varphi_k\right) \tag{4.2}$$

En général, les phases φ_k associées à chacun des modes sont aléatoires et évoluent dans le temps. Si les phases associées à chaque mode sont constantes dans le temps, alors le profil temporel est marqué par une structure pulsée. Les impulsions les plus courtes possibles sont obtenues lorsque la phase $\varphi_k = \varphi_0$ est constante dans le temps et fixe d'un mode à l'autre (indépendante du mode k). On parle alors d'impulsions limitées par transformée de Fourier. En un point spatial $z = z_0$ pour lequel $a_k(z = z_0) = E_0$ (condition remplie si tous les modes ont la même amplitude maximale et que leurs ventres coïncident en $z = z_0$), la somme 4.2 se calcule aisément [114]:

$$E_{\text{total}}(z,t) = E_0 \frac{\sin\left(\ (N+1)\pi F_{rt} t\ \right)}{\sin\left(\pi F_{rt} t\right)} \exp\left(i2\pi f_0 t\right) \tag{4.3}$$

Cette expression correspond à une onde sinusoïdale de fréquence f_0, dont l'amplitude est modulée au cours du temps par le battement des $N+1$ modes amplifiés. Le module

du champ total est une fonction d'Airy, représentée sur la figure 4.2. Les impulsions sont répétées avec une période égale à $T_c = \frac{2nL}{c}$, temps d'aller-retour de la cavité. On note que l'intensité maximale d'une impulsion est N+1 fois plus forte que l'intensité maximale obtenue pour une distribution de phase aléatoire associée aux différents modes.

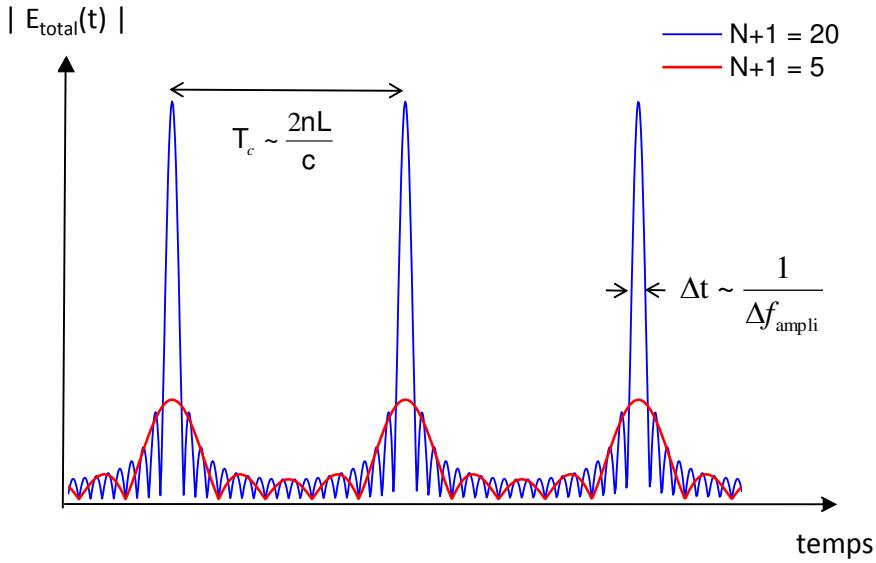


FIGURE 4.2 – Profil temporel du module du champ électrique pour des modes bloqués sur une même phase. Ce profil correspond à l'enveloppe des impulsions émises avec : 5 modes de même amplitude spectrale (en rouge) ; 20 modes de même amplitude spectrale (en bleu).

Dans une situation réelle la dispersion du milieu à gain introduit un écart à la fonction d'Airy, responsable d'un élargissement des impulsions formées ("chirp", voir [27]).

4.1.2 Obtention du verrouillage des modes

Divers procédés existent pour bloquer de manière efficace les modes sur une même phase. Le blocage de mode passif s'appuie sur l'insertion dans la cavité d'un élément non-linéaire qui favorise la propagation d'impulsions courtes au détriment d'une émission continue. Le blocage de mode actif repose sur une modulation externe du gain/des pertes de la cavité à la fréquence d'aller-retour.

La méthode la plus commune de verrouillage passif exploite le phénomène de saturation d'absorption des milieux absorbants [90,119]. Certains matériaux exposés à de très fortes intensités lumineuses peuvent se révéler quasi-transparent. L'intensité crête résultant des $N+1$ modes évoqués précédemment est $N+1$ fois plus forte quand ils ont tous la même phase que lorsqu'ils ont une distribution de phase aléatoire. L'absorbant saturable peut ainsi être exploité pour absorber très fortement un rayonnement continu tout en étant quasi-transparent à des impulsions de forte intensité. Cette propriété est très utilisée pour le blocage de modes de lasers semiconducteurs via par exemple un

Miroir Absorbant Saturable SEmiconducteur (SESAM) [120]. Un autre type de verrouillage passif consiste à exploiter la non-linéarité de l'indice de réfraction du cristal amplificateur. C'est le blocage de mode par lentille de Kerr [114] . Cette technique est communément utilisée pour les lasers Ti:Sa et permet de produire les impulsions les plus courtes possibles de durée inférieure à 10 fs [30].

Le blocage de mode actif [90] peut être obtenu par une modulation d'amplitude qui consiste à changer périodiquement l'amplitude du champ électrique émis par le laser. C'est cette méthode que nous allons utiliser par la suite. Si le laser émet à une fréquence f_0 et que son champ est exposé à une modulation F_m alors le champ modulé s'écrit :

$$E_{\text{total}}(t) = \sin(2\pi f_0 t)\sin(2\pi F_m t) \tag{4.4}$$

D'un point de vue fréquentiel, la modulation équivaut à la génération des fréquences décalées $f_0 - F_m$ et $f_0 + F_m$. Si F_m est proche de F_{rt} ces nouvelles fréquences correspondent aux modes longitudinaux voisins qui sont ainsi excités et synchronisés. Ainsi plus F_m est proche de F_{rt}, plus le mécanisme est efficace. La modulation permet de générer ainsi les fréquences voisines associées à chaque mode de cavité susceptible d'être amplifié par le milieu à gain (voir figure 4.11). La modulation d'amplitude peut être obtenue par exemple en insérant un modulateur acousto-optique dans la cavité [121]. Une modulation périodique de la phase, dite modulation de fréquence peut également être effectuée, via par exemple une cellule de Pockels [27].

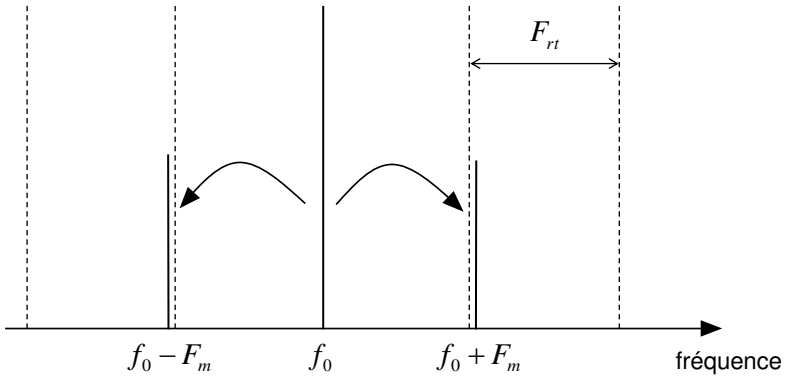


FIGURE 4.3 – Blocage de mode dans le domaine fréquentiel. La modulation redistribue l'énergie du mode de fréquence f_0 aux fréquences $f_0 - F_m$ et $f_0 + F_m$. Le processus est efficace si F_m proche de F_{rt}, ce qui permet de synchroniser les modes voisins (en traits tiretés).

On peut noter enfin que les méthodes passive et active sont parfois combinées pour certains lasers semiconducteurs [122]. Un absorbant saturable est modulé électriquement ce qui peut améliorer la qualité des impulsions. On parle alors de blocage de modes hybride.

4.1.3 Lasers à cascade moyen infrarouge et THz

Pour les LCQs, la dynamique du gain très rapide a une influence très forte sur la possibilité de générer des impulsions en régime de blocage de modes. En effet, la formation d'impulsions stables impose que le temps de recouvrement du gain T_1 soit du même ordre de grandeur que le temps d'aller-retour de la cavité T_c. La propagation d'une impulsion dans la cavité diminue localement le gain accessible. Si T_1 est très petit devant T_c, le gain recouvre localement suffisamment rapidement sa valeur d'équilibre pour amplifier les queues de l'impulsion. Ainsi, l'impulsion s'allonge en temps et n'est pas stable. Si T_1 est très supérieur à T_c, la formation d'impulsions stables n'est pas possible non plus [91]. Pour les LCQs de longueur 2-3 mm, T_c est de l'ordre de 50 ps. Dans le domaine moyen IR, $T_1 \sim 1$ ps [100] est dominé par la relaxation non-radiative par phonon longitudinal optique (phonon LO), extrêmement efficace. Dans la gamme THz, l'énergie de la transition radiative est plus petite que l'énergie d'un phonon LO (~ 36 meV), et le temps de recouvrement du gain de l'ordre de la dizaine de ps [20, 101] est donc plus influé par les processus de diffusion élastiques [15, 64] (rugosité d'interface ou encore diffusion par les impuretés). La valeur du temps de recouvrement du gain est donc plus favorable à la génération d'impulsions courtes à partir des LCQs THz qu'avec les LCQs du moyen-IR.
De plus, la dynamique du gain très rapide pour ces lasers n'est pas favorable à l'usage de techniques passives [123]. En revanche, une modulation active du gain de LCQs peut être effectuée jusqu'à des fréquences élevées (reporté jusqu'à 35 GHz dans [124]) sans observer d'oscillations de relaxation parasites [27]. Nous utilisons donc par la suite une modulation de gain via la modulation du courant électrique injecté dans le LCQ. Nous verrons que cette modulation permet de générer des impulsions THz en régime de blocage de modes [22] (voir section **4.3**).

Plusieurs travaux, à partir des années 2000, traitent de l'observation et de l'analyse des régimes multimodes pour les LCQs [125–127]. La première démonstration d'une modulation d'amplitude efficace appliquée à un LCQ a été effectuée en 2000 [128]. La modulation est appliquée directement sur le courant de pompe d'un laser émettant à 8 μm (moyen infrarouge). Lorsque la fréquence de modulation F_m est approchée de la fréquence d'aller-retour de la cavité de F_{rt}=11.65 GHz, le spectre d'émission à 10 K du laser devient très fortement multimode. Toutefois, ces mesures ont été interprétées, à tort, comme la preuve de l'émission d'impulsions en régime de blocage de modes. Le profil temporel observé a finalement été expliqué par des effets d'instabilités cohérentes [95, 129]. En fait, le problème est qu'il est très difficile de caractériser en temps des impulsions courtes dans les domaines IR et THz. Cette caractérisation est pourtant indispensable: pour un profil d'amplitude spectrale donné, le profil temporel peut être très différent en fonction de la phase relative des différents modes. En optique, on utilise des techniques standards puissantes d'autocorrélation pour mesurer des impulsions ultracourtes [117]. Ces techniques sont difficilement applicables dans le moyen IR et la gamme THz à cause notamment de la faible énergie des impulsions mises en jeu et de la faible efficacité du processus de conversion d'ordre deux sur lequel s'appuie la caractérisation [13]. L'essor des techniques d'autocorrélation combinées à des photodétecteurs infrarouge à puits quantiques (QWIP) basés sur une absorption à deux photons, très

sensibles dans la gamme moyen IR, a permis de franchir cet obstacle [13, 130] pour le moyen infrarouge. Le régime de blocage de mode a finalement été obtenu en 2009 [61] et caractérisé de manière univoque pour un laser moyen infrarouge émettant un train d'impulsions de largeur à mi-hauteur de 3 ps. Le dessin du laser utilisé dans [61] a de plus été précisément élaboré pour accroître T_1, via une transition radiative très diagonale.

En 2011, le premier LCQ THz émettant en régime de blocage de modes a été démontré [21]. Une modulation de courant GHz est appliquée sur un LCQ émettant à 2.5 THz. La détection s'appuie sur un échantillonnage électro-optique asynchrone [131] qui a permis de caractériser en temps des impulsions THz d'une largeur de l'ordre de 10 ps. Cette technique consiste à utiliser un faisceau IR sonde dont la fréquence de répétition est très légèrement décalée par rapport à celle de la source THz pulsée. Ainsi, les impulsions IR échantillonnent progressivement les impulsions THz. La méthode proposée dans la référence [21] permet de caractériser la forme des impulsions émises mais par leur structure précise. La résolution obtenue est de 2.3 ps pour une période de l'oscillation laser de 400 fs (LCQ émettant à 2.5 THz) et correspond donc à un régime de sous échantillonnage. La méthode de détection que nous utilisons permet de reconstruire totalement le champ électrique d'impulsions bloquées en phase émises par des LCQs THz [23] avec une résolution typique de 50 fs. Pour cela, nous utilisons l'injection seeding (décrit dans le chap.**3**). L'injection d'impulsions THz de l'antenne dans la cavité du LCQ permet de contrôler la phase du champ émis. De plus, elle rend possible l'échantillonnage du champ électrique THz via la détection électro-optique (voir section **4.4**).

4.2 Modulation d'amplitude en courant

L'obtention d'impulsions courtes s'appuie dans notre travail sur une modulation d'amplitude sinusoïdale du courant injecté dans le LCQ. Nous avons vu que la fréquence de modulation F_m doit être la plus proche possible de la fréquence d'aller-retour de la cavité F_{rt} pour que la génération d'impulsions soit favorisée (section **4.2.1**). La fréquence F_m se situe donc dans la gamme GHz (pour un LCQ de longueur de cavité 3 mm, F_m est proche de 13 GHz).
De plus, notre montage expérimental permet de mesurer le profil temporel de l'émission d'un LCQ via l'injection seeding et peut donc être mis à profit pour caractériser des impulsions THz émises. Pour cela, il est indispensable que la modulation d'amplitude soit synchronisée avec les impulsions fs, pour permettre l'échantillonnage électro-optique.

4.2.1 Courant pilote

Pour générer une modulation de courant dans la gamme GHz et synchronisée avec les impulsions fs, on procède de la manière suivante. Une fraction faible (de l'ordre du mW) du faisceau IR dédié à l'échantillonnage électro-optique est prélevée à l'aide d'un séparateur de faisceau, puis collectée à l'aide d'un photodétecteur ultrarapide (photodétecteur métal-semiconducteur-métal) comme on peut le voir sur la figure 4.4. La rapidité de la réponse du photodétecteur de l'ordre de quelques dizaines de ps, lui assure une bande passante large de plusieurs dizaines de GHz. Le photodétecteur collecte une impulsion

optique toute les 13.06 ns. Ainsi, le signal électronique immédiatement après le photodétecteur correspond à un train d'impulsions séparées de 13.06 ns. Dans le domaine fréquentiel, le signal électronique est donc marqué par la répétition de raies spectrales espacées de $1/13.06 = 76.6$ MHz. Le profil spectral correspond donc à un peigne de fréquences qui s'étend jusqu'à environ 20 GHz. Sur la figure 4.5 a) est représentée le signal collecté immédiatement en aval du photodétecteur à l'aide d'un analyseur de spectre. La fenêtre spectrale observée s'étend sur 1000 MHz (de 12.50 GHz à 13.50 GHz). On observe donc $1000/76.6 \sim 13$ raies spectrales séparées de 76.6 MHz.

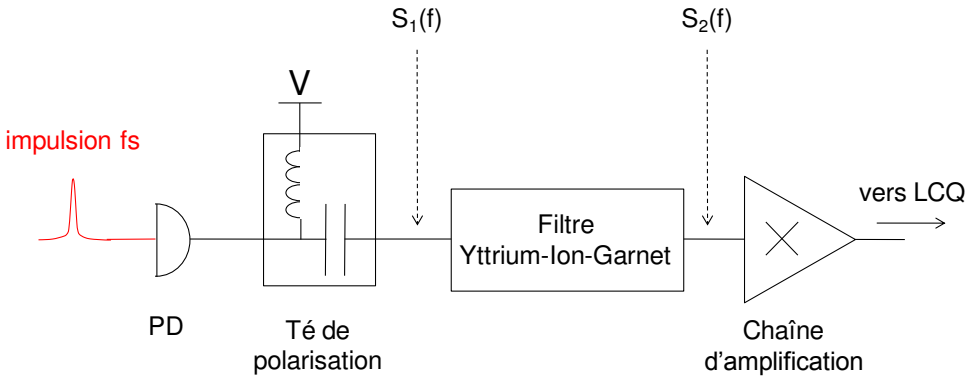


FIGURE 4.4 – Schéma de principe pour la production de la modulation d'amplitude. Les impulsions infrarouge sont collectées pas le photodétecteur (PD) qui nécessite l'application d'une tension continue V pour le piloter. Le signal électronique résultant est envoyé vers un filtre accordable Yittrium-Iron-Garnet (fréquence de résonance accordable entre 2 et 26.5 GHz - bande passante de 30 MHz) puis amplifié à l'aide d'une chaîne d'amplificateurs de puissance. Le signal amplifié est enfin dirigé vers le LCQ. La puissance spectrale peut être mesurée en divers points du circuit ($S_1(f)$, $S_2(f)$) à l'aide d'un coupleur directionnel et d'un analyseur de spectre.

Les différents éléments électroniques ajoutés à la suite du phototodétecteur visent à sélectionner une des raies spectrales du peigne et à l'amplifier pour s'assurer d'une modulation à la fois sinusoïdale et synchronisée. Le filtrage est fait avec un filtre Yttrium-Iron-Garnet [132]. Ce filtre a une bande-passante étroite de 30 MHz ce qui permet de sélectionner une raie unique du peigne de fréquences et ainsi d'obtenir une modulation sinusoïdale. L'avantage de ce filtre est son accordabilité. En effet, la fréquence de résonance micro-ondes du cristal Yttrium-Iron-Garnet peut être continument pilotée entre 2 et 26.5 GHz à l'aide du champ magnétique d'un électroaimant associé au filtre. Sur la figure 4.5 b) est représentée une raie spectrale sélectionnée par le filtre. Chaque raie est une harmonique de la fréquence fondamentale F_{fs}=76.54 MHz associée au taux de répétition des impulsions fs du laser Ti:Sa. Par exemple la raie sélectionnée ici a une fréquence de 13.01 GHz qui correspond à la 170ème harmonique de F_{fs}. Dans le domaine temporelle, cette raie spectrale correspond à une sinusoïde dont la période est un multiple entier de l'intervalle de temps entre deux impulsions fs successives. Ainsi, on assure la synchronisation entre la modulation de courant et les impulsions fs. La largeur

de cette raie en fréquence est d'environ 1200 Hz et reflète le bruit en fréquence du laser Ti:Sa: elle correspond à une amplitude de variation temporelle d'environ 5 ps de la période des impulsions fs de 13.06 ns [133]. A l'issue de la chaîne d'amplification, nous disposons finalement d'une modulation sinusoïdale, synchronisée avec les impulsions fs dont la puissance maximale obtenue à 13 GHz est d'environ 30 dBm. La fréquence peut être ajustée entre 6 et 15 GHz par pas de 76.54 MHz [1].

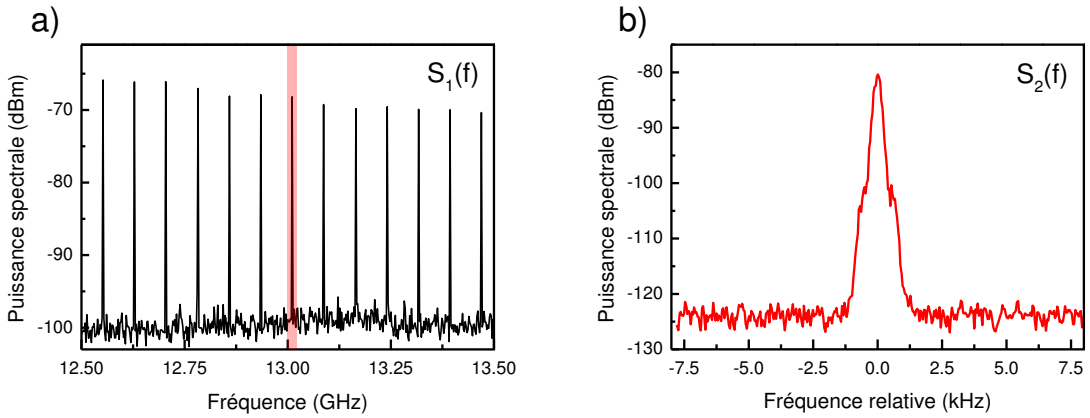


FIGURE 4.5 – Puissance spectrale du signal GHz mesurée en différents points du circuit électronique. a) Signal collecté au point S_1, à l'issu du photodétecteur (avec une résolution en fréquence de 100 kHz). b) Signal collecté au point S_2, à la fin du montage avec une résolution en fréquence de 30 Hz, correspondant à la raie centrée proche de 13 GHz (surlignée en rouge sur le panel a)). La largeur de la raie n'est pas limitée par la résolution de l'analyseur de spectre.

La modulation d'amplitude GHz est ajoutée au courant quasi-DC (figure 4.6). Les impulsions RF de commutation du gain peuvent éventuellement être ajoutées au courant pilote (voir section **3.1.2**). Le cas échéant, elles permettent d'exploiter l'injection seeding pour la mesure du champ THz. Ceci permet la caractérisation complète des impulsions émises (section 4.4). L'usage d'un duplexeur permet de réunir les composantes de courant de différentes fréquences (quasi-DC, modulation d'amplitude GHz et impulsions RF de durée ns). A l'issu du duplexeur, le signal électronique est dirigé vers le LCQ situé à l'extrémité du doigt froid. L'adaptation entre le cablâge et les microfils de contact du LCQ se fait à l'aide d'un guide d'onde coplanaire (représenté sur la figure 3.4). Un coupleur directionnel est ajouté avant le cryostat [2]. Il permet soit de mesurer le signal incident sur le LCQ (en prélevant une fraction du courant atténuée de 10 dB dirigée vers un analyseur de spectre) soit de mesurer le signal provenant du LCQ (configuration représenté sur la figure 4.6).

1. Il est en fait possible d'avoir un contrôle encore plus précis sur la fréquence de modulation en changeant légèrement la longueur de cavité du laser Ti:Sa.

2. Les flèches représentent le chemin pris par un signal électrique incident sur le LCQ ou issu du LCQ.

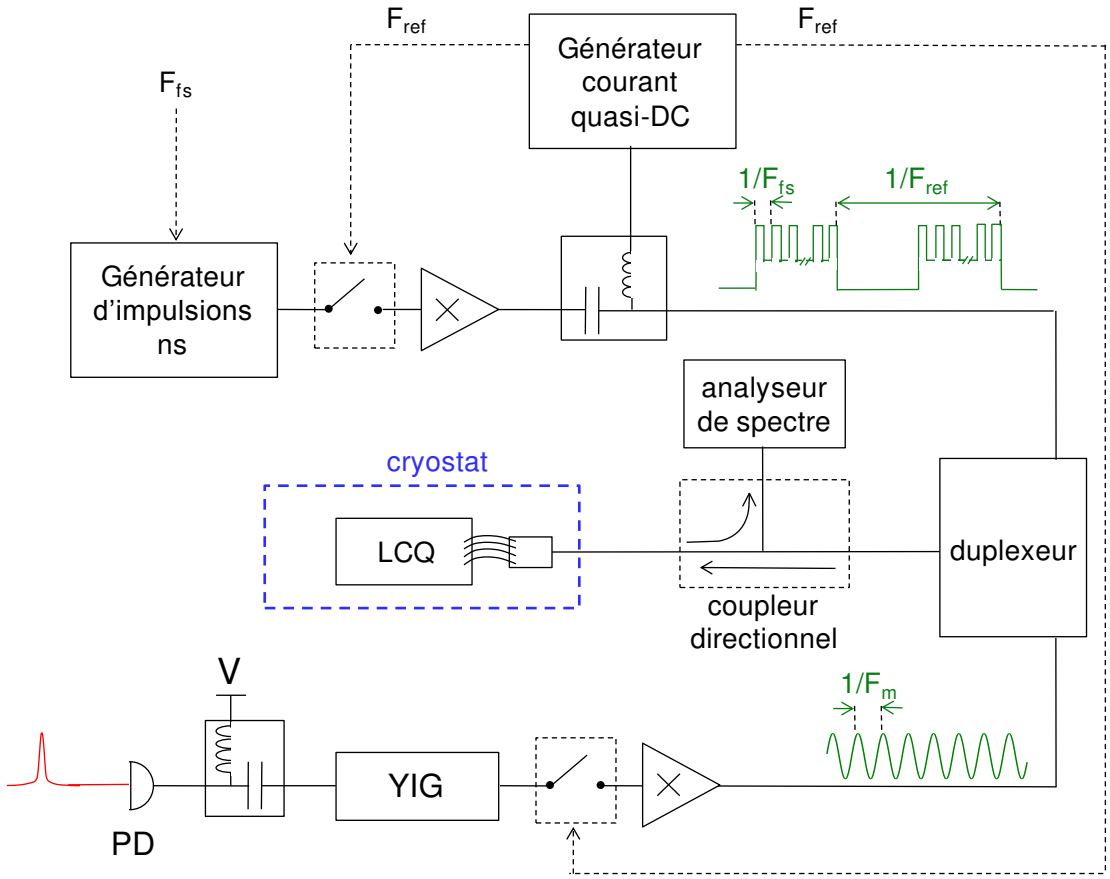


FIGURE 4.6 – Montage électronique pour le contrôle de courant du LCQ. Le courant global est composé de la modulation d'amplitude de période $1/F_m \sim 70$ ps ; du courant quasi-DC de période $1/F_{ref} \sim 100$ μs ; des impulsions ns de commutation du gain de période $1/F_{fs} \sim 13.06$ ns. Les impulsions ns et la modulation d'amplitude sont synchronisées avec les impulsions fs. Chacune des composantes de courant peut être indépendamment allumée ou non. Les interrupteurs permettent de moduler à la fréquence F_{ref} les signaux issus du générateur d'impulsions ns et du filtre YIG. F_{ref} est la fréquence de référence pour la détection synchrone.

En résumé, le courant pilote peut se mettre sous la forme :

$$I(t) = I_{\text{seuil}} \left(p + m \sin\left(2\pi F_m t\right)\right) \tag{4.5}$$

p permet de quantifier la somme des contributions du courant quasi-DC et du courant apporté par les impulsions de commutation du gain, si utilisées. Le nombre m permet quant à lui de quantifier l'amplitude de la modulation GHz. Nous utiliserons par la suite ces notations.

4.2.2 Choix de la fréquence de modulation

Pour que la modulation de courant favorise la génération d'impulsions courtes, il est nécessaire de choisir la fréquence de modulation le plus proche possible de la fréquence d'aller-retour de la cavité. Pour cela, il faut connaître F_{rt}. Nous présentons ici une méthode qui permet de mesurer expérimentalement de manière très précise cette grandeur. F_{rt} est en fait un paramètre fluctuant car sensible à la densité de courant injectée ou encore à la température. Cependant, nous montrons qu'il n'est pas nécessaire d'ajuster finement la fréquence de modulation F_m. En effet, lorsque F_m est suffisamment proche de F_{rt}, cette dernière est verrouillée. C'est le phénomène de blocage par injection qui découle de la synchronisation mutuelle de propriétés de fréquences de deux oscillateurs couplés (décrit de manière générale dans [27] et plus spécifiquement pour les LCQs dans les références [89, 124]).

Mesure de la fréquence d'aller-retour de la cavité F_{rt}

La fréquence d'aller-retour de la cavité, qui correspond à l'espacement entre les modes Fabry-Pérot du LCQ, peut être mesurée de différentes manières. Si l'émission laser est marquée par la présence de plusieurs modes, une acquisition du spectre permet de mesurer F_{rt}. L'acquisition du spectre peut être faite via l'usage d'un FTIR (résolution de l'ordre de 1 GHz) ou via la mesure du champ laser présentée au chapitre 3 (résolution de 1 GHz pour une fenêtre temporelle de 1 ns) mais ne permet pas d'extraire F_{rt} avec une bonne précision.
Une méthode tout-électronique qui exploite les propriétés non-linéaires du LCQ permet d'obtenir la valeur de F_{rt} avec une bien meilleure précision. En effet, une relation non linéaire lie le courant à la puissance du rayonnement émis. L'existence simultanée de plusieurs modes Fabry-Pérot dans la cavité est ainsi susceptible de conduire à un mélange de fréquences. L'onde résultante de la différence de fréquence entre deux modes Fabry-Pérot voisins est à la fréquence F_{rt} et peut être détectée [124] grâce au montage électronique GHz. Pour cela, nous associons au montage un coupleur directionnel placé en amont du LCQ (figure 4.6). Le coupleur directionnel permet de diriger le signal électrique issu du LCQ vers un analyseur de spectre. La résolution en fréquence de l'instrument peut atteindre 30 Hz.

Les mesures les plus nettes de la fréquence d'aller-retour par cette méthode ont été obtenues pour un laser émettant à 2.05 THz, de longueur de cavité 3.06 mm, issu d'une collaboration avec l'équipe du Prof. David Ritchie de l'Université de Cambridge (croissance V453 donnée en annexe B). Ce laser est associé à un guide métal-métal de géométrie proche de celle d'un guide microruban (microstrip) utilisé couramment dans le domaine des micro-ondes, et se traduit par un meilleur guidage des ondes GHz qu'avec des guides simple plasmon. De plus, l'atténuation des ondes GHz est relativement faible dans les guides métal-métal, estimé à environ 2.5dB/mm à 40 GHz [134].
La caractéristique courant-tension-puissance optique de ce laser et la mesure associée de la fréquence d'aller-retour F_{rt} avec l'analyseur de spectre sont représentées sur la figure 4.7. Le seuil d'émission laser est mesuré à 115 A/cm^2 (fig 4.7-a). Pour une densité de courant de 118 A/cm^2, juste au-dessus du seuil, on ne détecte pas de signal avec l'analyseur de spectre comme on peut le voir sur la figure 4.7-b. Cette absence de

signal détecté est probablement liée à un comportement monomode du laser proche du seuil. Pour une densité de courant de 121 A/cm^2, on observe un pic qui correspond au battement entre les différents modes Fabry-Pérot du laser. La largeur de ce pic est d'environ 20 MHz et pourrait résulter d'effets thermiques. Entre 121 A/cm^2 et 130 A/cm^2, la fréquence d'aller-retour de la cavité évolue de 13.125 GHz à 13.033 GHz. F_{rt} est reliée à la longueur de cavité $L = 3.06$ mm via la relation $F_{rt} = c/2nL$. Pour les densités de courant de 121 et 130 A/cm^2, les indices effectifs associés sont estimés à 3.735 et 3.762 respectivement. Ce changement marqué pourrait résulter de l'existence de différents modes latéraux en fonction de la densité de courant appliquée [83, 135]. Pour résumer, l'usage de l'analyseur de spectre permet de mesurer précisément F_{rt}.

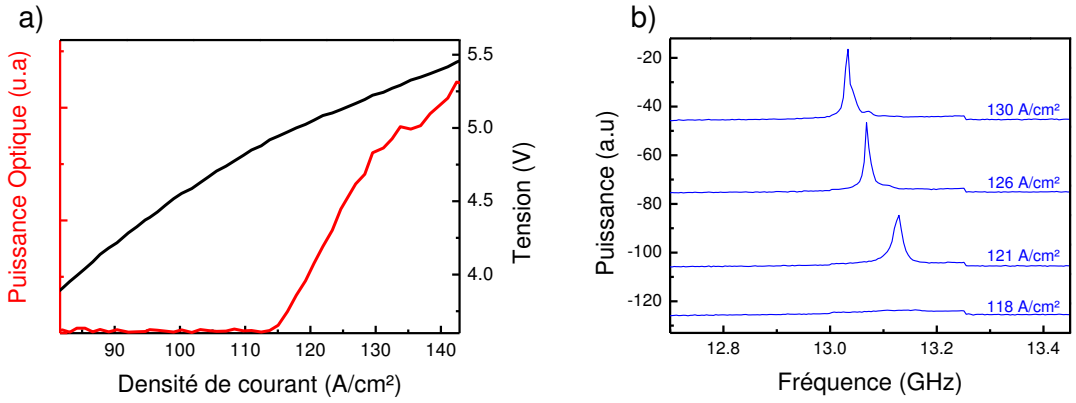


FIGURE 4.7 – a) Caractéristique courant-tension-lumière de l'échantillon V453 à une température de 10 K. b) Acquisition avec l'analyseur de spectre du signal électrique émis par le LCQ en fonction de la densité de courant injectée. Le signal électrique issu du LCQ est redirigé vers l'analyseur de spectre à l'aide d'un coupleur directionnel selon la configuration représentée sur la figure 4.6. La résolution fréquentielle est ici de 2 MHz.

Verrouillage de F_{rt} par la modulation d'amplitude

Il n'est pas nécessaire de stabiliser la valeur de la fréquence de modulation pour suivre les fluctuations de la fréquence d'aller-retour. En effet, nous allons voir qu'il est possible d'imposer directement la valeur de fréquence d'aller-retour de la cavité avec la modulation.

Nous avons représenté sur la figure 4.8-a l'effet de la modulation GHz appliquée au LCQ émettant à 2.05 THz de guide métal-métal. Pour ces mesures, la modulation de puissance -13 dBm est appliquée sur le laser dont le courant quasi-DC est fixé à 131 A/cm^2. La partie de chaque courbe surlignée en rouge correspond à la fréquence de la modulation GHz appliquée. Le pic le plus à droite sur chaque courbe (en bleu) correspond à la fréquence d'aller-retour de la cavité. On observe qu'en décalant progressivement F_m vers F_{rt} à puissance constante, F_{rt} subit un décalage de plus en plus fort. On dit que la fréquence F_{rt} est tirée vers F_m ("pulling" en anglais). Dans le cadre de la théorie du blocage par injection [27, 89], on peut montrer que le décalage en fréquence ΔF de F_{rt}

sous l'effet de la modulation vaut:

$$\Delta F = \sqrt{(F_m - F_0)^2 - (\Delta F_{lock}/2)^2} \tag{4.6}$$

avec F_0 la valeur de la fréquence d'aller-retour de la cavité en l'absence de modulation appliquée. Cette relation est valable lorsque l'écart entre F_{rt} et F_m est supérieur à $\Delta F_{lock}/2$, qui est le domaine de verrouillage. Lorsque l'écart entre F_{rt} et F_m est inférieur à $\Delta F_{lock}/2$, la fréquence F_{rt} est imposée égale à F_m. Cet effet de verrouillage n'est pas directement visible sur la figure 4.8-a. Cependant, on peut voir sur la figure 4.8-b que l'évolution de la valeur de F_{rt} en fonction de F_m suit la relation 4.6. Un bon ajustement des données expérimentales avec l'allure théorique (courbe bleue) est obtenu pour $\Delta F_{lock} = 80$ MHz avec $F_0 = 13.01$ GHz (fréquence d'aller-retour en l'absence de modulation GHz). Le domaine de verrouillage obtenu est donc de 80 MHz (autour de la valeur de la fréquence F_0 sans modulation) pour une puissance injectée de -13 dBm. Sur la figure 4.8-a, on observe que pour $F_m = 12.98$ GHz (séparée de 30 MHz de F_0), la fréquence d'aller-retour de la cavité est confondue avec celle de la modulation GHz. On est dans le régime de blocage par injection.

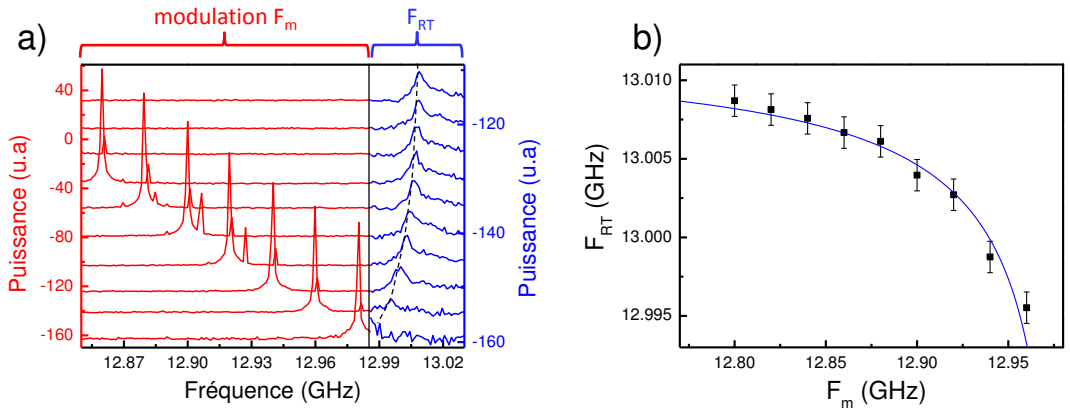


FIGURE 4.8 – Correction de la fréquence d'oscillation du LCQ sous l'effet de la modulation à la fréquence F_m. a) La fréquence de la modulation GHz appliquée (surlignée en rouge) est progressivement décalée de 12.8 (résonance non représentée) à 12.98 GHz par pas de 20 MHz et induit un décalage de la fréquence d'aller-retour de la cavité (courbes bleues), "tirée" vers F_m. b) Fréquence d'aller-retour de la cavité en fonction de la fréquence de la modulation GHz appliquée.

Pour conclure, on constate qu'on peut verrouiller facilement la fréquence d'aller-retour de la cavité du LCQ sur la fréquence de la modulation GHz synchronisée avec les impulsions fs.
Il n'est pas nécessaire de connaître précisément la valeur de la fréquence d'aller-retour de la cavité pour choisir la valeur de la fréquence de modulation. Lorsque ces deux fréquences sont suffisamment proches, l'une (F_{rt}) est verrouillée par l'autre (F_m). De plus, le domaine de verrouillage a une valeur élevée (80 MHz pour une puissance injectée de -13 dBm) qui rend plus facile la condition de blocage. Pour des lasers à guide simple plasmon, les estimations du domaine de verrouillage sont plus petites. Le domaine de

verrouillage pour une puissance de la modulation appliquée de -13 dBm est estimé à environ 12 MHz pour le laser émettant à 2.9 THz (croissance V557 en annexe B) que nous utilisons par la suite. Cependant, la valeur du domaine de verrouillage ΔF_{lock} est proportionnelle à la racine de la puissance de modulation. Pour une puissance très facilement accessible par le montage de 10 dBm injectés, le domaine de verrouillage s'étend alors sur 170 MHz. Cette valeur élevée permet de verrouiller facilement la fréquence d'aller-retour de la cavité. La démarche adoptée par la suite pour le choix de la fréquence de modulation est donc simple. On estime la valeur de la fréquence d'aller-retour de la cavité (avec le spectre ou la relation $F_{rt} = c/2nL$) puis on teste différentes valeurs de la fréquence de modulation par pas de 76.54 MHz de sorte à observer les impulsions les plus nettes possibles.

4.2.3 Dispositif expérimental: modulation et détection de l'émission

Le montage global se décompose en plusieurs parties. Un schéma de principe en est donné sur la figure 4.9.

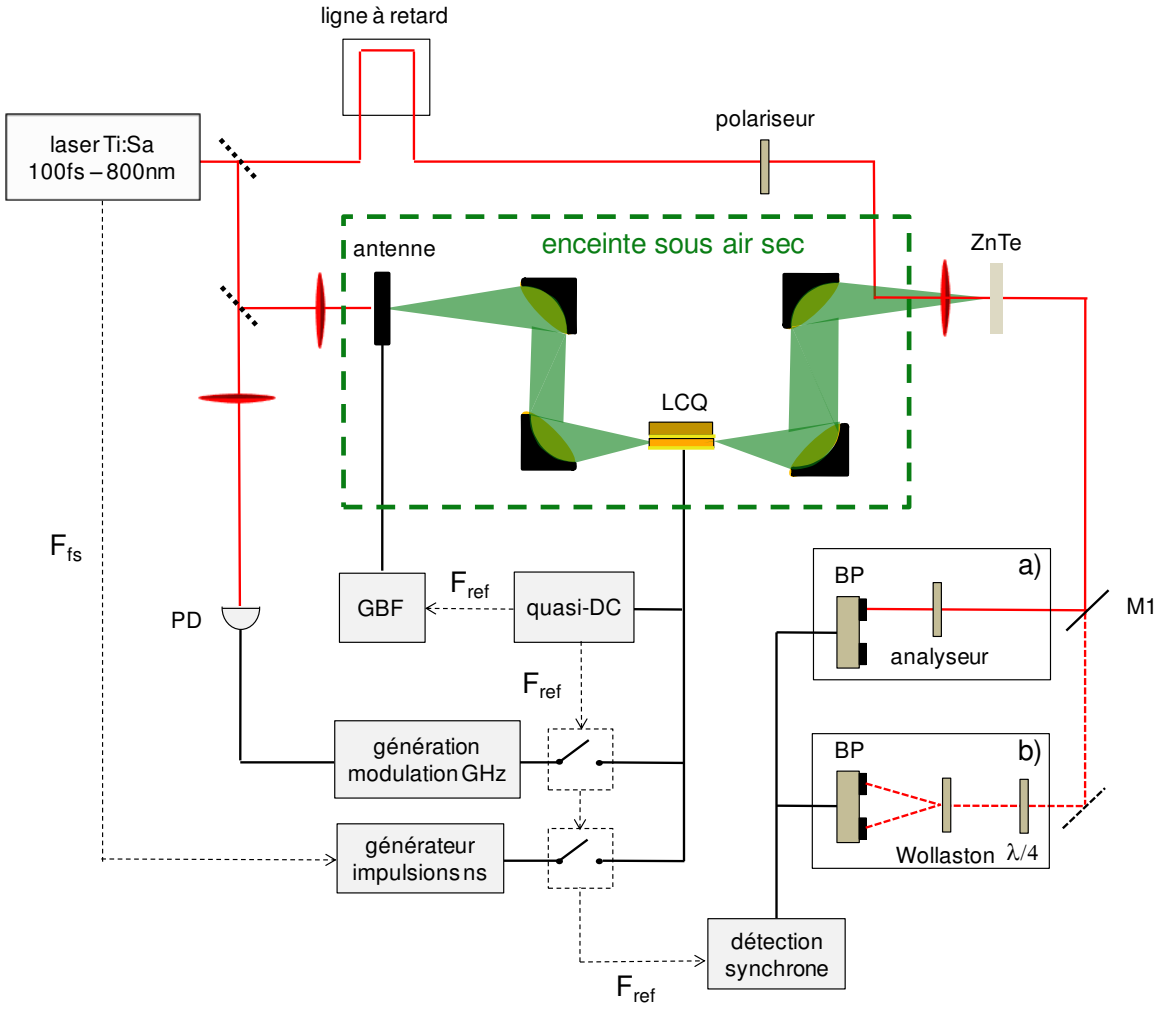


FIGURE 4.9 – Montage complet pour la modulation de courant. Les deux configurations de la détection électro-optique peuvent être utilisées de manière conjointe. La détection non-synchronisée est représentée dans l'encadré a) et permet de mesurer l'enveloppe de l'intensité (le faisceau qui incide sur la seconde photodiode de la balance de photodiodes (BP) est directement issu du Ti:Sa et n'est pas représenté). La détection synchronisée (encadré b)) permet la mesure du champ lorsque le LCQ est couplé à une impulsion THz. Les relations de déclenchement électronique sont représentées par des flèches tiretées bleues.

Les deux configurations de la détection électro-optique utilisées dans le chapitre 3 sont utilisées. La détection synchronisée (encadré b.) permet de mesurer le champ électrique

synchronisé (voir section 4.4) émis par le LCQ. La synchronisation du champ est obtenue en couplant des impulsions THz externes dans le LCQ combiné à l'usage des impulsions RF de commutation du gain (injection seeding). La détection non synchronisée (encadré a.) permet de mesurer l'enveloppe de l'intensité totale émise par le LCQ (émission synchronisée et non synchronisée). L'allure du profil temporel du courant appliqué au LCQ est reporté sur la figure 4.10. Le courant pilote est composé de trois contributions : le courant quasi-DC, les impulsions RF de commutation du gain et la modulation GHz. La modulation GHz a une fréquence de l'ordre de F_m=13 GHz. Les impulsions RF de commutation du gain sont déclenchées à l'aide d'une photodiode interne du laser Ti :Sa à la fréquence 76.54 MHz. Le courant quasi-DC correspond à une fonction créneau de fréquence typique F_{ref}=10 kHz. Cette fréquence est utilisée pour le contrôle d'interrupteurs. Ces interrupteurs surmodulent la modulation GHz et le train d'impulsions RF ce qui est nécessaire pour la détection synchrone et évite par ailleurs un chauffage excessif du LCQ.

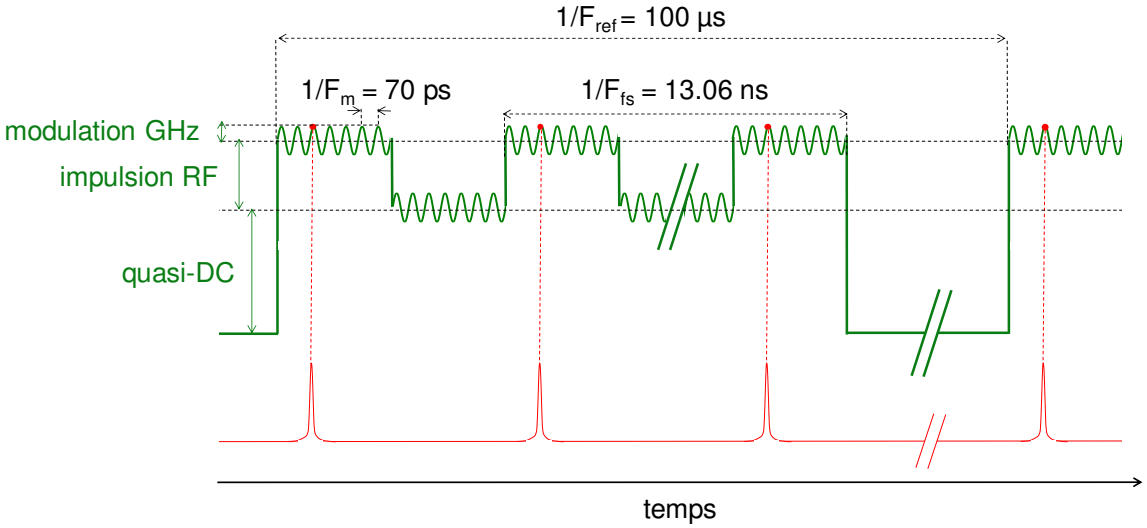


FIGURE 4.10 – Profil temporel du courant appliqué au LCQ. Les échelles temporelles ne sont pas réalistes. le courant est synchronisé avec les impulsions fs d'échantillonnage.

4.3 Enveloppe de l'émission laser

Dans cette section, nous allons discuter les mesures du profil temporel de l'émission laser sous l'effet de la modulation GHz. Une détection en temps du rayonnement émis par le LCQ est indispensable pour caractériser d'éventuelles impulsions émises. En effet, pour un profil d'amplitude spectrale donné, l'allure temporelle peut être très différente en fonction de la distribution de phase des différents modes. Les mesures spectrales usuelles de l'émission des LCQs (en particulier à l'aide de FTIR) ne permettent donc pas de déterminer la forme d'impulsions émises. Dans cette section, nous utilisons la configuration électro-optique non synchronisée pour la mesure de l'enveloppe de l'émission laser (montage simplifié représenté dur la figure 4.11). Cette mesure est la preuve que la modulation d'amplitude permet la génération d'impulsions courtes. La détection non synchronisée ne permet pas de mesurer le champ électrique mais elle ne nécessite pas l'injection d'un seed pour contrôler la phase. Nous utilisons donc cette détection car elle présente l'avantage de découpler l'effet de la modulation GHz de l'effet d'une impulsion THz externe couplée à la cavité.

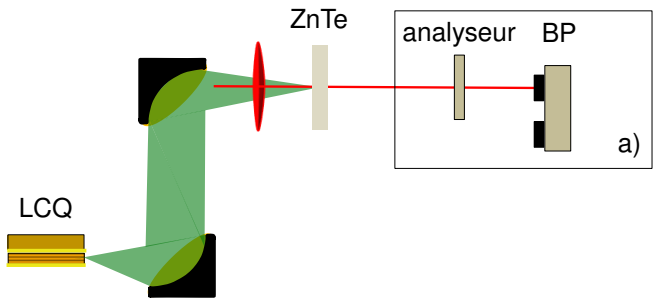


FIGURE 4.11 – schéma simplifié du montage de la fig.4.9. Dans toute la section **4.3**, l'antenne n'est pas utilisée (éteinte). On ne couple pas d'impulsions THz externes dans la cavité du LCQ. La détection du rayonnement THz se fait uniquement à l'aide de la détection non-synchronisée.

4.3.1 Lasers étudiés

Les travaux présentés par la suite se concentrent sur des LCQs simple plasmon. Nous avons une contrainte géométrique sur le choix des échantillons. La puissance générée à partir du montage pour la modulation GHz chute vers 15 GHz, ce qui empêche d'étudier des échantillons de longueur de cavité inférieures à environ 2.8 mm, pour lesquels la fréquence de modulation GHz nécessaire atteint ou dépasse 15 GHz. En particulier, nous nous sommes donc intéressés à un laser émettant à 2.9 THz (croissance V557 en annexe B) à guide simple plasmon de longueur de cavité 2.96 mm dont la caractéristique courant-tension-lumière est reportée sur la figure 4.12.a). Le seuil pour l'émission laser est obtenu pour une tension de 2.74 V et une densité de courant de 68 A/cm^2 (courant égal à 400 mA).

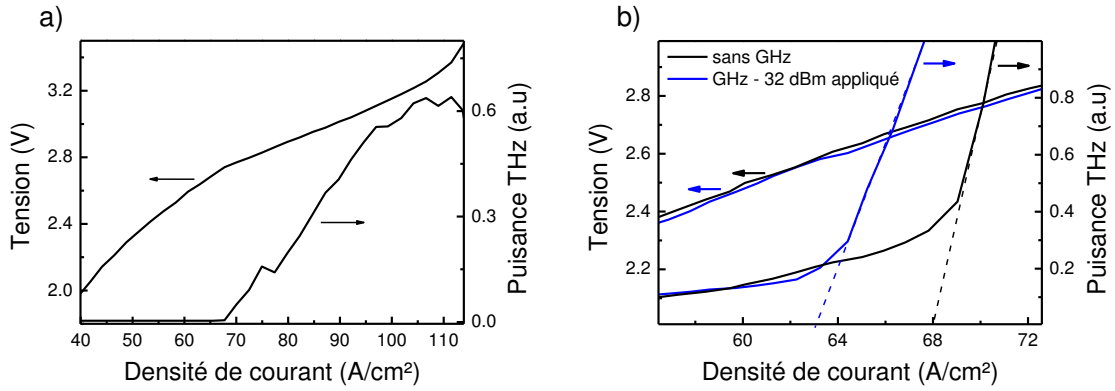


FIGURE 4.12 – Caractéristique courant-tension-lumière de l'échantillon V557 de longueur de cavité 2.96 mm mesurée à une température de 10 K en fonction de la densité de courant quasi-DC (10 kHz). a) Sans modulation GHz. b) Les courbes bleues et noires correspondent respectivement aux mesures effectuées avec et sans modulation GHz. Pour la mesure avec la modulation, la puissance mesurée en amont du LCQ est de 29 dBm, la puissance effectivement couplée au LCQ est de l'ordre de 18 dBm.

La puissance de la modulation GHz effectivement injectée dans le laser peut être estimée de manière indirecte à l'aide de la caractéristique courant-tension-lumière. En effet, on peut voir sur la figure 4.12.b) que l'ajout de la modulation GHz de courant induit un décalage du seuil de l'émission laser. La valeur du décalage en courant est attribuée à la valeur maximale du courant instantané ajouté par la modulation GHz. La puissance RMS GHz P_{RMS} effectivement injectée correspond à la différence des puissances instantanées électriques au seuil, avec et sans modulation GHz, divisée par un facteur 2. Le seuil sans modulation GHz est observé pour une tension de 2.74 V et un courant égal à 400 mA. Le seuil avec modulation GHz est quant à lui observé pour une tension de 2.58 V et un courant égal à 380 mA. On en déduit $P_{RMS} \sim 18$ dBm, pour une puissance à la fin de la chaîne d'amplification de l'ordre de 29 dBm. Le couplage du signal GHz au LCQ se traduit par une perte forte de 11 dB. Cette perte est essentiellement due au désaccord d'impédance fort entre le guide coplanaire 50 Ω et le LCQ connectés via les microfils de contact. Les valeurs des puissances GHz données précédemment dans le chapitre correspondent à la valeur à l'issue de la chaîne d'amplification, corrigée par la perte de couplage de 11 dB. La puissance de 29 dBm en amont du montage correspond à une estimation du taux de modulation du courant m de 5 % (voir équation 4.5). Cette puissance est proche du maximum de puissance que nous pouvons obtenir. On peut donc retenir que le taux de modulation du courant est au maximum de l'ordre de quelques %.

Les impulsions RF de commutation du gain peuvent également être ajoutées au montage. La caractéristique associée est reportée en rouge sur la figure 4.13. Nous avons utilisé la détection non synchronisée pour la mesure de la puissance rayonnée par le laser polarisé avec les impulsions RF plutot que le détecteur pyroélectrique. L'avantage de cette méthode pour la détection est que l'on peut mesurer la puissance rayonnée par le laser en fonction du temps, et donc distinguer la contribution des impulsions RF

uniquement. Le seuil de courant quasi-DC lorsque les impulsions RF sont ajoutées est mesuré à 40 A/cm^2. Dans la gamme [40 - 68] A/cm^2, le LCQ est allumé uniquement lorsque son gain est commuté par les impulsions RF. Enfin, dans la gamme [68 - 105] A/cm^2, le LCQ est allumé avec et sans la commutation du gain par les impulsions RF.

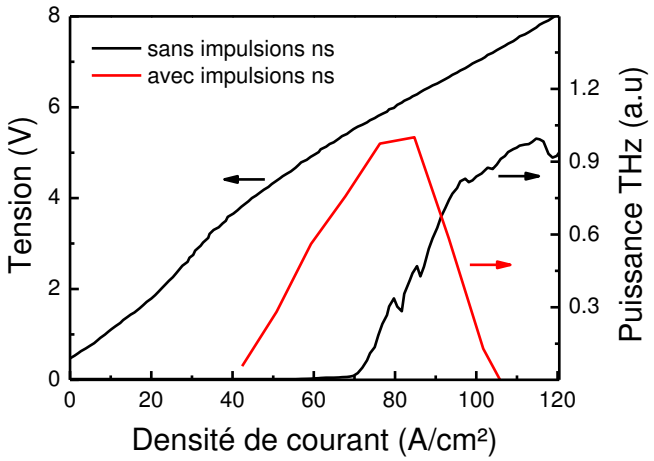


FIGURE 4.13 – Caractéristique courant-tension-lumière de l'échantillon V557 de longueur de cavité 2.96 mm mesurée à une température de 10 K en fonction de la densité de courant quasi-DC (10 kHz). Les courbes rouge et noire correspondent respectivement aux mesures effectuées avec et sans l'ajout des impulsions RF de commutation du gain.

4.3.2 Génération d'impulsions courtes

Dans ce paragraphe, nous allons constater qu'il est possible de produire des impulsions avec le LCQ sous certaines conditions pour la modulation GHz.
L'effet de la modulation GHz sur l'émission laser est illustrée sur la figure 4.14. Le courant pilote injecté dans le LCQ combine ici: une composante quasi-DC (densité de courant de 64 A/cm^2, voir la caractéristique courant-tension-lumière sur la figure 4.13) ; les impulsions RF de commutation du gain ; la modulation GHz (puissance de 18 dBm - F_m=13.23 GHz). On a ici $p = 1.6$ (suivant la relation 4.5 de l'expression du courant appliqué au LCQ[3]). L'usage des impulsions RF de commutation du gain permet d'apporter deux informations supplémentaires à la mesure de l'enveloppe de l'émission du LCQ. Tout d'abord, le contrôle de la commutation du LCQ permet de visualiser le régime de construction de l'émission laser. De plus, il permet d'évaluer la profondeur de modulation de l'intensité émise par le LCQ, induite par la modulation GHz du gain. En effet, l'usage des impulsions RF de commutation du gain permet de définir la valeur zéro de l'intensité THz avant l'allumage du LCQ.

On peut voir sur la figure 4.14 que l'allumage du laser se fait à partir de 0 ps. De 0 a 3400 ps, l'enveloppe de l'intensité est marquée par une modulation dont la fréquence

3. $p = 1.6$ correspond à une valeur du courant injecté dans le LCQ (quasi-DC + impulsions RF) 1.6 fois supérieure au courant seuil.

est estimée à 13.2 ± 0.2 GHz. L'enveloppe de l'intensité suit la modulation de courant (F_m=13.23 GHz). Nous avons vu que le gain a une dynamique intrinsèque très rapide (estimé à 15 ps dans le chapitre 2 pour le même type de dessin). Le gain et la puissance émise par le LCQ peuvent donc suivre une modulation de courant appliquée à une fréquence élevée. La modulation de l'intensité est partielle pour la valeur du courant injecté et l'amplitude de modulation choisie ici. Cependant, entre 0 et 500 ps (zone en rouge), on observe une modulation totale de l'intensité THz. Elle est liée au temps de montée non nul de l'impulsion RF de commutation du gain. Du coup, l'évolution du courant injecté dans le LCQ se fait de manière progressive, de la valeur en dessous du seuil (avant 0 ps), jusqu'à la valeur moyenne au-dessus du seuil (au-delà de 1000 ps). Cette période transitoire se manifeste par la génération d'impulsions courtes (les quatre impulsions observées entre 155 ps et 450 ps ont une largeur à mi-hauteur moyenne de 28 ps).

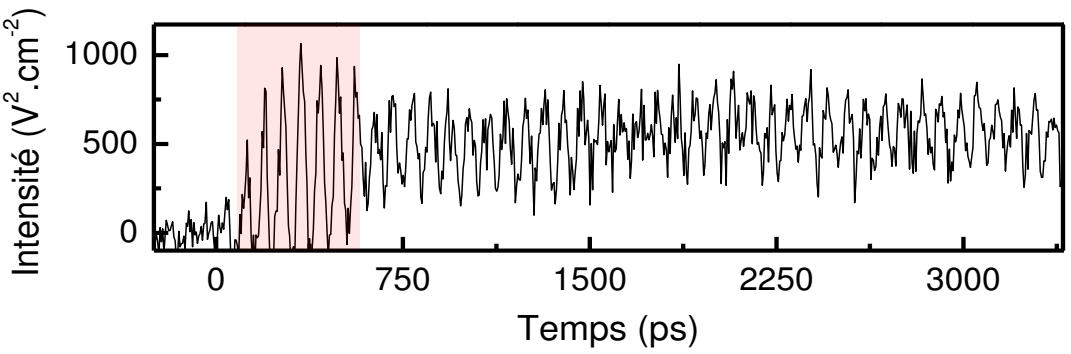


FIGURE 4.14 – Profil temporel de l'enveloppe de l'intensité non synchronisée. La densité de courant quasi-DC est égale à 64 A/cm^2 (p=1.6). Les impulsions ns de commutation du gain sont ici ajoutées. La fréquence de la modulation sinusoïdale est de 13.23 GHz pour une puissance de 18 dBm.

L'effet de la puissance de la modulation GHz est représenté sur la figure 4.15. La modulation de l'émission laser est de plus en plus marquée pour des puissances GHz injectées croissantes. Pour des puissances GHz de l'ordre de 20 dBm, la modulation de l'intensité rayonnée par le LCQ est totale. Pour cette valeur de puissance, des impulsions sont observées avec une largeur de 28 ± 2 ps. Dans le cadre de la théorie pour la modulation active de lasers [90], la dépendance de la largeur à mi-hauteur en intensité des impulsions émises τ_p avec le taux de modulation m (défini comme le rapport de l'amplitude de modulation en courant sur le courant seuil d'après la relation 4.5) est:

$$\tau_p \propto \left(\frac{1}{m}\right)^{1/4} \tag{4.7}$$

On observe expérimentalement une largeur d'autant plus courte que le taux de modulation est élevé. Ceci est en accord avec la relation 4.7. De plus, d'après cette relation, on

s'attend à ce que l'évolution de la durée des impulsions avec une amplitude de modulation croissante soit faible: une diminution de la largeur des impulsions de 16% pour un taux de modulation m deux fois plus fort (puissance 4 fois plus forte). Sur la figure 4.15, de 17 dBm à 20 dBm, le taux de modulation m passe de 0.042 à 0.06 et nous observons effectivement une diminution faible de la largeur des impulsions.

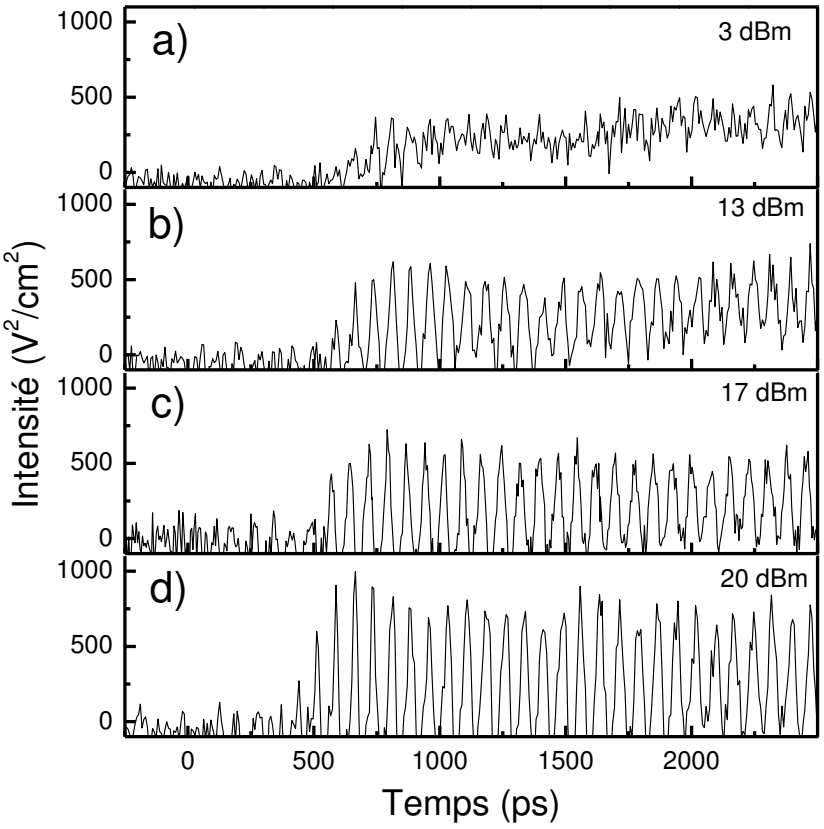


FIGURE 4.15 – Profil temporel de l'enveloppe de l'intensité non synchronisée pour diverses amplitudes de modulation. La densité de courant quasi-DC est égale à 46 A/cm^2 (p=1.15). Les impulsions ns sont ici ajoutées. La fréquence de la modulation sinusoïdale est de 13.23 GHz. Les valeurs des puissances injectées sont respectivement a) 3 dBm b) 13 dBm c) 17 dBm d) 20 dBm.

4.3.3 Influence du point de fonctionnement

Les différents travaux sur le blocage de mode pour les LCQs [21, 61] ont constaté une évolution de la forme des impulsions avec le point de fonctionnement du laser. Voyons quel est son effet ici en changeant la valeur de la densité de courant (quasi-DC + RF) appliquée au LCQ à puissance de la modulation GHz fixe. L'augmentation du courant quasi-DC a un impact fort sur l'enveloppe de l'émission laser. La figure 4.16 expose les résultats obtenus avec pour diverses valeurs de p : p=0.72 (4.16 a)), p=0.93 (4.16 b)), p=1.15 (4.16 c)), p=1.4 (4.16 d)) et p=1.6 (4.16 e)) (ici, le changement de

la valeur de p a été obtenu en modifiant la valeur du courant quasi-DC sans changer l'amplitude des impulsions RF de commutation du gain). Du fait du temps de montée non instantané des impulsions de commutation du gain (environ 1 ns), un changement du courant quasi-DC se traduit par un décalage de l'instant de déclenchement du laser. Ainsi plus p est faible, plus l'émission laser naît tardivement. Par ailleurs, on retrouve une modulation de l'émission plus marquée avec des impulsions courtes dans le régime transitoire associé à chacune de ces courbes (par exemple de 0 à 500 ps pour p=1.6).

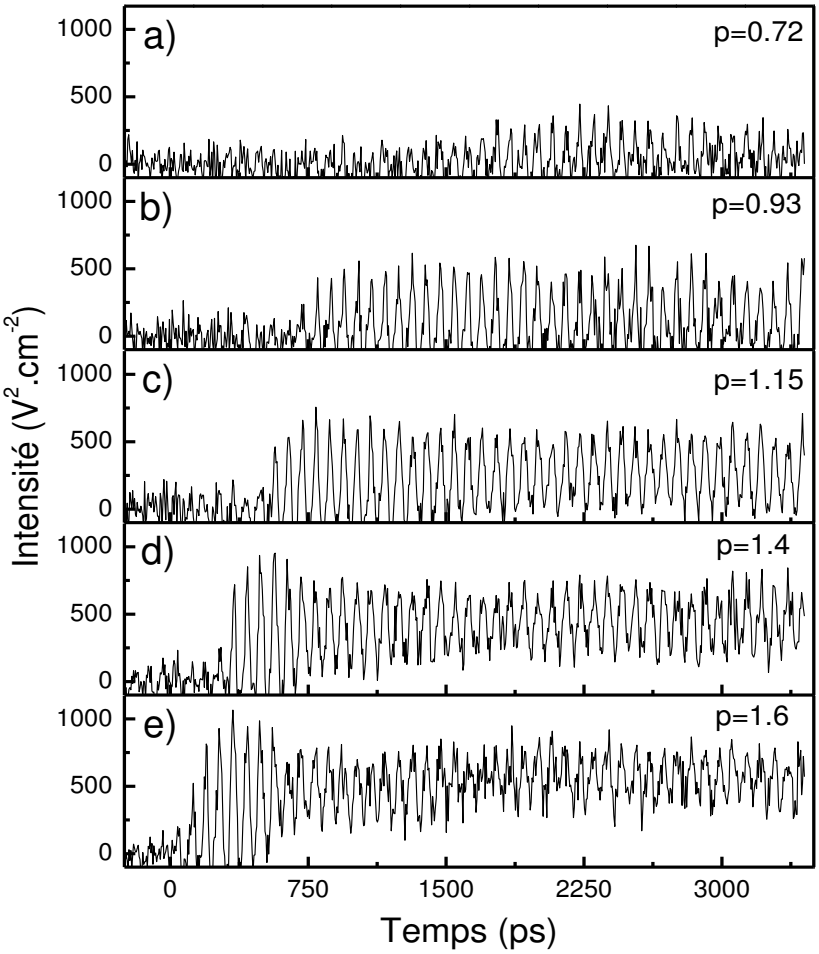


FIGURE 4.16 – Profil temporel de l'enveloppe de l'intensité non synchronisée pour diverses valeurs du courant quasi-DC. Les impulsions ns sont ici ajoutées. La fréquence et la puissance de la modulation sinusoïdale sont choisies égale à 13.23 GHz et 18 dBm (en prenant en compte la perte de 11 dBm). Les valeurs des densités de courant quasi-DC (10 kHz) sont respectivement a) 29 A/cm^2 (p=0.72) b) 37 A/cm^2 (p=0.93) c) 46 A/cm^2 (p=1.15) d) 56 A/cm^2 (p=1.4) e) 64 A/cm^2 (p=1.6).

Lors de l'augmentation de p de 0.72 à 1.6, on passe progressivement d'un régime avec une modulation totale de l'intensité caractérisée par l'émission d'impulsions courtes, jusqu'à une modulation partielle de l'intensité émise. Le régime d'impulsions courtes

pour p=0.93 est caractérisé par des impulsions de largeur typique égale à 20 ps. Ce régime est discuté dans le paragraphe suivant. Pour $p = 1.6$, la modulation sinusoïdale de courant se manifeste par une modulation sinusoïdale de la puissance rayonnée.

Mesure du spectre émis

Pour caractériser plus précisément les impulsions émises aux basses densités de courant, il est important de mesurer le profil spectral de l'émission sous l'effet de la modulation GHz. A l'appui de la mesure du spectre émis et de sa comparaison avec le profil temporel, nous allons montrer que dans le régime des densités de courant proche du seuil, des impulsions transformée de Fourier sont obtenues.
La mesure du spectre émis par un LCQ est faite communément en utilisant un FTIR. Nous n'avons pas utilisé cette technique pour des raisons d'encombrement. Une technique alternative consiste à exploiter les non-linéarités du second-ordre exacerbées dans les LCQs THz à base de GaAs. Sous l'excitation du LCQ par un faisceau IR, un mélange de fréquences entre les ondes IR et THz s'effectue dans le milieu à gain du LCQ. Ce mélange conduit à la génération d'un faisceau à la différence de fréquences dans le proche IR qui contient toutes les informations sur le spectre THz (on parle de THz "up-conversion"). Ce spectre peut alors être facilement obtenu car il n'est pas mesuré directement dans la gamme THz où les performances des détecteurs sont limitées. Cette méthode a déjà été utilisée pour mesurer le spectre émis par un LCQ [136–138]. Pour ces mesures, l'échantillon V557 a été placé dans un cryostat type doigt froid inséré dans le montage décrit en détails dans [139], permettant la génération et la détection du faisceau à la différence de fréquences. Il n'est pas possible de déplacer facilement la source de la modulation GHz que nous utilisons (filtre Yig et chaîne d'amplification). Nous avons donc utilisé ici une source GHz commerciale associée au courant quasi-DC (pas d'impulsions RF de commutation du gain).

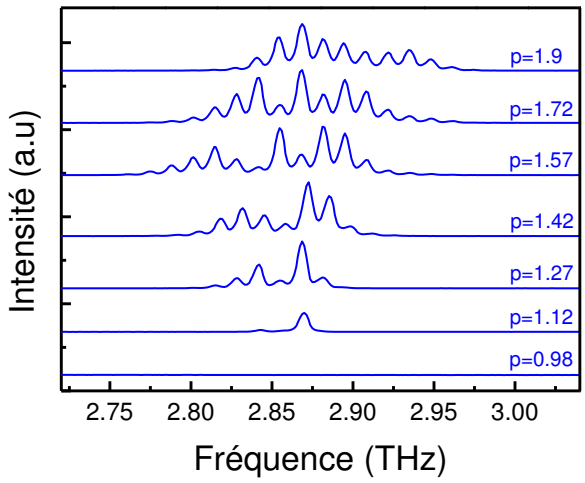


FIGURE 4.17 – Spectres du laser V557 pour différents courant quasi-DC : de 66 A/cm^2 (p=0.98) à 126 A/cm^2 (p=1.9). La mesure est effectuée via la conversion de l'onde THz dans le proche IR par un effet non-linéaire d'ordre deux. La résolution en fréquence est ici de 1.3 GHz.

Les spectres obtenus sans modulation GHz pour un courant variable sont représentés sur la figure 4.17. On observe que le laser présente un caractère monomode uniquement à proximité immédiate de son seuil. Au delà, le LCQ émet dans un régime multimode avec un écart entre deux modes successifs estimé à 13.4 ± 0.4 GHz. Cette technique pour la mesure de spectre THz présente l'avantage de permettre des mesures rapides tout en ayant une très bonne résolution spectrale. L'effet de l'ajout de la modulation GHz se manifeste par deux comportements distincts en fonction du courant, représentés sur la figure 4.18. Aux bas courants (p=1.12), l'ajout de la modulation autour de 13.2 GHz permet d'exalter le nombre de modes. Sur la figure 4.18 a), on observe que l'ajout de la modulation (F_m=13.22 GHz - puissance de 17 dBm) conduit à l'existence de 5 modes longitudinaux au lieu d'un seul sans modulation GHz. Aux hautes valeurs de courant, la modulation ne ne se manifeste pas par l'ajout de modes supplémentaires.

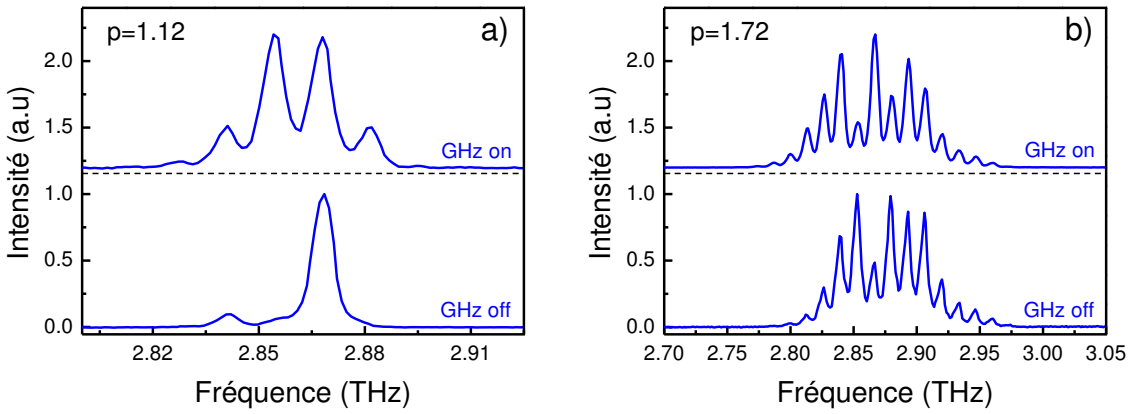


FIGURE 4.18 – Spectres du laser V557 avec et sans modulation GHz (F_m=13.22 GHz, puissance de 17 dBm). a) courant quasi-DC de 76 A/cm^2 (p=1.12). b) courant quasi-DC de 115 A/cm^2 (p=1.72).

La fréquence de modulation a également été optimisée de sorte à obtenir le plus de modes exaltés et les impulsions les plus courtes possibles. Un optimum a été obtenu à 13.23 GHz. La sensibilité à la fréquence de modulation est faible: aucune variation nette n'est observée dans un domaine de quelques dizaines de MHz autour de 13.23 GHz pour une puissance de modulation de 17 dBm. Ceci est cohérent avec l'estimation du domaine de verrouillage faite dans la section **4.2.2**.

Impulsions transformées de Fourier

Afin de comparer plus facilement le profil temporel avec les spectres, le LCQ est désormais uniquement piloté par le courant quasi-DC et la modulation GHz (pas d'impulsions RF). Nous nous restreignons à une fenêtre plus courte, afin d'accroître le temps d'intégration pour chaque point et la résolution. On observe à nouveau un profil qui tend vers des impulsions plus courtes à densités de courant plus proches du seuil. Le profil des impulsions les plus courtes obtenues (proche du seuil) est reporté sur la figure 4.19 a) en rouge.

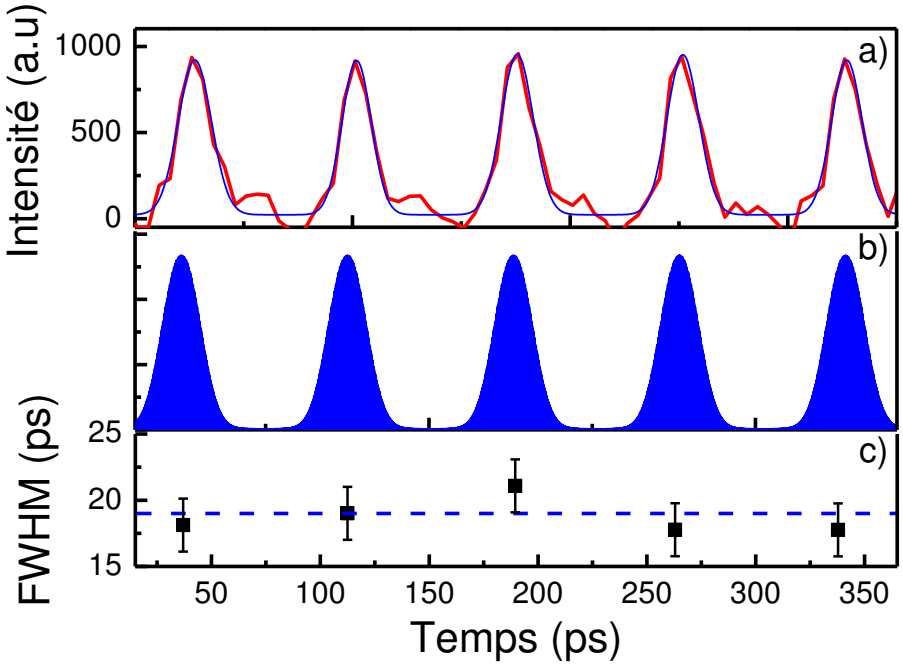


FIGURE 4.19 – Profil des impulsions obtenues pour une densité de courant de 76 A/cm^2 (p=1.12), une modulation GHz de fréquence F$_m$=13.23 GHz et une puissance 20 dBm. a) Enveloppe de l'intensité mesurée des impulsions (rouge) à laquelle on juxtapose un ajustement gaussien (courbe noire) b) Profil de l'intensité obtenu à partir du spectre de la figure 4.18 a) en supposant que tous les modes sont bloqués sur la même phase. c) Largeur à mi-hauteur (FWHM) du profil temporel mesuré des impulsions. Le trait tireté bleu correspond à la largeur attendue pour des impulsions limitées par transformée de Fourier.

Un ajustement gaussien de ces impulsions a été effectué (courbe bleue fig.a)). La largeur à mi-hauteur des pics successifs est évaluée à respectivement: 18.1 - 19.0 - 21.1 - 17.8 et 17.8 ps. Ici les impulsions RF de commutation du gain ne sont pas utilisées. Le moment de déclenchement du laser n'est donc pas défini pour une position donnée de la ligne à retard. Les impulsions que nous mesurons ici ne sont pas référencées par rapport au moment d'allumage du LCQ et sont identiques. L'écart de largeur des différentes impulsions est donc attribué aux limitations de la technique de mesure (en particulier, la résolution est ici de 5 ps). La largeur moyennée des cinq impulsions mesurée vaut 18.8 $\pm$ 0.9 ps. Cette valeur peut être comparée avec celle obtenue à partir du spectre. En effet, le profil temporel du champ/de l'intensité peut être reconstruit à partir de l'amplitude et de la phase des différents modes. Pour une distribution d'amplitude spectrale donnée des différents modes, les impulsions les plus courtes possibles sont obtenues lorsque tous les modes ont la même phase. Si à partir du spectre obtenu par conversion de fréquence (figure 4.18), on fait l'hypothèse que tous les modes sont bloqués sur la même phase, on

peut reconstruire le profil d'intensité exposé sur la figure 4.19 b) (courbe bleue). Avec cette hypothèse la largeur des impulsions obtenues, de 19 ps (figure 4.19 b) trait tireté bleu), coïncide avec celle mesurée à partir du profil temporel. Les impulsions que nous mesurons expérimentalement sont donc limitées par transformée de Fourier. Ce résultat est important. Ce sont les impulsions les plus courtes possibles étant donné l'amplitude spectrale mesurée sur la figure 4.18 a) lorsque la modulation GHz est appliquée.

4.3.4 Interprétation

La modulation sinusoïdale de courant aboutit donc à deux situations très distinctes en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ. Pour des densités de courant proches du seuil d'émission laser, des impulsions courtes sont obtenues. Pour des densités de courant élevées, l'émission subit simplement une modulation sinusoïdale en temps à la fréquence F_m. Nous avons toujours observée la même tendance pour les différents échantillons testés, à caractère monomode ou multimode [4].

L'évolution du profil temporel de l'émission avec la densité de courant que nous observons est similaire à celle reportée sur l'étude d'une modulation active de courant appliquée à un LCQ moyen-IR [91]. Cependant, dans la référence [91], la modulation de courant n'est appliquée que sur une petite section du laser. Une grande partie du laser qui n'est pas affectée par la modulation GHz est responsable de l'élargissement des impulsions avec une densité de courant croissante. A basse densité de courant, les impulsions ont une amplitude faible: elles saturent peu le gain de la grande section et subissent un élargissement temporel faible. A haute densité de courant, la puissance du laser est plus élevée de sorte que les impulsions sont plus intenses: le pic de l'impulsion sature le gain. Ainsi, les ailes de chaque impulsions subissent une amplification plus forte que la valeur crête. Ce mécanisme conduit à un élargissement des impulsions. Dans notre situation, cette interprétation est moins probable car la modulation est appliquée sur l'ensemble du contact supérieur du LCQ. De plus, le temps de recouvrement du gain T_1 est évalué dans [91] à environ 50 ps pour un temps d'aller-retour dans la cavité de T_c=68 ps. La proximité de ces deux constantes de temps aide à l'obtention d'impulsions courtes.
Dans notre situation T_1 et T_c sont estimés respectivement à 15 ps et 76 ps ce qui est une situation moins favorable à la formation d'une impulsion unique par aller-retour. Ainsi, pour les densités de courant élevées, on n'observe pas d'impulsions. Les impulsions sont obtenues pour des courants injectés très proches du seuil d'émission laser. Dans ce dernier cas, la modulation fait passer transitoirement le laser en-dessous du seuil d'émission. La modulation se manifeste également par un verrouillage de la phase des différents modes, qui conduit à la génération d'impulsions courtes transformée de Fourier.

4. Nous avons notamment essayé un laser émettant à 1.9 THz (croissance V455 donnée en annexe B issu d'une collaboration avec l'équipe du Prof. Ritchie) avec le même type de dessin ("boud to continuum") et une longueur de cavité très proche (3 mm). ce laser est monomode sur toute sa plage d'émission. Les valeurs du temps de recouvrement du gain T_1 et du temps d'aller-retour de la cavité T_c pour les deux échantillons sont donc similaires.

4.4 Des impulsions contrôlées en phase

Avec la modulation GHz de courant appliquée au LCQ, il est donc possible de générer des impulsions courtes. Dans ce contexte, il est très intéressant de contrôler la phase du champ de ces impulsions via la technique d'injection seeding (chapitre **3**). Le contrôle de phase des impulsions émises permet en effet d'envisager l'usage de ces impulsions THz comme source dans un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Comme nous allons le voir, l'injection seeding associé à la modulation de courant est une méthode très originale qui permet de produire des impulsions courtes dont le champ électrique peut être totalement reconstruit dans le domaine temporel. De plus, l'accès au champ électrique permet d'avoir un contrôle fin sur les propriétés du train d'impulsions, comme la valeur des fréquences des différents modes amplifiés. Nous présentons dans cette section les résultats associés au contrôle de la phase du champ électrique des impulsions dans le régime de blocage de mode émises par un LCQ simple plasmon de longueur 3 mm émettant à 1.9 THz (croissance V455 donnée en annexe B). Ce laser a permis d'obtenir les impulsions les plus courtes jusqu'ici. le montage simplifié est représenté sur la figure 4.20.

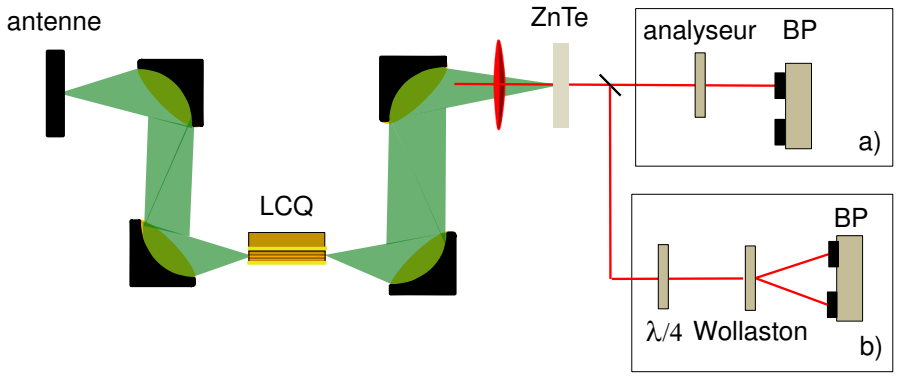


FIGURE 4.20 – schéma simplifié du montage de la fig.4.9. Dans l'essentiel de la section **4.4**, des impulsions THz externes émises par l'antenne sont injectées dans la cavité du LCQ et la détection du rayonnement THz se fait à l'aide de la détection synchronisée (encadré b)). La détection non-synchronisée peut être également utilisée (encadré a)).

4.4.1 Profil de l'émission avec/sans impulsion THz externe

La mesure comparative du profil temporel de l'émission laser avec et sans impulsion THz couplée permet d'analyser au préalable l'effet du seed sur l'allure temporelle du rayonnement du LCQ sous modulation GHz. Cette comparaison se fait en deux temps. Dans une première mesure, on bloque le seed et on mesure le rayonnement non-synchronisé. Puis on mesure le rayonnement synchronisé en couplant le seed à la cavité. Le résultat de ces deux mesures est reporté sur la figure 4.21.

Le LCQ est allumé par les impulsions RF à un temps égal à environ 400 ps. A partir

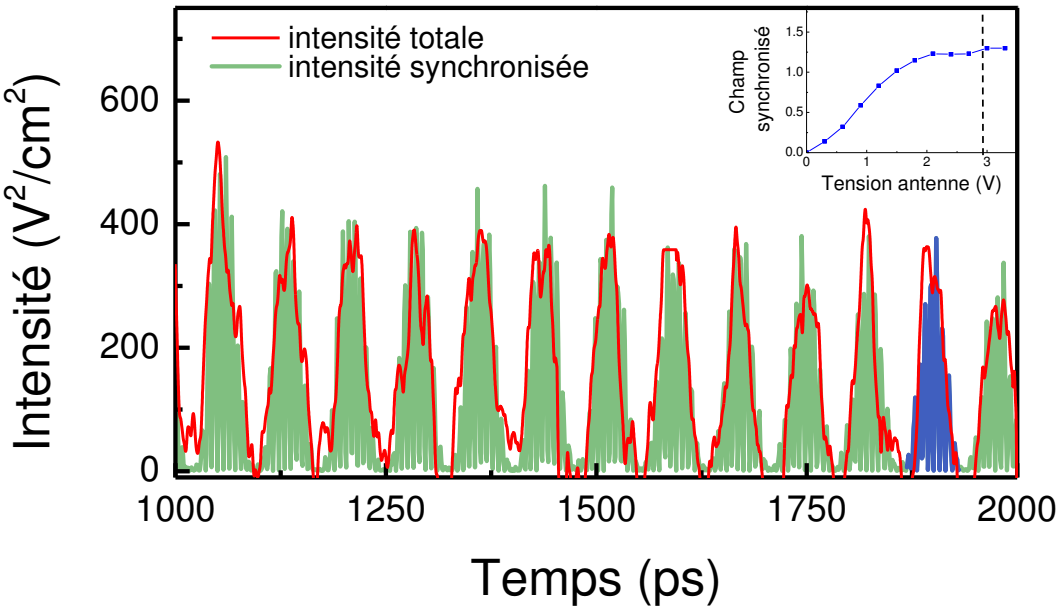


FIGURE 4.21 – Comparaison des profils d'émission laser avec/sans impulsion THz couplée à la cavité de l'échantillon V455. La valeur de l'intensité (définie comme le carré du champ THz) est representée en fonction du temps. Le LCQ est piloté par le courant quasi-DC, les impulsions RF de commutation du gain et la modulation GHz. La densité de courant quasi-DC est fixée à une valeur de 72 A/cm^2 de sorte que p=1.21. La modulation GHz est choisie avec une fréquence F$_m$=13.00 GHz et une puissance de 15 dBm. Les impulsions RF commutent le gain à partir du temps égal à 400 ps. La courbe rouge correspond à l'enveloppe de l'intensité totale émise par le LCQ sans couplage avec l'impulsion THz externe mesurée avec la détection non-synchronisée. La courbe verte correspond à l'intensité mesurée lorsque le laser est couplé à l'impulsion THz externe (tension de 3 V appliquée à l'antenne) : elle est faite avec la détection synchronisée. En bleu est surlignée une impulsion dont l'évolution du champ crête est représentée sur l'inset en fonction de l'amplitude de l'impulsion THz externe.

de 1000 ps, l'enveloppe de l'intensité sans seed (en rouge) et l'intensité rayonnée par le LCQ couplé au seed (en vert) présentent tous les deux une allure impulsionnelle très proche. Cela signifie que le couplage du seed dans la cavité du LCQ ne modifie pas l'enveloppe de l'émission laser. De plus le mécanisme d'injection est efficace comme on peut le voir sur l'inset de la figure 4.21 où est représenté le champ électrique maximum de l'impulsion surlignée en bleu en fonction de l'amplitude du seed. On observe que le champ électrique laser est saturé pour des tensions appliquées à l'antenne supérieures à 2 V. Le champ synchronisé mesuré pour une tension sur antenne de 3 V correspond donc au champ total émis par le LCQ couplé à une impulsion THz.

Finalement, la comparaison du profil d'émission laser sous modulation de courant avec/sans couplage à une impulsion THz externe permet de tirer deux conclusions. D'une part, le processus d'injection est efficace. D'autre part, le couplage à l'impulsion THz externe

ne modifie pas l'allure du profil rayonné. Avec le seed, on peut donc contrôler efficacement la phase du champ électrique sous modulation GHz sans changer l'allure du rayonnement émis.

4.4.2 Caractérisation complète d'impulsions bloquées en phase

Le LCQ étudié peut donc être injecté efficacement à l'aide des impulsions THz de l'antenne photoconductrice. Sur la figure 4.22 a) est reporté le profil temporel du champ électrique THz, piloté juste au-dessus du seuil (p=1.01), sans modulation GHz. La fenêtre choisie se situe plus d'une nanoseconde après l'allumage. L'enveloppe est quasiment plate et correspond à un régime d'émission continu. En revanche, lorsqu'on ajoute la modulation GHz, on observe un profil radicalement différent avec la génération d'un train d'impulsions courtes (figure 4.22 b)). La résolution temporelle de l'échantillonnage électro-optique, est bien plus petite que la période d'oscillation de l'émission laser ce qui permet de reconstruire complètement les oscillations du champ électrique: sur la figure 4.22-c), la résolution temporelle choisie est de 45 fs pour une période de l'oscillation d'environ 520 fs. On observe également que la qualité de la mesure, en termes de rapport signal à bruit, est excellente.

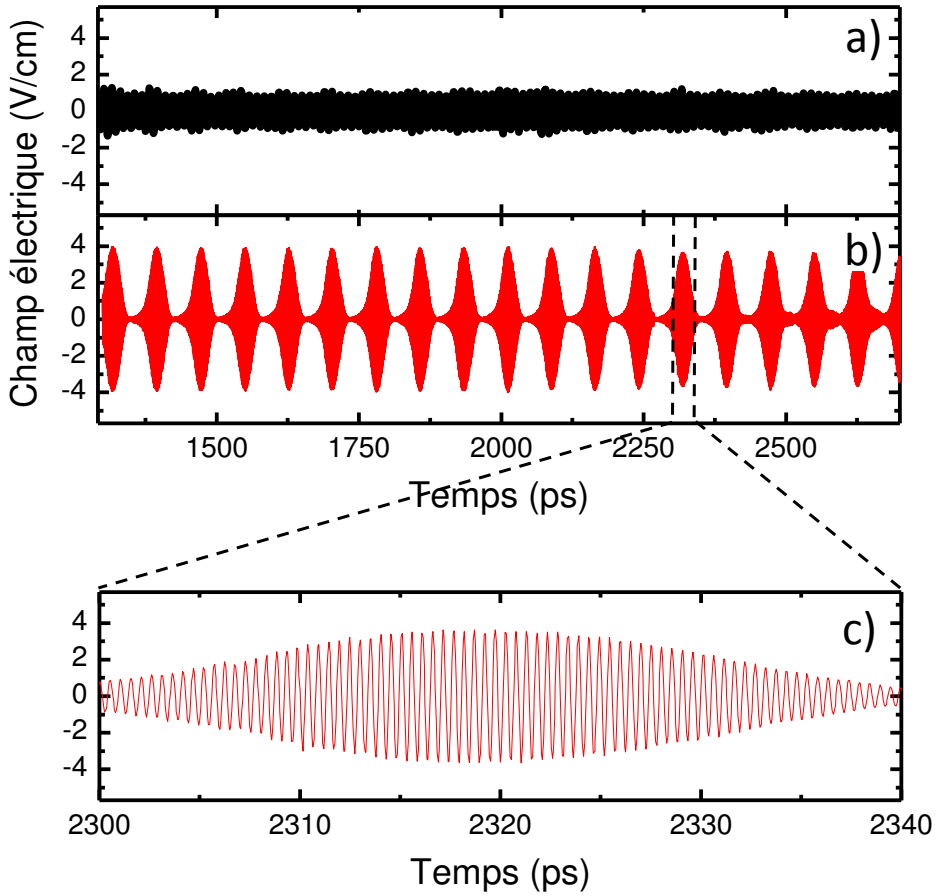


FIGURE 4.22 – Champ électrique THz mesuré via la détection électro-optique synchronisée avec une résolution temporelle de 45 fs. Le laser est allumé par les impulsions RF de commutation du gain à 0 ps lorsque l'impulsion THz externe pénètre dans la cavité du LCQ. a) Profil temporel lorsque le LCQ est piloté par un courant quasi-DC de 60 A/cm^2 (p=1.01). Le laser est porté juste au-dessus de son seuil d'émission par les impulsions RF de commutation du gain. b) Profil lorsque la modulation GHz est ajoutée (F_m=13.00 GHz ; puissance de 21 dBm) au courant quasi-DC et aux impulsions de commutation du gain. c) Zoom dans la fenêtre [2300-2340] ps de la figure b).

Les amplitudes spectrales associées aux profils temporels avec/sans modulation GHz sont représentées sur la figure 4.23. La résolution fréquentielle, ici de 0.7 GHz est donnée par la taille de la fenêtre temporelle choisie pour la mesure de l'émission laser. Sans modulation GHz, le profil spectral est marqué par la présence de 3 modes, dont un très dominant. La fréquence de l'oscillation laser, donnée par ce mode Fabry-Pérot, vaut 1.925 THz. L'ajout de la modulation se manifeste par une redistribution de l'énergie qui exalte plusieurs modes longitudinaux supplémentaires (environ 6 modes dont 3 dominants) comme on peut le voir sur la figure 4.23 b).

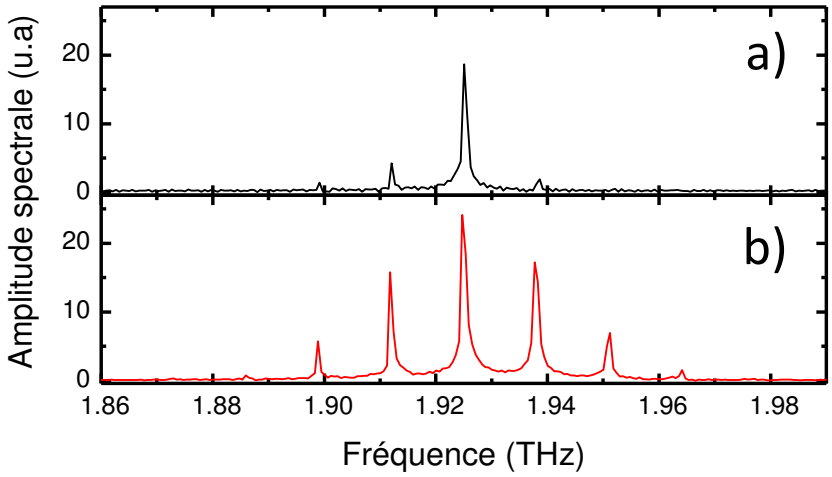


FIGURE 4.23 – Spectres obtenus par transformée de Fourier des profils temporels mesurés avec la détection synchronisée. a) Spectre associé au profil temporel sans modulation GHz (figure 4.22a)) pour un courant quasi-DC de 60 A/cm^2 (p=1.01). b) Spectre associé au profil temporel avec l'ajout de la modulation GHz (figure 4.22b)) de paramètres F$_m$=13.00 GHz ; puissance de 21 dBm.

Comme on résout totalement le champ électrique en temps, il est possible d'extraire la phase associée à chaque mode. En effet, le champ électrique rayonné par le LCQ peut se mettre sous la forme de la somme des champs électriques associés à chaque mode Fabry-Pérot amplifié:

$$E_{\text{total}}(t) = \sum_n a_n \cos\left(2\pi f_n \left(t - t_p\right) + \Phi_n\right)$$

où f_n représente la fréquence du mode Fabry-Pérot d'indice n. a_n et Φ_n représentent quant à eux les amplitudes et phases des modes. t_p correspond à la position en temps du pic de l'impulsion. Les fréquences f_n des différents modes sont obtenus par la transformée de Fourier du profil temporel. A partir du profil temporel, on peut donc déterminer les phases Φ_n et amplitudes a_n associées à chacun des modes. Pour cela nous effectuons un ajustement par les moindres carrés de ces valeurs. Le résultat de l'ajustement est illustré sur la figure 4.24. Le profil mesuré des impulsions est représenté sur la figure 4.24 a). Il correspond aux impulsions les plus courtes obtenues (le courant quasi-DC est ici de 55 A/cm^2 (p=0.92)).

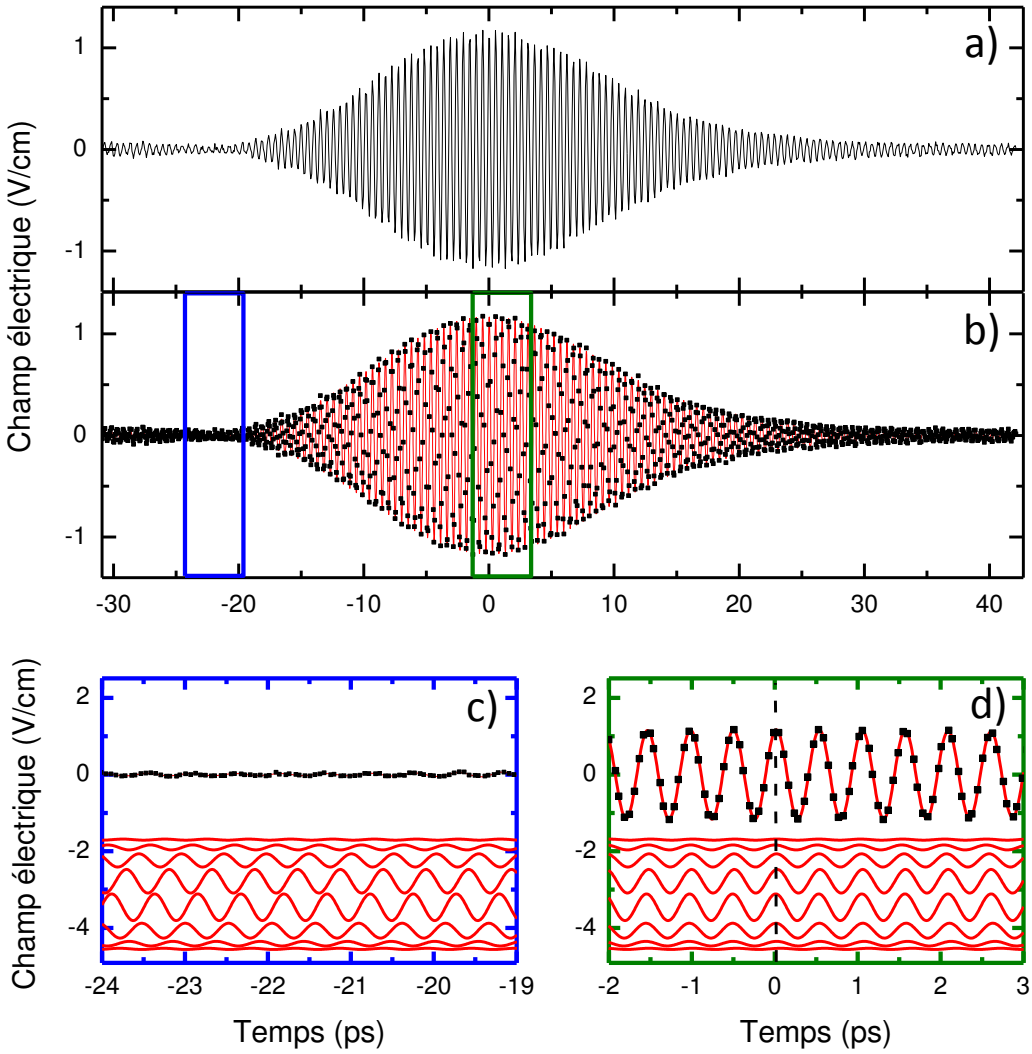


FIGURE 4.24 – Analyse du profil d'une impulsion THz émise par le LCQ. La densité de courant quasi-DC est fixée à 55 A/cm^2 (p=0.92) et la modulation GHz a une fréquence F_m=13.00 GHz et une puissance de 23 dBm. a) Profil mesuré avec la détection synchronisée pour une résolution de 60 fs. b) En rouge, le profil simulé à partir du champ résultant de 8 modes dont l'amplitude et la phase sont ajustés au profil expérimental (points noirs). c), d) Zooms dans la fenêtre [-24 ; -19] ps et dans la fenêtre [-2 ; 3] ps. Les points noirs correspondent au profil expérimental sur lequel est juxtaposé le champ simulé. Ce dernier résulte de l'interférence des 8 modes (représentés en rouge avec leurs amplitudes respectives).

L'impulsion mesurée a une largeur à mi-hauteur de 21 ps, soit environ 40 oscillations du champ électrique. La largeur à mi-hauteur du profil d'intensité est d'environ 15 ps, plus petite que celle obtenue pour l'échantillon émettant à 1.9 THz (V557), étudié dans la section **4.3**. Sur le graphe b), la mesure (points noirs) du champ électrique et son ajustement sont superposés (courbe rouge). On observe un très bon accord avec un coefficient de détermination R^2 égal à 0.995. L'ajustement conduit à une distribution

des phases Φ_n de sorte que tous les modes sont en phase au pic temporel de l'impulsion (à 0 ps voir 4.24 d)) et s'ajoutent destructivement dans la fenêtre [-24 ; -19] ps. Cette procédure d'ajustement, illustrée ici pour une impulsion peut être itérée pour toutes les impulsions successives. Sur la figure 4.25 est reporté le train d'impulsions mesuré. Les courbes a) et b) sont respectivement les profils d'intensité et de champ. On observe une fluctuation d'amplitude au cours du temps qui est attribuée aux fluctuations d'amplitude de courant lié à l'impulsion RF de commutation du gain. Sur les 8 modes utilisés pour l'ajustement, 6 sont dominants. Les valeurs des phases Φ_n des 6 modes dominants ajustées pour chaque impulsion sont reportées sur la figure c). Les phases Φ_n sont concentrées dans le domaine [-0.3 ;+0.3] rad avec les 4 modes les plus intenses dans un domaine plus restreint [-0.3 ; 0] rad. La synchronisation est donc bien établie entre les différents modes.

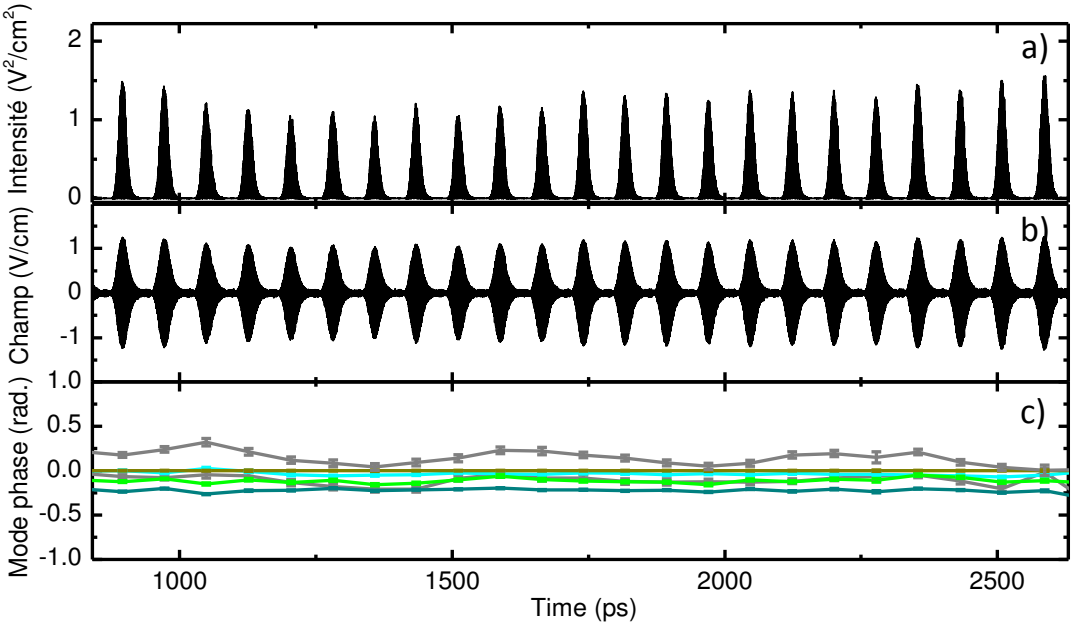


FIGURE 4.25 – Profil temporel de l'émission laser mesuré via la détection électro-optique synchronisée avec une résolution temporelle de 60 fs. Le LCQ est piloté par un courant quasi-DC de 55 A/cm^2, une modulation de fréquence 13.00 GHz et de puissance 23 dBm. a) Profil d'intensité. b) Profil du champ électrique. c) Évolution temporelle des phases des 6 modes dominants. Les valeurs des phases sont obtenues par un ajustement pour chaque impulsion.

L'ajustement des phases et amplitudes pour chacune des impulsions de la courbe 4.25 est reportée sur la figure 4.26. Cette représentation est celle utilisée plus communément en optique pour la caractérisation du profil d'impulsions courtes [140]. En particulier, la distribution d'amplitude spectrale sur un profil gaussien de largeur à mi-hauteur 40 GHz. On retrouve des informations similaires en terme de phase avec une allure globalement plate marquée par de légères fluctuations dans le domaine [-0.3 ; 0.3] rad.

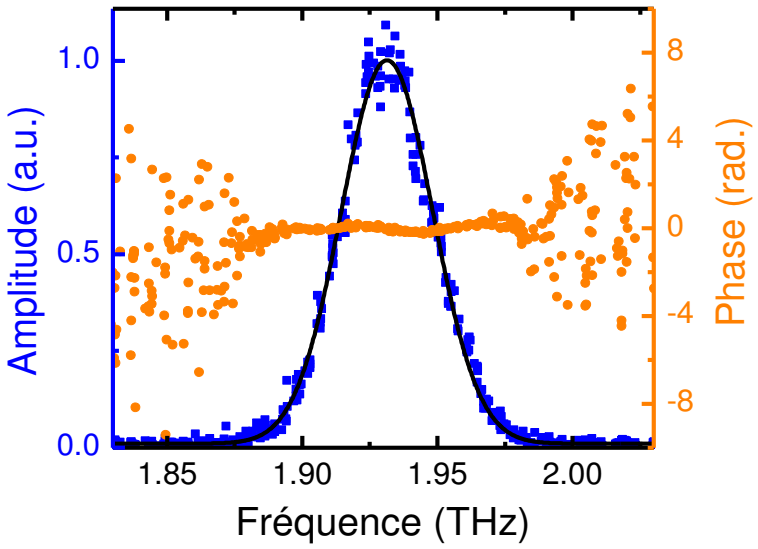


FIGURE 4.26 – Spectre associé au train d'impulsion de la figure 4.25. Sur ce graphe est représentée la transformée de Fourier pour chaque impulsion mesurée en temps dont la valeur crête est recentrée à t_p=0.

4.4.3 Influence de la fréquence de modulation

Le montage expérimental permet également d'apporter un contrôle sur la forme des impulsions émises par le LCQ. En particulier, lorsque F_m se situe dans le domaine de verrouillage, la fréquence d'aller-retour de la cavité F_{rt} est fixée par la valeur de F_m. C'est ce qu'on peut observer sur la figure 4.29-a). La fréquence de la modulation GHz est modifiée sur une large gamme de 12.54 à 13.30 GHz pour une puissance injectée de l'ordre de 21 dBm. La fréquence d'aller-retour de la cavité F_{rt} suit la fréquence de modulation sur toute la gamme.

Ce changement de F_{rt} se manifeste temporellement par un décalage progressif de l'enveloppe du champ pour F_m = 12.54 GHz (figure 4.27 b)) par rapport à l'enveloppe pour F_m = 13.30 GHz (figure 4.27 c)). Le décalage cumulé sur les quatre impulsions observables vaut 12 ps. De plus, on note que la phase du champ est indépendante de la fréquence de modulation, comme l'illustre la figure 4.27 d): les phases des champs pour les deux fréquences de modulation sont identiques pour les fenêtres temporelles choisies. En effet, cette phase est fixée par l'impulsion THz externe [5]. Cette modification de l'enveloppe sans changer la phase du champ électrique THz revient donc à changer la phase relative de l'oscillation THz par rapport au maximum de l'enveloppe. Cette phase relative $\Delta\Phi$ est connue comme la phase d'offset porteur-enveloppe [141] ("ceo phase" en anglais).

5. La phase relative du champ par rapport aux pics des impulsions peut donc être modifiée en changeant l'instant où l'impulsion THz est couplée dans la cavité, contrôlé par la ligne à retard optique avec une précision de 7 fs (voir **1.4.2** chap.1).

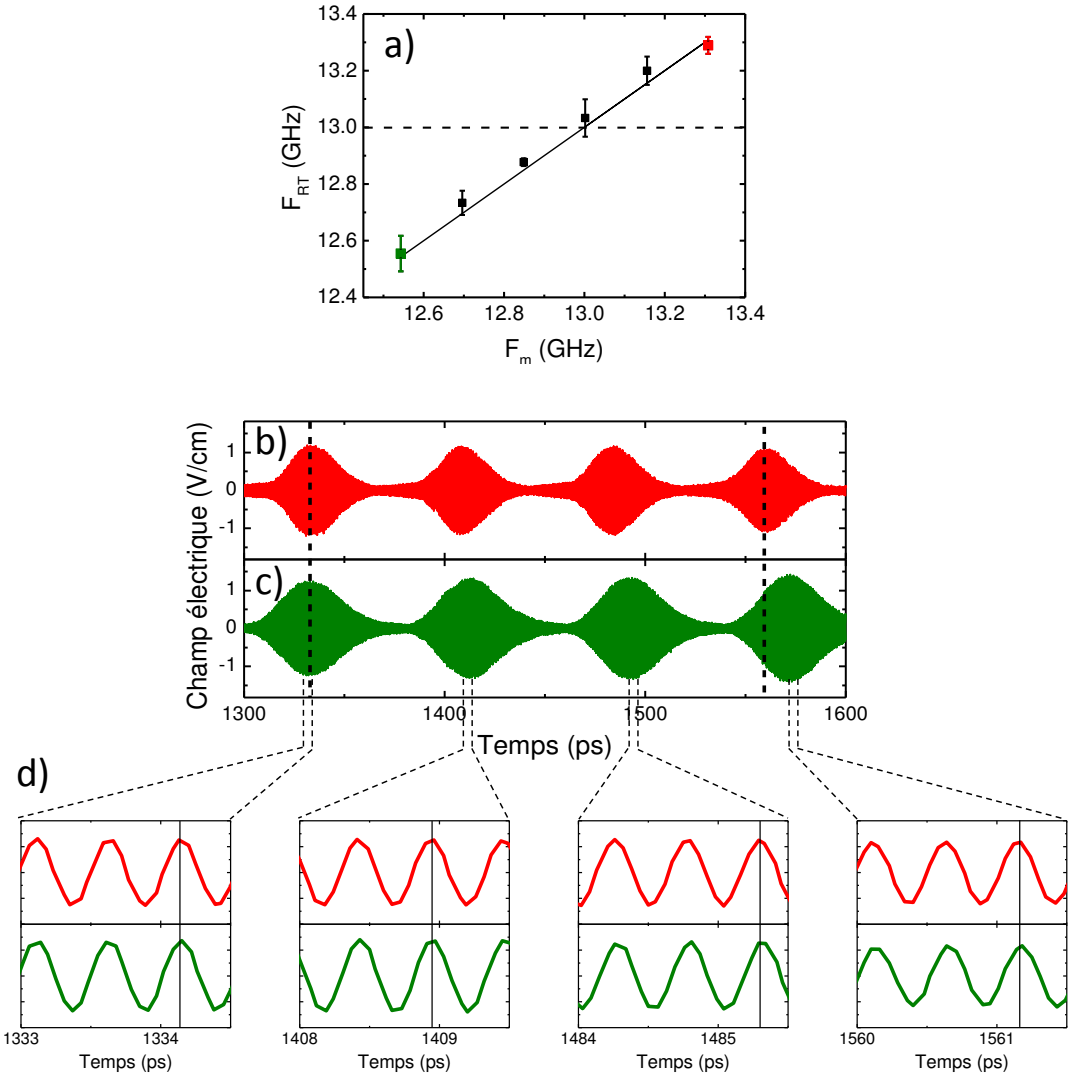


FIGURE 4.27 – Effet de la fréquence de modulation GHz sur le profil temporel des impulsions. a) Fréquence d'aller-retour de la cavité en fonction de la fréquence de modulation GHz. Les profils temporels pour des fréquences de modulation de b) 12.54 GHz c) 13.30 GHz sont représentés. Les traits tiretés noirs représentent les positions de la première et de la quatrième impulsion pour une fréquence de modulation de 12.54 GHz. d) Quatre fenêtres temporelles sont agrandies.

La phase d'offset porteur-enveloppe $\Delta\Phi$ est liée directement aux fréquences f_k des différents modes Fabry-Pérot via la relation:

$$f_k = f_{ceo} + kF_{rt}$$

où:

$$f_{ceo} = \frac{\Delta\Phi}{2\pi} F_{rt}$$

Le lien entre f_{ceo} et $\Delta\Phi$ est illustré sur la figure 4.28. f_{ceo} correspond à un offset en fréquence. La valeur de la fréquence f_{ceo} est importante dans la caractérisation d'un peigne de fréquences. Sa connaissance et son contrôle (associée à celle de F_{rt}) permettent de déterminer précisément les fréquences de tous les modes Fabry-Pérot (les raies du peigne lorsqu'il y a beaucoup de modes). Lorsque les fréquences des modes sont connues très précisément, le peigne peut alors être exploité pour déterminer la valeur d'une fréquence inconnue via des mesures hétérodynes. Toutefois, la mesure de f_{ceo} est difficile. De plus cette grandeur est soumise à des fluctuations qui sont un obstacle pour la précision de mesure de fréquence. Des outils ont été développés pour sa mesure et sa stabilisation de f_{ceo} [142] et ont ouvert la voie à l'usage de ces peignes pour la mesure de fréquences en métrologie [143].

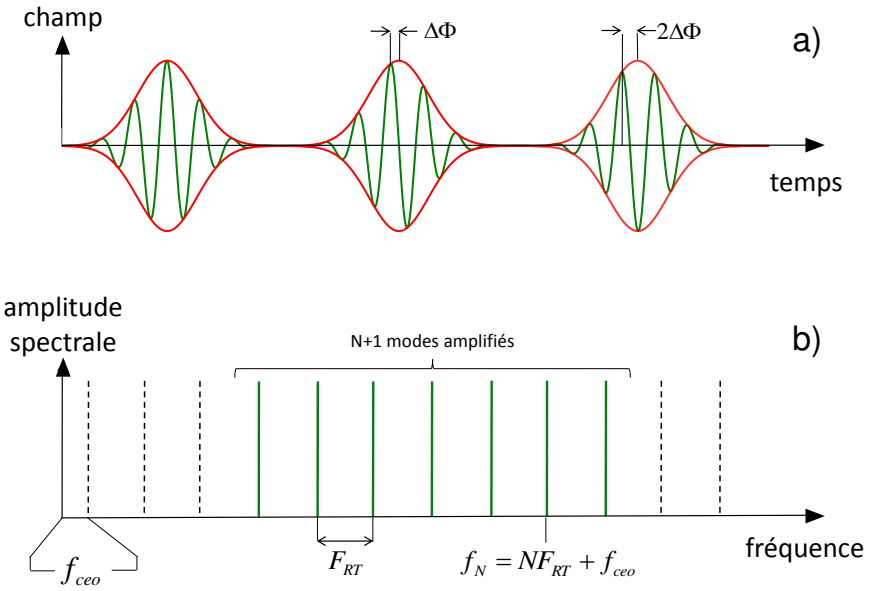


FIGURE 4.28 – Illustration de la phase d'offset porteur-enveloppe. a) Représentation temporelle : la phase d'offset porteur-enveloppe $\Delta\Phi$ correspond à un glissement progressif de la phase du champ par rapport à l'enveloppe des impulsions. b) Représentation fréquentielle : la phase d'offset porteur-enveloppe non nulle se manifeste par un offset en fréquence. Les fréquences des modes amplifiés ne sont plus des multiples entiers de la fréquence d'aller-retour de la cavité F_{rt}.

Dans notre dispositif expérimental, la modification de l'enveloppe sans changer la phase du champ électrique THz revient à changer la phase d'offset porteur-enveloppe. Il est en principe possible d'accéder à sa valeur via notre montage. Cependant, le nombre d'oscillations THz par impulsion émise (29 oscillations pour une durée de 15 ps, largeur à mi-hauteur des impulsions de la figure 4.29) n'est pas assez petit pour une estimation précise. En conclusion, le changement de la fréquence de la modulation d'amplitude associée au contrôle de phase permet de modifier l'offset de phase porteur-enveloppe et donc d'avoir un contrôle sur les valeurs des fréquences f_k des modes Fabry-Pérot amplifiés.

4.4.4 Intérêt pour la caractérisation d'impulsions courtes

Le développement des techniques de blocage de modes s'est accompagné d'un essor des outils de caractérisation des impulsions ultracourtes. La plus répandue est l'autocorrélation, qui dans sa version simple permet d'accéder à la largeur des impulsions. En revanche, elle ne donne pas accès à la structure détaillée de l'impulsion ni à la phase. Des techniques ont été développées pour la caractérisation complète d'impulsions courtes qui sont essentiellement des variantes de deux dispositifs: l'autocorrélation résolue spectralement [117] (FROG - pour Frequency Resolved Optical Gating) et l'interférométrie spectrale [144] (SPIDER - pour Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Recontruction). Ces méthodes décrites plus en détails dans [117, 144, 145], sont très puissantes, relativement simples à mettre en oeuvre et permettent de caractériser des impulsions de l'extrême UV jusqu'à l'IR. Elles s'appuient sur des algorithmes de reconstruction du champ pour déterminer le profil exact des impulsions qui nécessitent une attention particulière à la calibration du retard entre les impulsions qui interfèrent (SPIDER) ou à l'ambiguïté de la direction du temps (FROG). Les impulsions au profil temporel inconnu sont également celles utilisées pour la mesure: il s'agit donc de techniques autoréférencées. Il n'est ainsi pas possible d'avoir un accès direct à l'évolution des impulsions au cours du temps, par exemple à la phase d'offset porteur-enveloppe.

La mesure de champ présentée dans ce chapitre, qui permet de caractériser complètement des impulsions courtes, est conceptuellement différente. Un second laser, générant des impulsions fs, est utilisé pour échantillonner les impulsions inconnues. En synchronisant le déclenchement du LCQ avec les impulsions fs, on définit un temps de référence (retard entre les impulsions fs et le déclenchement périodique du LCQ). Une des originalités de la méthode présentée ici est qu'elle permet de différencier les impulsions émises en plus de les reconstruire. Ainsi, on peut étudier la dynamique d'évolution des impulsions: phase d'offset porteur-enveloppe et régime de construction du champ. L'échantillonnage est rendu possible grâce aux échelles de temps très différentes impliquées par le laser à caractériser et le laser d'échantillonnage. En effet, les impulsions de sonde, issues du laser Ti:Sa, ont une largeur typique de l'ordre de 100 fs. Les oscillations de période T du champ inconnu à mesurer ne sont détectables que si l'intervalle de temps séparant deux valeurs échantillonnées successives du champ est inférieure à T/2. C'est le critère de Shannon. Dans notre montage, la limite de fréquence détectable imposée par la largeur des impulsions fs est donc de l'ordre de 5 THz (60 μm), au-delà de laquelle l'échantillonnage devient impossible. Des impulsions de largeur 10 fs sont facilement obtenues désormais ce qui permet de repousser cette limite à moins de 6 μm. Le proche infrarouge (2.5 μm) a été atteint avec des impulsions de 10 fs par échantillonnage électro-optique dans la référence [146]). Avec un cristal non linéaire adapté, on pourrait ainsi exploiter la richesse de cette méthode de caractérisation [23] au-delà de la gamme THz.

4.5 Conclusion

La modulation GHz de courant appliquée à un LCQ THz nous permet de produire des impulsions courtes [22]. Lorsque le point de fonctionnement du laser est proche du seuil, le LCQ génère des impulsions de largeur à mi-hauteur minimale de 15 ps. Ces impulsions sont émises dans le régime de blocage de modes. Un contrôle de la phase du champ électrique des impulsions est ensuite effectué via la technique d'injection seeding discutée dans le chapitre **3**. Le seed couplé à la cavité permet d'imposer la phase initiale du champ électrique laser. Cette technique est d'un double intérêt. Tout d'abord, elle permet d'avoir un contrôle total sur les impulsions émises: la phase du champ électrique est contrôlée par le seed et l'enveloppe est imposée par la modulation GHz. On peut ainsi modifier la fréquence des modes Fabry-Pérot amplifiés via un contrôle sur la phase d'offset porteur-enveloppe. De plus, l'injection seeding permet de mesurer le profil temporel du champ électrique sans modifier l'enveloppe de l'émission. De cette manière, le champ électrique des impulsions émises est complètement reconstruit dans le domaine temporel [23]. Contrairement aux techniques d'autocorrélation, notre mesure permet enfin de distinguer les différentes impulsions par rapport au moment où le laser est porté au-dessus de son seuil, ce qui peut donner accès par exemple à la phase d'offset porteur-enveloppe.

Ce travail ouvre une nouvelle voie quant à l'usage des LCQs comme sources cohérentes impulsionnelles pour la spectroscopie dans le domaine temporel. Plusieurs possibilités pourraient permettre d'obtenir des impulsions plus courtes. En particulier, l'usage de LCQs dont la puissance rayonnée varie plus fortement avec la variation de densité de courant appliquée (efficacité de pente) permettrait d'induire une modulation plus forte de l'émission. Dans cette voie d'optimisation, un meilleur couplage des ondes GHz au guide d'onde du LCQ doit être envisagé. Par ailleurs, les absorbants saturables sont couramment utilisés pour les lasers semi-conducteurs pour générer des impulsions picoseconde voire sub-picoseconde [120] mais pas pour les LCQs où la dynamique du gain est trop rapide et ne permet pas de mettre suffisamment en forme les impulsions. Lorsque l'on applique la modulation GHz du courant, la situation est différente car on peut générer des impulsions courtes. On pourrait ainsi envisager utiliser un absorbant saturable pour essayer de réduire la durée des impulsions THz produites.

5

Le graphène comme convertisseur Infrarouge/Terahertz

L'intérêt que suscite les propriétés exceptionnelles du graphène et qui a conduit à l'attribution du prix Nobel à Andre Geim et Konstantin Novoselov en 2010 [147] a pour origine une expérimentation étonnante par sa simplicité. Des couches stables de graphène ont pour la première fois été isolées en 2004 à Manchester à l'aide d'un outil inattendu: un rouleau de scotch. Le graphène est un cristal à deux dimensions constitué d'atomes de carbone arrangés dans un réseau en forme de "nid d'abeille". La relation de dispersion qui découle de cet arrangement atomique est une linéaire. Ce comportement particulier se manifeste par un grand nombre d'effets exceptionnels qui suscitent un intérêt considérable: manifestation exotique de l'effet Hall quantique [148], apparition d'un minimum de conductivité [149], couplage tunnel de Klein [150] ou encore effets relativistes dans un environnement solide [151].
La dispersion en énergie très spécifique du graphène se manifeste également par des propriétés non-linéaires potentiellement exaltées [152]. La susceptibilité non-linéaire d'ordre 3 a par exemple été évaluée à une valeur très élevée de 2.1×10^{-15} $m^2.V^{-2}$ [153] dans le domaine proche IR. Ces interactions non-linéaires peuvent être exploitées pour générer un rayonnement THz. La première démonstration d'émission THz avec du graphène a été effectuée en 2010 [154] et implique un effet d'ordre 3 avec une excitation optique. Une manière a priori plus simple et efficace de générer une émission THz est d'utiliser un processus non-linéaire d'ordre 2. Dans ce chapitre, nous montrons qu'une excitation optique pulsée peut produire un rayonnement THz par un effet non-linéaire d'ordre 2 dans le graphène, matériau pourtant centrosymétrique où l'on s'attend à ce que la susceptibilité non-linéaire d'ordre deux soit nulle [26]. L'émission observée est issue d'un transfert de quantité de mouvement des photons incidents aux électrons, connu sous la dénomination de "photon drag" [155].

Cette étude présente deux intérêts spécifiques. D'une part, elle met en avant un mécanisme qui permet de produire un rayonnement THz cohérent et potentiellement très large-bande. D'autre part, l'effet photon drag met en jeu la dynamique des paires électrons-trous créées et permet ainsi d'explorer des propriétés fines de la structure de bande du graphène. Le chapitre se découpe donc de manière suivante. Dans la section **5.1**, nous donnons une brève description du graphène et de ses propriétés. Nous

décrivons ensuite l'état de l'art des dispositifs THz à base de graphène, ainsi que les mécanismes non-linéaires étudiés et observés (section **5.2**). Dans la partie **5.3**, l'émission THz du graphène est démontrée à l'appui du montage expérimental. Le graphène est excité par les impulsions fs du laser Ti:Sa, le rayonnement émis est détecté en temps à l'aide de l'échantillonnage électro-optique utilisé dans les chapitres précédents. les propriétés électroniques du graphène sont décrites de manière usuelle à l'aide du modèle des "liaisons fortes aux premiers voisins" [24]. Nous verrons dans la section **5.4** que l'émission observée ne peut être interprétée qu'à l'aide d'un modèle affiné de la structure de bande du graphène: le modèle des liaisons fortes aux seconds voisins [156]. Cette description fine permet de quantifier et comparer le comportement dynamique des électrons et trous photogénérés par les impulsions fs infrarouge.

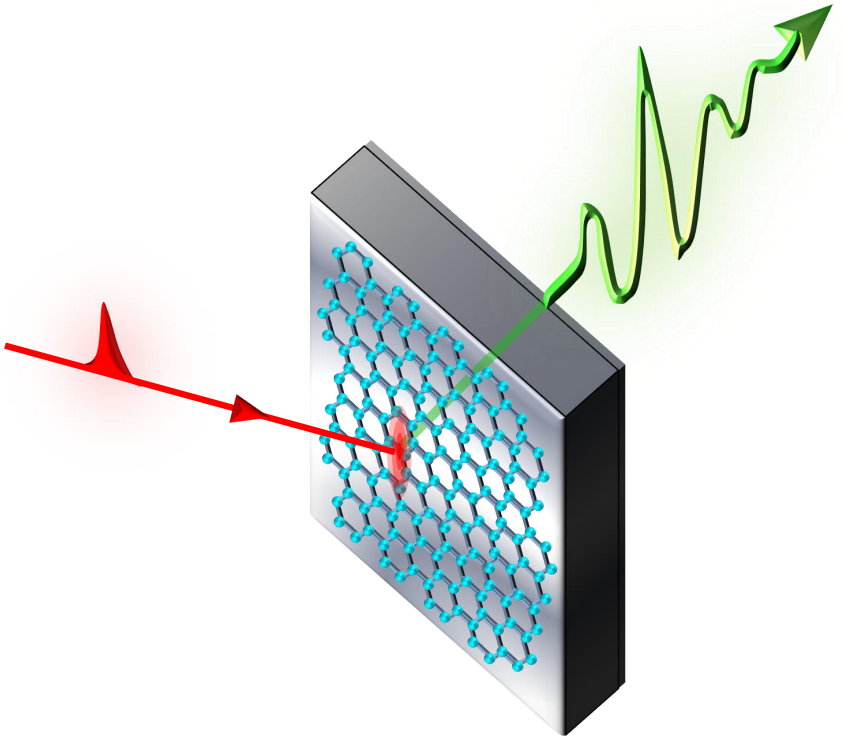


FIGURE 5.1 – Une impulsion fs infrarouge illumine un plan de graphène et induit l'émission d'une impulsion THz par transfert d'impulsion photonique (photon drag).

Sommaire

5.1 Le graphène: un matériau 2D remarquable 131
5.1.1 Structure de bande 131
5.1.2 Propriétés électroniques et optiques 132
5.2 Contexte de notre étude 133
5.2.1 Graphène et THz 133
5.2.2 Effets du second ordre dans le graphène sous excitation optique 134
5.3 Émission THz sous excitation optique 136
5.3.1 Montage expérimental 136
5.3.2 Signatures de l'effet photon drag 139
5.3.3 Influence de la polarisation IR 143
5.4 Modélisation 146
5.4.1 Description microscopique 146
5.4.2 Symétrie électrons/trous 148
5.4.3 Validation du modèle 153
5.4.4 Analyse de la relaxation des porteurs photogénérés 155
5.5 Conclusion 157

5.1 Le graphène: un matériau 2D remarquable

5.1.1 Structure de bande

La structure de bande du graphène, qui permet d'expliquer ses propriétés électroniques dominantes est représentée sur la figure 5.2. A chaque vecteur **k** sont associés deux états, l'un d'énergie positive et l'autre d'énergie négative, chacun étant doublement dégénéré en spin. La configuration électronique des atomes de carbone apporte deux électrons pour chaque valeur de **k**. Ainsi, en l'absence de dopage, tous les niveaux d'énergie négative sont remplis et tous ceux d'énergie positive sont vides (niveau de Fermi nul). Le graphène est un matériau sans bande interdite. Toutefois, on appelle bande de valence l'ensemble des états d'énergie négative et bande de conduction l'ensemble des états d'énergie positive. On constate que les bandes de valence et de conduction se rejoignent aux points notés K, K' et leurs points équivalents. Au voisinage de ces points, la structure de bande a une allure de cône, appelés cônes de Dirac.

La dispersion en énergie au voisinage des points de Dirac $\varepsilon_{\mathbf{k}}(k_x, k_y)$ s'écrit:

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = \lambda \hbar v_F \left(\pm k_x - i k_y\right) \tag{5.1}$$

où λ = + 1 pour la bande de conduction et λ = - 1 pour la bande de valence. La constante $v_F \sim c/100$ correspond à la vitesse des porteurs au voisinage des points de Dirac (on parle de vitesse de Fermi), indépendante de **k**. Elle traduit une spécificité très importante de la structure de bande du graphène: l'énergie est linéaire en **k** près des intersections des bandes de valence et de conduction.

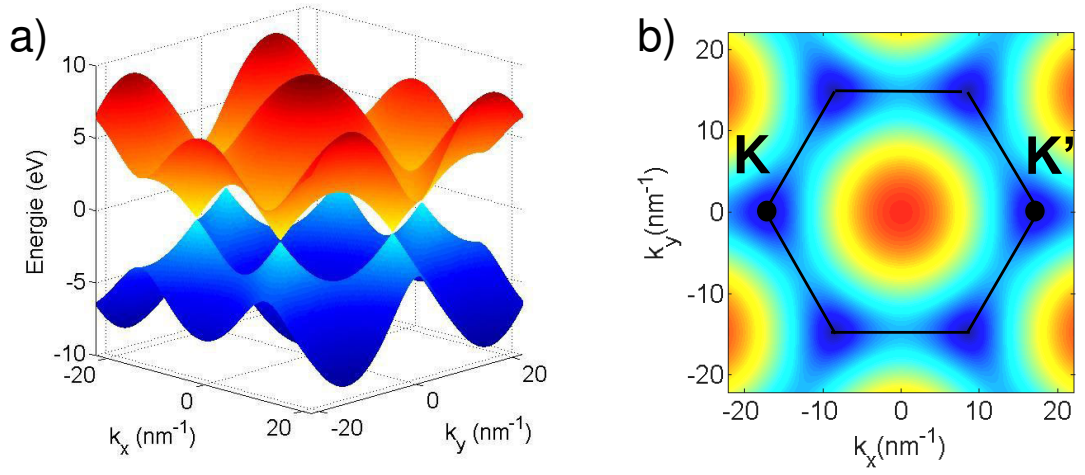


FIGURE 5.2 – Dispersion en énergie du graphène obtenue avec le modèle des liaisons fortes aux premiers voisins. a) En l'absence de dopage, le plan correspondant à l'énergie 0 correspond à la frontière entre la bande de valence pleine et la bande de conduction vide. L'intersection des bandes se fait aux points de Dirac (K, K' et points équivalents). La dispersion en énergie est linéaire au voisinage des points de Dirac. b) Bande de conduction. La coloration du bleu au rouge marque le passage des énergie les plus faibles aux énergies les plus élevées.

5.1.2 Propriétés électroniques et optiques

Cette structure de bande spécifique du graphène lui confère des propriétés qui pourraient être exploitées dans un grand nombre d'applications en optoélectronique des conducteurs transparents [157] aux photodétecteurs ultrarapides [158, 159] ou encore à l'usage comme absorbant saturable [160].

D'un point de vue électronique, la bande de conduction et la bande de valence se touchent aux points K et K' aux bords de la première zone de Brillouin. Sans dopage, le niveau de Fermi se trouve précisément à l'intersection des deux bandes (le point de Dirac). Le graphène est donc considéré comme un semi-conducteur à bande interdite nulle. Il peut également être vu comme un métal avec une densité d'états égale à zéro au niveau de Fermi. Cependant, le niveau de Fermi peut être facilement déplacé dans la bande de conduction et on peut ainsi obtenir d'excellentes propriétés de conduction. Au voisinage des points K et K', nous avons vu que la relation de dispersion est linéaire. Elle peut s'écrire sous une forme relativiste $\varepsilon(p) = \pm\sqrt{p^2 v_F^2 + m^2 v_F^4} = \pm p v_F$ avec une masse effective m nulle et une vitesse de l'ordre du centième de la vitesse de la lumière dans le vide. Les électrons se comportent comme des particules relativistes. Leur mobilité est extrêmement élevée, mesurée au-delà de 200 000 $\mathrm{cm}^2.\mathrm{V}^{-1}.\mathrm{s}^{-1}$ [161]. Les porteurs sont ainsi capables de parcourir des distances micrométriques sans être diffusés, ce qui rend leur étude très intéressante dans le régime de transport balistique [162].

D'un point de vue optique, le graphène présente une conductance optique universelle

$G_0 = e^2/4h$ [163]. Celle-ci est directement liée à la valeur de la transmission T d'une couche de graphène selon la relation $T \simeq 1 - \pi\alpha \simeq 97.7\%$, où $\alpha = G_0/(\pi\varepsilon_0 c)$ est la constante de structure fine. Une couche de graphène absorbe 2.3% de la lumière incidente sur une large gamme de fréquences autour du spectre visible. L'absorption du graphène est proportionnelle au nombre de couches. Cette spécificité permet par exemple d'en faire un absorbant saturable très peu sensible en fréquence, ce qui est par exemple très intéressant pour favoriser la blocage de modes passif de lasers [160].

Enfin, le graphène présente des propriétés mécaniques exceptionnelles [164]. La force de ces liaisons covalentes lui donne une résistance mécanique très élevée: sa résistance à la rupture est 200 fois celle de l'acier avec de plus de bonnes propriétés élastiques.

5.2 Contexte de notre étude

Les propriétés remarquables du graphène en font également un matériau prometteur dans le cadre de l'essor des technologies THz, en particulier pour son temps de réponse très rapide [158] et son coefficient d'absorption peu dépendant de la fréquence. Différents mécanismes et dipositifs pour la génération/détection de rayonnement THz à base de graphène ont ainsi été proposés. Les dispositifs pour la détection ont pour l'instant un développement plus marqué [165–169]. Il est donc d'autant plus intéressant d'étudier les mécanismes de génération THz par le graphène.

5.2.1 Graphène et THz

Les méthodes envisagées pour la génération de rayonnement THz à partir de graphène s'appuient sur l'excitation électrique ou optique de dispositifs à base de graphène. Les énergies de la gamme THz interviennent notamment par l'intermédiaire des transitions interbandes [170], de la bande interdite de graphène bicouches [171] ou de nanorubans de graphène [172, 173] ou encore des ondes plasmoniques [129, 174]. En particulier les plasmons, ondes de surface liées à l'oscillation collective des électrons, impliquent des énergies de la gamme THz dans le cas du graphène.Toutefois une onde électromagnétique en espace libre ne peut pas exciter directement les modes plasmoniques du graphène. C'est la structuration géométrique du graphène, par exemple un réseau de micro-rubans [175], qui permet une excitation efficace. La possibilité d'oscillateurs THz plasmoniques à base de graphène a été mise en avant dès 2007 [176]. Elle repose sur l'amplification des plasmons par émission stimulée associée à une transition interbande. Un avantage spécifique est que la fréquence THz de l'oscillation plasma peut être modifiée de diverses façons en changeant la densité de porteurs à l'aide d'une électrode ou en modifiant la structuration géométrique. L.Prechtel et ses collaborateurs ont démontré expérimentalement en 2012 la génération de THz sous excitation optique pulsée [177]. Le rayonnement émis a été interprété comme le résultat de l'oscillation d'un plasma électrons/trous dans un échantillon de graphène suspendu sur des électrodes métalliques. L'émission stimulée de photons THz est une autre voie de recherche. L'observation de lumière THz amplifiée par du graphène a été rapportée [178]. Dans cette étude, une population hors-équilibre de paires électrons trous photogénérée par des impulsions optiques est sondée par des impulsions THz. Le gain subi par une impulsion THz y est

interprété en terme d'amplification induite par une inversion de population transitoire.

Au-delà de ces possibilités pour la génération, les effets non-linéaires du graphène sont un nouveau domaine potentiel pour la génération de rayonnement THz. En effet, les propriétés non linéaires du graphène présentent des spécificités intéressantes au regard de celles des semiconducteurs ordinaires. La dispersion linéaire du graphène et la haute vitesse de Fermi des porteurs de charge se manifeste par l'apparition d'effets non-linéaires notables pour des champs électriques appliqués relativement peu élevés (estimé de l'ordre de 10^2-10^3 V/cm pour un échantillon de graphène avec un niveau de Fermi $E_F \sim 100$ meV [179]). Divers phénomènes non-linéaires ont été étudiés dans le graphène expérimentalement et théoriquement: génération d'harmoniques au second ordre [152, 180–183], au troisième ordre [180, 184–186] et plus généralement le mélange de fréquences [180, 184, 187–189]. Des études se sont plus spécifiquement intéressées aux courants photogénérés dans le graphène [1] : courants de bord [190], courants photogalvaniques [191] ou encore photon "drag" [192–194].
Il existe cependant peu de travaux expérimentaux sur la génération de rayonnement THz dans le graphène par des effets non-linéaires. Une conversion de fréquence a été utilisée pour générer un rayonnement THz par un effet non-linéaire d'ordre 3 [154]. Dans cette étude, des paires d'impulsions IR aux fréquences respectives ω et 2ω illuminent du graphène multicouche. Elles conduisent à la génération d'un courant électrique transitoire. La polarisation et la phase relative des impulsions ω et 2ω permettent de contrôler l'amplitude et la direction de ces courants.
En contraste, notre approche et celle de P.A. Obraztsov et collaborateurs [195] consiste à émettre un rayonnement THz par un effet d'ordre 2 dans un schéma plus simple d'excitation. Des échantillons de graphène sans structuration ni ajout de contacts métalliques sont illuminés par des impulsions fs IR. Un courant transitoire est généré dans le plan des couches et se manifeste par l'émission d'impulsions THz en champ lointain. En plus de la simplicité, l'intéret d'exploiter un effet d'ordre 2 est que la puissance d'excitation nécessaire est moindre. De plus, les effets d'ordre 2 sont couramment utilisés dans la technologie THz via les processus de rectification optique. Toutefois, ils reposent sur la non-centrosymétrie du matériau ce qui n'est pas le cas ici.

5.2.2 Effets du second ordre dans le graphène sous excitation optique

Afin de comprendre comment il est possible d'observer d'émission THz par le graphène sous excitation IR fs, nous effectuons ici une description des effets d'ordre 2 dans le graphène à l'aide de l'outil usuel des susceptibilités/conductivités [196]. Ce formalisme permet également de situer les différentes non-linéarités d'ordre 2 qui peuvent mener à la génération de rayonnement THz.

Pour l'étude de la réponse d'un milieu à un champ électrique appliqué $\mathbf{E}(t)$, l'approximation linéaire est très souvent suffisante. Elle consiste à considérer que la polarisation ou le courant induit dans le matériau a une dépendance linéaire avec l'amplitude du champ électrique appliqué. On a alors $\mathbf{j}^{(1)}(t) = \sigma^{(1)}\ \mathbf{E}(t)$. Cette approximation est va-

1. La liste des effets non-linéaires cités ici n'est pas exhaustive. Pour plus de détails, on pourra se reporter à la revue [26].

lable pour des champs modérés. Dans le cadre de notre étude, le graphène est exposé aux impulsions fs du laser Ti:Sa avec des puissances crêtes élevées. Il faut donc également considérer une réponse du matériau aux ordres plus élevés. On peut écrire le champ associé à une impulsion fs sous la forme:

$$\mathbf{E}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{E}(\omega) \mathrm{e}^{-i\omega t} d\omega \tag{5.2}$$

en négligeant les dépendances spatiales de $\mathbf{E}$(t) avec ω la fréquence. Le courant à l'ordre deux $\mathbf{j}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2)$ résultant des composantes de $\mathbf{E}$(t) aux fréquences ω_1 et ω_2 s'écrit alors [2]:

$$j_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \sigma_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \tag{5.3}$$

où les indices i, j, k représentent indifféremment les coordonnées spatiales x, y, z. Dans cette expression, les pulsations ω_1 et ω_2 peuvent être positives ou négatives. L'évolution temporelle du courant non-linéaire est à l'origine d'un rayonnement non-linéaire à la fréquence $\omega_1 + \omega_2$. L'amplitude du champ électrique rayonné est proportionnelle à la dérivée temporelle du courant. On voit d'après la relation 5.3 que le courant généré, et donc le champ rayonné au second-ordre, a une dépendance linéaire avec la puissance du faisceau absorbé.

Si $\sigma_{ijk}^{(2)}$ ne dépend que des fréquences alors cette grandeur est invariante par symétrie centrale. Par des arguments de symétrie pour un matériau centrosymétrique comme le graphène, on peut alors montrer que ceci implique des effets d'ordre 2 inexistants. Cependant, la propagation du champ dans un matériau centrosymétrique introduit une direction privilégiée donnée par le vecteur projeté $\mathbf{q}_{//}$ du vecteur d'onde $\mathbf{q}$ des photons incidents dans le plan de la couche de graphène. Cette direction privilégiée introduit une dépendance de $\sigma_{ijk}^{(2)}$ à $\mathbf{q}_{//}$ qui peut briser son invariance par symétrie centrale. La dépendance la plus simple de $\sigma_{ijk}^{(2)}$ avec $\mathbf{q}_{//}$ est alors telle que:

$$\sigma_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2, \mathbf{q}_{//}) = \sigma_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2, 0) + \Phi_{ijk\mu}(\omega_1, \omega_2) q_\mu \tag{5.4}$$

où $\Phi_{ijk\mu}$ permet d'introduire la contribution linéaire en $\mathbf{q}_{//}$ à la conductivité [26] (q_μ composantes de $\mathbf{q}_{//}$). Le courant induit s'écrit alors:

$$j_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \mathbf{q}_{//}) = \left[\sigma_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2, 0) + \Phi_{ijk\mu}(\omega_1, \omega_2) q_\mu \right] E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \tag{5.5}$$

Ainsi la non-linéarité du second-ordre a deux contributions très distinctes. Intéressons nous maintenant aux mécanismes de différence de fréquences (ω_1 et ω_2 de signes opposés). Ce sont ceux qui peuvent conduire à une émission aux fréquences THz avec une excitation aux fréquences optiques.

2. Selon la convention de notations choisie ici :
$\sigma_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) = \sum_{\substack{j=x,y,z \\ k=x,y,z}} \sigma_{ijk}^{(2')} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2)$

- $\sigma^{(2)}_{xyz}(\omega, 0)$ décrit les phénomènes liés aux écarts à la centrosymétrie dans une couche de graphène avec des défauts, connus sous le nom d'effets photogalvaniques [197]. Les effets photogalvaniques ne peuvent donc se manifester dans le graphène que dans le cadre d'une brisure locale de la symétrie par inversion. C'est le cas par exemple à proximité des bords ou sous l'influence d'un substrat irrégulier. Les effets photogalvaniques ont été observés expérimentalement [191] dans un échantillon de graphène multicouche.
- La contribution à la conductivité linéaire en $\mathbf{q}_{//}$ peut quant à elle exister indépendamment du caractère centrosymétrique ou non. Via cette contribution, il a été démontré qu'une excitation monochromatique à la fréquence ω peut conduire à la génération de la seconde harmonique (à la fréquence $\omega + \omega$) [198]. De même, la génération d'un courant continu (à la fréquence $\omega - \omega$) est possible. Ce dernier effet peut être vu comme un transfert de quantité de mouvement des photons incidents aux électrons. Il est connu sous le nom de transfert d'impulsions photonique ("photon drag" en anglais) et une théorie a été développée pour le graphène récemment [192–194]. C'est cet effet que nous allons mettre en évidence dans le graphène via la génération de rayonnement THz.

L'effet photon drag n'est donc possible que si le graphène est illuminé avec un angle d'incidence non nul (projection $\mathbf{q}_{//}$ dans le plan des couches non nulle) et se manifeste par la génération d'un champ électrique d'amplitude proportionnelle à la puissance du faisceau incident. Il a été mis en évidence dans le graphène pour une excitation monochromatique intrabande ($\hbar\omega < 2\mathrm{E}_F$) [191], et interbande [195]. Il a été suggéré [194] que dans ces régimes, le courant continu émis est très sensible au niveau de Fermi qui permet d'expliquer l'émission observée. Contrairement à ces travaux, nous nous intéressons ici au cas d'une excitation impulsionnelle et interbande bien au dessus du niveau de Fermi ($\hbar\omega >> 2\mathrm{E}_F$) et étudions la possibilité d'une émission THz.

5.3 Émission THz sous excitation optique

Dans cette section, les expériences pour tester la conversion de fréquences de l'IR vers le THz dans le graphène sont décrites. La sensibilité de la non-linéarité d'ordre 2 du graphène aux différents paramètres de l'excitation IR (polarisation et incidence du faisceau notamment) est également étudiée.

5.3.1 Montage expérimental

Les échantillons de graphène que nous avons utilisés sont issus de collaborations avec Claire Berger du *Georgia Tech* à Atlanta et Clément Faugeras du *Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses* à Grenoble. Ces échantillons (désignation MEG30TL) sont produits à partir d'un cristal de SiC (polytype 4H-SiC). La croissance a été effectuée sur la face C (000-1) d'un substrat de SiC de 430 μm d'épaisseur. La face C, orthogonale à l'axe-c du cristal est celle que nous exposons à l'excitation optique. L'échantillon de graphène présente environ 35 couches. Le niveau de Fermi de la couche la plus proche de l'interface avec le substrat atteint environ 250 meV et la grande majorité des autres couches présente un dopage résiduel à environ 8 meV. Ce substrat

présente en particulier l'avantage d'être quasi-transparent dans la gamme THz. Cette propriété rend plus aisée la caractérisation du rayonnement émis à l'aide du montage de spectroscopie dans le domaine temporel (le signal THz est transmis à travers le substrat de SiC et peut être collecté). La méthode de croissance de l'échantillon et la mesure de son niveau de Fermi sont détaillées dans l'annexe D.

Le schéma expérimental, reporté sur la figure 5.3 est proche de celui utilisé dans les chapitres précédents. La source dont nous souhaitons étudier le rayonnement est cette fois ci le graphène épitaxié sur SiC. La non-linéarité dans le graphène est induite par le faisceau IR. Le dispositif est donc adapté pour changer l'incidence, la polarisation et la puissance du faisceau IR incident sur le graphène.

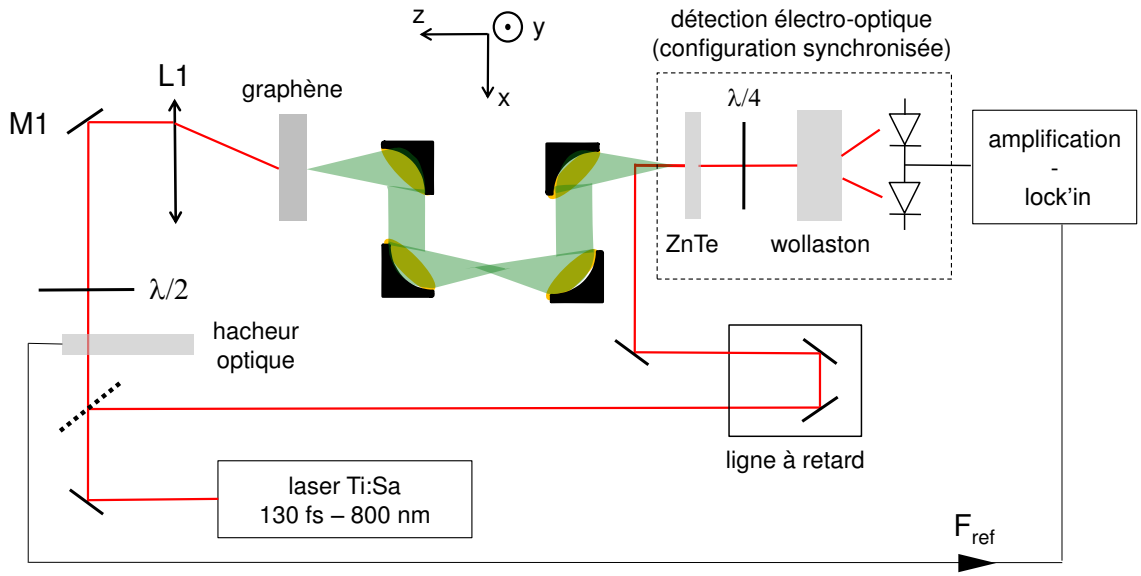


FIGURE 5.3 – Montage expérimental. Le faisceau IR illumine l'échantillon de graphène dont l'émission THz (représentée en vert) est collectée est propagée via les miroirs paraboliques (le cheminement de l'onde THz se fait sous enceinte purgée). Le profil temporel du champ électrique THz rayonné est obtenu grâce à la détection électro-optique dans sa configuration synchronisée.

Le faisceau IR issu du laser Ti:Sa est séparé en deux parties à l'aide d'un séparateur de faisceau optique. Le sous-faisceau de puissance la plus élevée (environ 700 mW) est envoyé vers le graphène multicouche tandis que le second faisceau (environ 300 mW) est dédié à l'échantillonnage électro-optique. L'échantillon de graphène est placé à la focale du miroir parabolique de collection. La non-linéarité est potentiellement très sensible à l'incidence du faisceau IR. Nous avons étudié l'effet de l'incidence avec un angle maximale de 40°. Afin d'effectuer des mesures plus systématiques de l'influence de l'angle d'incidence, une lentille asphérique de focale 50 mm (distance focale arrière de 38 mm) est ajoutée. Le miroir M1 est monté sur une platine de translation suivant la direction **x** ce qui permet ainsi de changer l'angle d'incidence dans la gamme $[-27°; +27°]$. L'échantillon de graphène est placé au point focal de la lentille de sorte que le point d'impact

du faisceau IR ne change pas lorsque l'on déplace le miroir M1. Une lame demi-onde est ajoutée pour modifier la polarisation du faisceau IR. La polarisation rectiligne en sortie du laser Ti :Sa est suivant **x** (P) et peut ainsi être continûment modifiée de P à S après la lame demi-onde. La non-linéarité a un effet différent sur les différentes composantes du champ THz rayonné. Pour détecter séparément les polarisations du champ THz émis suivant **x** et **y**, un polariseur THz à grille (non représenté) est ajouté sur le chemin du faisceau THz. L'orientation du cristal de détection (ZnTe épaisseur 1 mm) est ajusté pour détecter l'une ou l'autre des polarisations THz émises. L'usage de la détection synchrone nécessite de moduler le signal THz émis. Ceci est fait via l'ajout d'un hacheur optique (fréquence de modulation - environ 1.7 kHz) sur le chemin du faisceau IR qui illumine le graphène.
Les différentes notations angulaires utilisées par la suite sont représentées sur la figure 5.4. θ est l'angle de polarisation IR. La valeur $\theta = 0°$ correspond à une polarisation du champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence notée S par la suite (dit transverse électrique) et $\theta = 90°$ correspond à une polarisation du champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence notée P (dit transverse magnétique).ϕ représente l'angle d'incidence et φ l'angle azimutal (une autre monture, rotative, est utilisée pour faire varier l'angle azimutal).

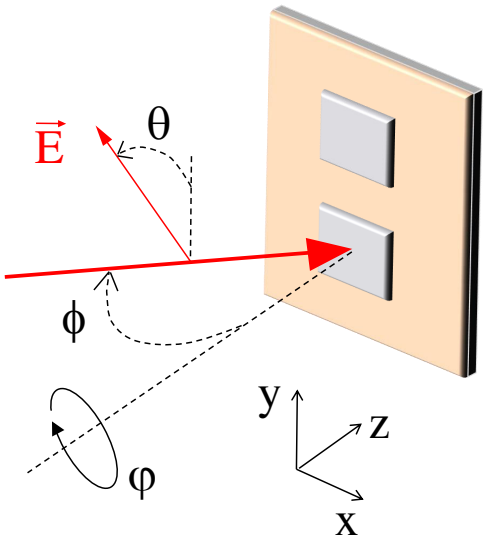


FIGURE 5.4 – Représentation schématique de l'excitation optique. Le faisceau IR incide avec un angle d'incidence ϕ illumine un échantillon de graphène ou un échantillon de SiC sans graphène (utile pour la caractérisation du substrat - voir annex E) qui peuvent être fixés sur une même monture (orange) à l'aide de laque d'argent. La monture est elle-même fixée sur une platine de translation suivant la direction **y**.

En résumé, le montage expérimental permet de changer la polarisation rectiligne, l'angle d'incidence et la puissance du faisceau IR. L'angle azimutal de l'échantillon également peut être modifié. La détection électro-optique permet de mesurer séparément les champs THz polarisés suivant les directions **x** et **y**. Toutes les mesures décrites par la suite sont effectuées à température ambiante.

5.3.2 Signatures de l'effet photon drag

L'allure du champ THz rayonné par le graphène est représenté sur la figure 5.5 a) en vert pour un angle d'incidence Φ=25° et une polarisation S du faisceau IR. Ce résultat est important: il montre que l'excitation du graphène avec les impulsions fs IR permet la génération d'impulsions THz cohérentes.

L'impulsion THz émise est quasi-monocycle avec une durée totale de 1.5 ps. La transformée de Fourier rapide du signal en temps (figure 5.5 b)) renseigne sur les différentes composantes spectrales présentes. Le spectre couvre une largeur de 2.5 THz avec une fréquence centrale située à 1.25 THz. Les contributions spectrales au-delà de 3 THz sont éliminées du fait de la réponse nulle de la détection électro-optique pour le cristal de ZnTe d'épaisseur 1 mm utilisé ici. Le SiC apporte une faible contribution au signal THz détecté, que nous avons étudiée au prélable et qui est décrite en détails dans l'annexe E. Cette contribution est sensible à la polarisation et est mesurée séparément sur un substrat de SiC identique avant la croissance des couches de graphène. Le champ électrique THz mesuré est très majoritairement issu de la présence des couches de graphène, comme on peut le voir sur la figure 5.5.

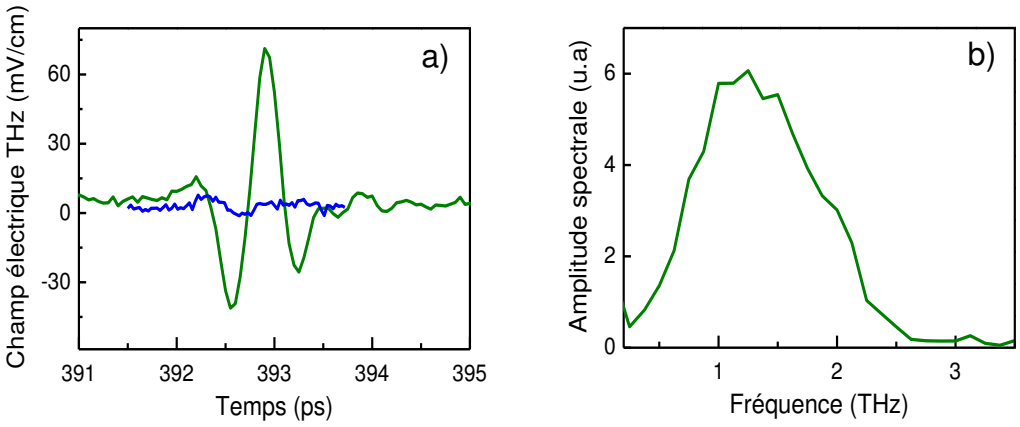


FIGURE 5.5 – Émission THz du graphène multicouches pour une excitation IR polarisée S, un angle d'incidence Φ= 25° et une fluence de 35 μJ/cm^2. La détection électro-optique est ajustée de sorte à mesurer l'émission THz polarisée suivant la direction **x**. a) Profil temporel du champ électrique THz obtenu . La courbe bleue correspond à la mesure faite sur le substrat de SiC seul (pas de couches de graphène) dans la fenêtre temporelle [391.5 - 393.7] ps. b) Spectre obtenu par transformée de Fourier rapide du signal en temps.

L'émission observée correspond à un effet non-linéaire dont l'ordre renseigne sur l'origine physique de l'émission. Le champ THz émis a donc été mesuré en fonction de la puissance du faisceau IR incident. En augmentant la puissance du faisceau IR, on observe que la forme de l'impulsion THz émise reste la même, mais que son amplitude

s'accroît. L'évolution de l'amplitude maximale du champ électrique de l'impulsion THz en fonction de la fluence optique est reportée sur la figure 5.6. Il apparaît clairement une dépendance linéaire de l'amplitude du champ THz avec la fluence optique. Cette dépendance est la signature d'un effet d'ordre 2: le champ électrique THz est proportionnel au carré du champ électrique IR. La valeur maximale du champ électrique THz de 70 mV/cm est obtenue pour une fluence optique de 35 μJ/cm^2. En comparaison, on peut retenir que les impulsions large bande émises par des antennes photoconductrices inter-digitées émettent de l'ordre de 10^2-10^3 V/cm pour une puissance IR d'excitation comparable. [199].

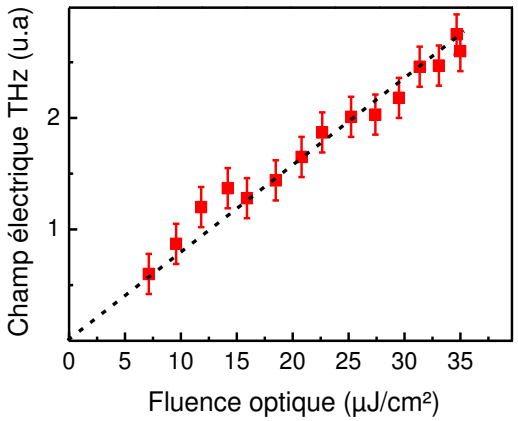


FIGURE 5.6 – Amplitude du champ électrique THz en fonction de la fluence optique du faisceau qui illumine le graphène. Les carrés rouges correspondent aux mesures expérimentales et les barres d'erreurs correspondent à l'écart-type associé aux fluctuations de bruit. La ligne noire tiretée souligne la dépendance linéaire du champ électrique THz rayonné avec l'intensité du faisceau IR.

Afin de déterminer l'origine physique de l'émission observée, notons tout d'abord que le champ THz que nous mesurons est cohérent. En effet, la phase de l'impulsion THz générée est identique pour chaque impulsion IR d'excitation. Cette propriété nous permet de mesurer l'émission THz à l'aide de la détection électro-optique. La combinaison de la cohérence des impulsions THz émises et de leur dépendance avec la puissance IR incidente permet d'éliminer plusieurs mécanismes possibles pour l'origine de l'émission observée.
Tout d'abord, la cohérence du signal exclut comme candidat pour l'émission THz observée une recombinaison interbande entre trous et électrons générés. L'excitation optique IR génère des populations hors équilibre très éloignées du niveau de Fermi (800 nm correspond à 1.55 eV). Pour une recombinaison interbande radiative à des énergies de quelques meV (1 THz = 4.1 meV), les porteurs photogénérés doivent donc relaxer non radiativement avant d'émettre. Les deux mécanismes dominants pour la relaxation sont l'interaction électron-électron et la diffusion par phonons optiques [200, 201]. L'interaction électron-électron conserve la distribution de quantité de mouvement apporté par les impulsions fs ce qui n'est pas le cas de la diffusion par phonons optiques.

Ce dernier processus rend donc impossible la mesure d'un champ cohérent dû à une transition radiative interbande aux fréquences THz. Le temps de vie associé à la diffusion phonon a par ailleurs été estimé de l'ordre de la centaine de fs [201–203]. Ceci signifie que les porteurs une fois photogénérés, vont relaxer sur des échelles de temps très courtes. Le transitoire de courant est donc attendu très court.
Les effets plasmoniques, considérés comme une voie prometteuse pour la génération de rayonnement THz [204] ne correspondent pas non plus aux observations faites ici. En effet, l'excitation des plasmons requiert une structuration géométrique particulière de l'échantillon graphène/substrat, pour rendre efficace le couplage des photons incidents aux modes plasmoniques.

Pour révéler une éventuelle non centrosymétrie de l'échantillon, nous avons modifié l'angle azimutal du graphène à polarisation et incidence IR fixes. Aucun axe privilégié de symétrie sur l'ensemble de la surface de l'échantillon n'a été observé. La non-linéarité du second ordre qui conduit à la génération d'un faisceau à la différence de fréquences dans le graphène peut donc avoir deux contributions distinctes explicitées dans l'équation 5.5: l'effet photogalvanique (lié à une brisure locale de la symétrie par inversion), l'effet photon drag induit par un transfert d'impulsions des photons aux électrons. Nous avons vu dans la section 5.2.2 que le courant lié à l'effet photon drag est proportionnel à la projection du vecteur d'onde du photon dans le plan des couches de graphène. Pour discriminer l'un des deux effets, nous avons donc étudié l'effet de l'incidence du faisceau IR sur le champ électrique THz mesuré. On peut voir sur la figure 5.7 a) et b), que les profils temporels sont opposés en signe pour des angles d'incidence du faisceau IR (polariation S) θ de 14° et -14° par rapport à la normale de l'échantillon. Il s'agit d'un résultat marquant car il met en avant une signature forte de l'effet photon drag. En effet, on s'attend à ce résultat dans le cadre d'un transfert d'impulsion photonique car ce changement d'angle conduit à deux projections du vecteur d'onde IR opposées. De plus, à incidence normale, la projection du vecteur d'onde IR dans la plan est nulle et aboutit à un effet photon drag inexistant. C'est ce qu'on observe sur la figure 5.7 c). La dépendance de l'amplitude crête du champ est compatible avec une fonction sinus qui suit la dépendance de la projection de l'impulsion des photons avec l'angle θ en $\mathbf{q}\sin\theta$.

La dépendance observée avec l'angle d'incidence permet finalement de rejeter l'effet photogalvanique comme origine possible de l'émission THz observée. En effet, la polarisation du faisceau IR est ici S. Cela signifie que les composantes du champ électrique infrarouge ne sont pas modifiées lorsque l'on change l'angle d'incidence. Or, l'effet photogalvanique correspond à une brisure locale spatiale de la symétrie du matériau: sa signature est donc similaire à celle d'un matériau non-centrosymétrique. Dans ce contexte, la forme du champ non-linéaire rayonné ne peut changer que si les composantes du champ électrique IR changent, ce qui n'est pas le cas ici. L'ensemble des mesures faites ici permet donc de mettre en évidence un transfert de quantité de mouvement des photons aux électrons qui permet l'émission d'un rayonnement THz.

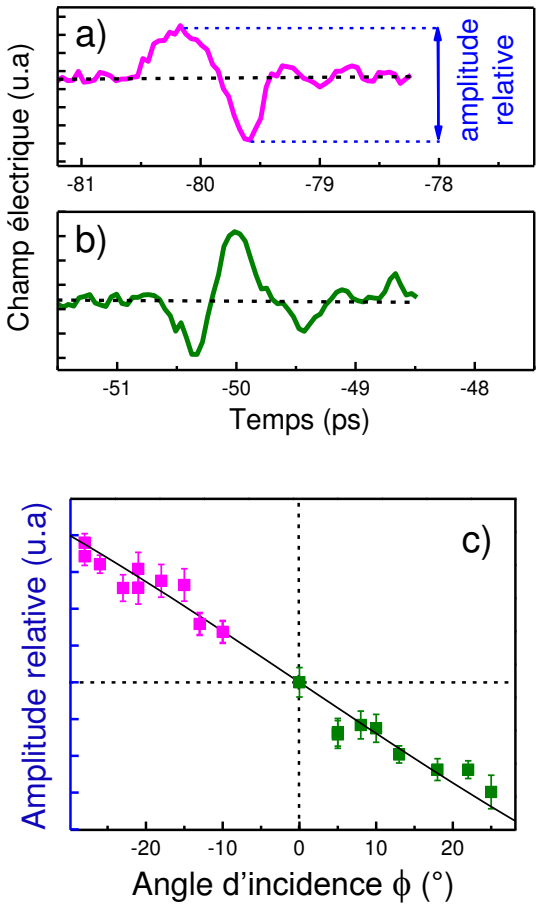


FIGURE 5.7 – Evolution de l'émission THz du graphène multicouche en fonction de l'angle d'incidence Φ du faisceau IR polarisé S a) angle d'incidence de -14°. b) angle d'incidence de +14°. c) Évolution de l'amplitude crête de l'impulsion THz en fonction de l'angle d'incidence. Le changement du coefficient de réflexion du faisceau IR avec l'angle d'incidence est pris en compte.

5.3.3 Influence de la polarisation IR

De même que pour l'angle d'incidence, l'émission THz observée est très sensible à la polarisation du faisceau IR incident qui sonde la nature précise de la non-linéarité. Il est donc intéressant d'analyser le comportement de l'émission THz avec la polarisation IR qui a une signature spécifique pour l'effet photon drag: l'orientation et l'amplitude des courants induits en dépendent.

Expression des composantes spatiales du courant induit

Des arguments de symétrie pour le graphène monocouche (voir la revue [26] pour une description plus complète) permettent d'exprimer la dépendance générale des composantes des courants induits (et donc du champ émis) par l'effet photon drag avec les composantes du champ électrique IR incident selon :

$$j_x = Fq_x \frac{|E_x|^2 + |E_y|^2}{2} + Gq_x \frac{|E_x|^2 - |E_y|^2}{2} \tag{5.6}$$

$$j_y = Gq_x \frac{E_x E_y^* + E_x^* E_y}{2} - Hq_x P_{circ} \left(|E_x|^2 + |E_y|^2\right) \tag{5.7}$$

où F,G et H sont des constantes. Dans les expressions 5.6 et 5.7, on considère la situation où un faisceau illumine un plan de graphène confondu dans le plan (xy) avec le vecteur d'onde contenu dans le plan (xz). P_{circ} correspond au degré d'ellipticité de la polarisation du faisceau incident et est donné par la relation:

$$P_{circ} = i \frac{E_x E_y^* - E_x^* E_y}{|E_x|^2 + |E_y|^2}$$

P_{circ} est nul pour une polarisation rectiligne (notre cas) et égal à + ou -1 pour une polarisation circulaire.

Mesures

Le champ THz que nous mesurons respecte ces symétries. Pour l'illustrer, nous avons représenté sur la figure 5.8 a) le résultat de la mesure du champ THz polarisé suivant **x** avec une polarisation d'excitation S et polarisé suivant **x** avec une polarisation d'excitation P. Avec ces deux profils temporels, il est possible en effectuant une combinaison linéaire des relations 5.6 et 5.7 de déduire le profil temporel du champ polarisé suivant **y** pour n'importe quel angle de polarisation θ du faisceau IR:

$$j_y(\theta) = \cos\theta \sin\theta \left(\frac{j_{x,P}}{1 - R_P} - \frac{j_{x,S}}{1 - R_S} \right)$$

où θ correspond à l'angle de polarisation IR ($\theta = 0°$ correspond à une polarisation S) choisi pour la mesure de j_y. On tient compte ici du coefficient de réflexion en énergie différent pour les polarisations infrarouge P et S [3]. Ainsi, le champ THz rayonné suivant **y** peut s'écrire :

$$E_y^{THz}(\theta) = \cos\theta \sin\theta \left(\frac{E_{x,P}^{THz}}{1 - R_P} - \frac{E_{x,S}^{THz}}{1 - R_S} \right) \tag{5.8}$$

3. Pour les mesures effectuées ici à un angle d'incidence de 25°, R_S=0.34 et R_P=0.27.

On peut voir sur la figure 5.8 b) que la relation 5.8 est effectivement bien vérifiée sur l'exemple du champ électrique THz mesuré suivant la direction **y** comparé à son estimation à partir de la ralation 5.8 avec les champs mesurés suivant la direction **x**. D'un point de vue des symétries, le graphène multicouches sur SiC se comporte donc de la même manière qu'un échantillon de graphène monocouche. Dans le même sens, les travaux de J. Hass et collaborateurs ont montré que le graphène sur SiC a les mêmes propriétés électroniques que du graphène monocouche [205]. Par commodité, le modèle développé par la suite pour l'interprétation des expériences se base donc sur une description de graphène monocouche.

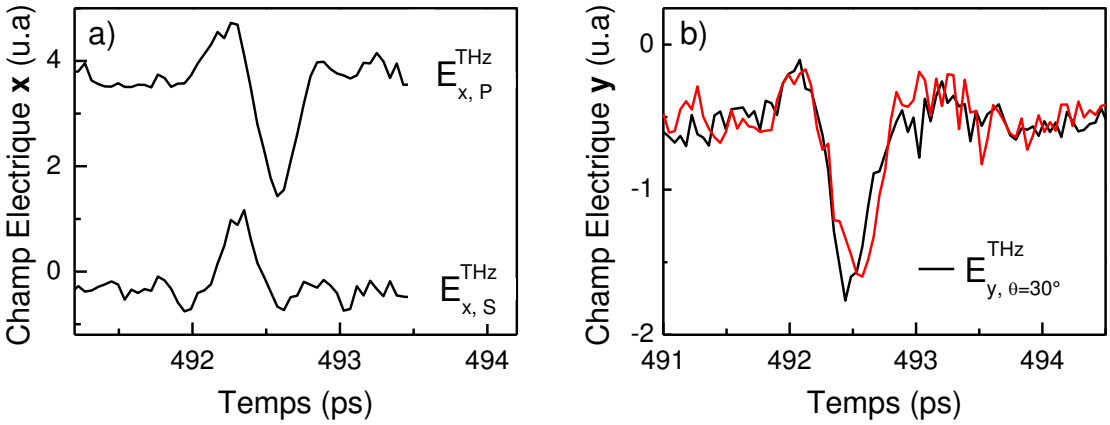


FIGURE 5.8 – Profil THz rayonné sous incidence de 25° suivant les directions **x** et **y**. Un polariseur THz à grille est ajouté sur le trajet du faisceau THz pour mesurer séparément les composantes orthogonales de polarisation du champ électrique THz. a) Mesure du champ THz polarisé suivant **x** pour une polarisation S du faisceau IR (courbe du bas) et une polarisation P du faisceau IR (courbe du haut). b) Profil mesuré du champ THz polarisé suivant **y** (courbe noire) pour une polarisation du faisceau infrarouge $\theta = 30°$. En rouge est calculé ce même champ à partir des profils de la courbe a) en utilisant la relation 5.8.

En modifiant la polarisation du faisceau IR, nous pouvons également voir que l'allure du champ mesuré suivant la polarisation **x** est fortement modifiée (figure 5.9). Aucun résultat théorique n'anticipe ce changement de forme. De plus, la contribution au champ due à l'émission du substrat (en orange) est trop faible pour expliquer cette variation. Le changement de forme traduit une réponse spectrale du graphène différente avec la polarisation IR. Nous verrons dans la section 5.4 que cette sensibilité à la polarisation IR est un nouvel outil pour analyser la dynamique de relaxation des électrons et des trous photogénérés.

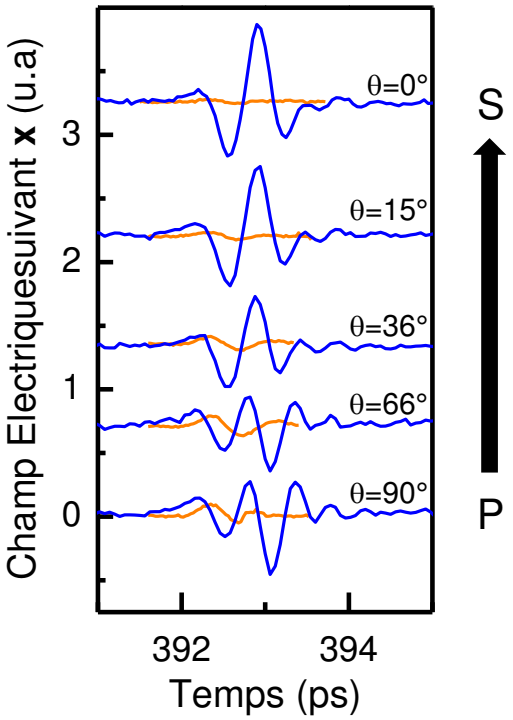


FIGURE 5.9 – Profil temporel de l'émission THz du graphène (en bleu) mesuré suivant la direction **x** en fonction de la polarisation IR pour un angle d'incidence de θ=25°. Les différentes courbes correspondent à des polarisations IR différentes entre P et S. Les courbes en orange correspondent à la contribution du substrat de SiC.

5.4 Modélisation

L'excitation optique pulsée du graphène permet donc la génération d'impulsions THz. Cette émission résulte de l'effet photon drag, transfert de l'impulsion des photons aux électrons. L'origine microscopique de la génération THz est liée directement à la structure de bande du matériau. L'excitation optique crée une population transitoire de paires électrons/trous. L'existence d'un courant net nécessite que les courants induits d'électrons et de trous ne se compensent pas et ceci n'est possible que si les électrons et les trous se comportent différemment. Dans cette section, nous allons voir que l'interprétation des observations expérimentales nécessite une description fine de la structure de bande du graphène.De plus, nous constaterons que l'émission THz observée s'avère également une sonde précise des mécanismes de relaxation des trous et électrons. Le modèle décrit dans cette section a été développé par Simon Huppert et Robson Ferreira, de l'équipe *Théorie* du LPA.

5.4.1 Description microscopique

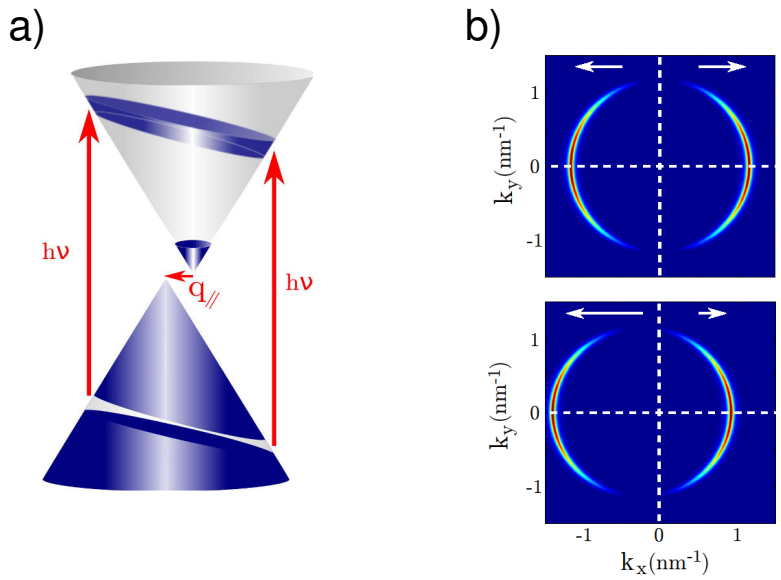


FIGURE 5.10 – Représentation schématique de l'effet photon drag. a) Distributions d'électrons et de trous photogénérés dans le régime quantique (interbande) sous illumination à incidence oblique. b) Distribution d'électrons photogénérée (en code couleur) à incidence normale (panel haut) et à incidence oblique (panel bas) dans l'espace réciproque. les flèches blanches représentent l'impulsion totale associée à chacun des deux lobes ($k_x > 0$ et $k_x < 0$).

Le mécanisme de photon drag dans le graphène est représenté sur la figure 5.10 a). L'excitation interbande, à des énergies très supérieures au niveau de Fermi génère une distribution hors-équilibre d'électrons et de trous. La distribution d'électrons pour une polarisation infrarouge P est illustrée sur la figure b). A incidence normale (panel haut), les impulsions fs génèrent une distribution de populations dans l'espace réciproque sy-

métrique par symétrie centrale autour du point ($k_x = 0\,;\, k_y = 0$). Ainsi, le courant net des électrons est nul. En revanche, à incidence oblique (panel bas), la projection de $\mathbf{q}$ dans la plan des couches de graphène (notée $q_{//}$) est non nulle. La symétrie est brisée et les courants induits par les populations à $k_x > 0$ et $k_x < 0$ ne se compensent plus. Un courant d'électron apparaît. La direction et l'amplitude du courant sont modifiées par la polarisation IR, qui détermine la position des populations photogénérées dans l'espace réciproque. Afin de décrire quantitativement le profil temporel de l'émission observée et de comprendre ses mécanismes sous-jacents, nous avons calculé le courant transitoire $\mathbf{j(t)}$ créé dans une monocouche de graphène par une impulsion optique dans le cadre du formalisme de la matrice densité. Nous donnons ici les étapes clés du calcul effectué. Pour plus de détails, on peut se reporter à la référence [206].

L'expression du champ électrique associé à une impulsion fs est:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \Re\left\{E_0 \mathrm{e}^{-t^2/2\tau^2}\mathrm{e}^{i\mathbf{qr}-i\omega t}\right\}\boldsymbol{\varepsilon} \tag{5.9}$$

où en particulier τ=110 fs est la largeur à 1/e des impulsions IR fs, $\omega/2\pi$ la fréquence centrale de l'impulsion, $\mathbf{q}$ l'impulsion des photons incidents et $\boldsymbol{\varepsilon}$ un vecteur unitaire correspondant à la polarisation linéaire du champ électrique IR. Le hamiltonien du système $H = H_0 + H_1$ peut être séparé en deux contributions. H_0 permet de décrire la distribution en énergie des électrons à l'équilibre, c'est à dire avant l'illumination par une impulsion fs. H_1 correspond au terme d'interaction avec le champ électrique IR et peut se mettre sous la forme :

$$H_1 = \frac{e}{2m_0}\left(\mathbf{A}(\mathbf{r},t).\mathbf{p} + \mathbf{p}.\mathbf{A}(\mathbf{r},t)\right) \tag{5.10}$$

où $\mathbf{p}$ est la quantité de mouvement d'un électron. $\mathbf{A}(\mathbf{r},t)$ le potentiel vecteur. Le courant induit et le champ THz rayonné sont respectivement donnés par :

$$\mathbf{j(t)} = \frac{e}{m_0}\sum_{\mathbf{k},\lambda,\mathbf{k}',\lambda'}\langle\mathbf{k},\lambda|\mathbf{p}|\mathbf{k}',\lambda'\rangle\langle\mathbf{k}',\lambda'|\rho|\mathbf{k},\lambda\rangle \tag{5.11}$$

$$E_{THz}(t) \propto \frac{\partial\mathbf{j(t)}}{\partial t} \tag{5.12}$$

Dans l'équation 5.11, $|\mathbf{k},\lambda\rangle$ sont les états propres du système sont obtenus par le modèle des liaisons fortes [24]. Le courant et le champ THz rayonné sont donc calculés à partir de la donnée des états propres $|\mathbf{k},\lambda\rangle$ et de ρ(t). L'évolution temporelle de la matrice densité est obtenue par un développement perturbatif en H_1, suivant l'équation :

$$i\hbar\frac{\partial\rho^{(n)}}{\partial t} = [H,\rho^{(n)}] - i\hbar\Gamma^{(n)}\rho^{(n)} \tag{5.13}$$

La constante $\Gamma^{(n)}$ permet d'introduire de manière phénoménologique des pertes. Le calcul est mené jusqu'à l'ordre n=2 de la matrice densité $\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)}$. Les éléments de la matrice $\rho^{(2)}$ correspondent aux effets du second ordre en champ électrique appliqué et sont donc ceux qui permettent de modéliser l'effet photon drag.

5.4.2 Symétrie électrons/trous

Avec cette description, on peut calculer numériquement l'expression du courant transitoire des électrons photogénérés dans la bande de conduction. Il faut pour cela déterminer précisement les états du systeme.

Le motif du réseau de Bravais associé au graphène est constitué d'un atome A et d'un atome B (voir figure 5.11). La fonction d'onde de Bloch $|\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$ est donc séparée en deux contributions: l'une associée aux atomes A $|\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$ et l'autre aux atomes B $|\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$. Ainsi [24]:

$$|\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = c^A_{\mathbf{k}}|\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle + c^B_{\mathbf{k}}|\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$$

Les fonctions $|\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$ et $|\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$ sont définies selon :

$$|\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{R}=n\mathbf{a}_1+m\mathbf{a}_2} \mathrm{e}^{i\mathbf{k}.\mathbf{R}}|\Phi(\mathbf{r}-\mathbf{R})\rangle$$
$$|\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{R}=n\mathbf{a}_1+m\mathbf{a}_2} \mathrm{e}^{i\mathbf{k}.\mathbf{R}}|\Phi(\mathbf{r}-\mathbf{R}-\boldsymbol{\delta_3})\rangle$$

où Φ est la fonction d'onde atomique de l'orbitale p_z.

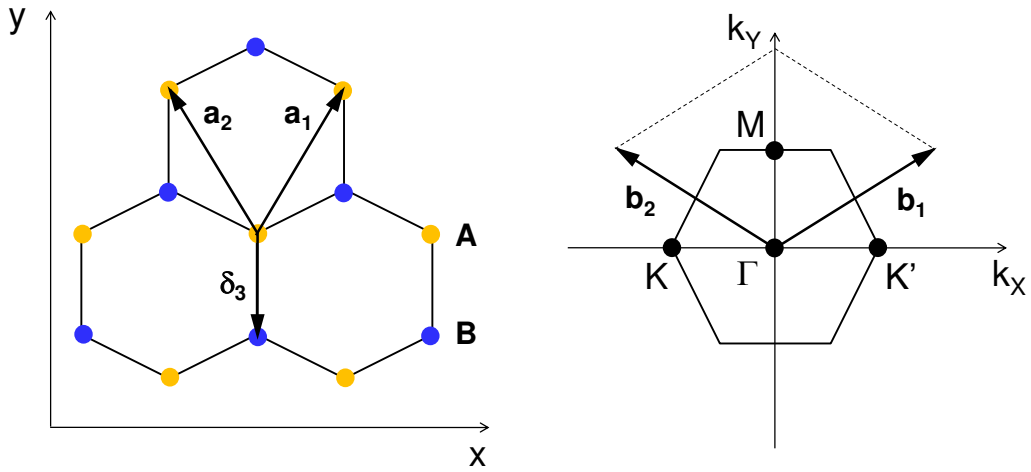


FIGURE 5.11 – Structure cristallographique du graphène dans l'espace réel (gauche) et dans l'espace réciproque (droite). Dans le réseau en forme de "nid d'abeille", deux types d'atomes A (en jaune) et B (en bleu) coexistent avec des environnements différents. Dans l'espace réciproque, les cônes de Dirac sont situés aux points K et K'.

Les énergies $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ solutions de l'équation de Schrödinger sont obtenues avec le jeu d'équations:

$$\langle\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|H|\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = \varepsilon_{\mathbf{k}}\langle\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$$
$$\langle\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|H|\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = \varepsilon_{\mathbf{k}}\langle\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle$$

La précision sur la relation de dispersion $\varepsilon_{\mathbf{k}}(\mathbf{k})$ dépend donc des hypothèses faites sur le couplage électronique entre les atomes du réseau. Le couplage entre les atomes A et B s'écrit:

$$\langle \Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|H|\Psi^B_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = -t\gamma_{\mathbf{k}} \tag{5.14}$$

Il correspond à l'interaction d'un atome (par exemple B) avec ses voisins immédiats (trois atomes A). Le paramètre t $\sim$ 2.97 eV [24] quantifie ce couplage et $\gamma_{\mathbf{k}}$ est un facteur géométrique [4]. Le couplage entre les atomes A (ou B) peut s'écrire:

$$\langle \Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|H|\Psi^A_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\rangle = E_0 - t`(|\gamma_{\mathbf{k}}|^2 - 3) \tag{5.15}$$

E_0 correspond à l'énergie de l'atome A seul et t' = -0.073 eV [24] correspond au couplage d'un atome A avec ses 6 atomes A voisins les plus proches (voir figure 5.11)): on parle alors de couplage aux seconds voisins. On remarque immédiatement que le couplage au seconds voisins t' est très faible par rapport au couplage aux premiers voisins t. Pour cette raison, dans la majorité des descriptions de la structure de bande du graphène, on ne tient pas compte du couplage aux seconds voisins. On distingue alors les modèles de liaisons fortes dits "aux premiers voisins" ou "aux seconds voisins".

Suivant la description la plus usuelle du graphène, on peut donc calculer numériquement à partir du modèle des liaisons fortes aux premiers voisins l'expression du courant transitoire de la population d'électrons photogénérés dans la bande de conduction par une impulsion fs. Le profil temporel du courant de la bande de conduction est reporté sur la figure 5.12 a). On suppose ici un temps de vie des électrons $1/\Gamma^{(2)}$= 170 fs. $\Gamma^{(2)}$ correspond à l'inverse du temps de vie de la population hors équilibre. La valeur choisie ici est dans la gamme de celles déterminées par précédents travaux [201–203] avec un ordre de grandeur à 100 fs. Le profil est marqué par une montée dont la durée de 150 fs est limitée par la largeur de l'impulsion fs. La chute de courant est liée à la relaxation par phonons optiques avec un temps caractéristique $1/\Gamma^{(2)}$. Ce processus de relaxation est le mécanisme dominant qui détruit la direction privilégiée du vecteur d'onde de la population d'électrons hors équilibre [201]. Il conduit à un transitoire de courant avec une durée totale du champ THz rayonné très brève, de l'ordre de 600 fs.

Le courant des électrons de la bande de valence (courant de trous) est représenté sur la figure b) en trait tireté. On remarque que le courant de trous est exactement opposé à celui des électrons de la bande de conduction. Le courant total induit dans le plan de graphène par l'excitation IR est donc strictement nul. En effet, dans le cadre du modèle des liaisons fortes aux premiers voisins, la bande de valence est miroir de la bande de conduction. Cette symétrie entraîne en l'absence de pertes un courant de conduction continu exactement opposé à celui de la bande de valence. Du fait de cette symétrie miroir, on considère des temps de relaxation identiques pour les trous et électrons photogénérés. Ainsi les deux courants s'atténuent l'un et l'autre simultanément. Les hypothèses de structure de bande miroir et de relaxation identiques pour les électrons et trous excités impliquent donc l'absence de rayonnement émis.

4. $\gamma_{\mathbf{k}} = \left(1 + e^{i\mathbf{k}.\mathbf{a}_1} + e^{i\mathbf{k}.\mathbf{a}_2}\right)$ ou $\mathbf{a}_1$ et $\mathbf{a}_2$ sont des vecteurs du réseau de Bravais (voir figure 5.11).

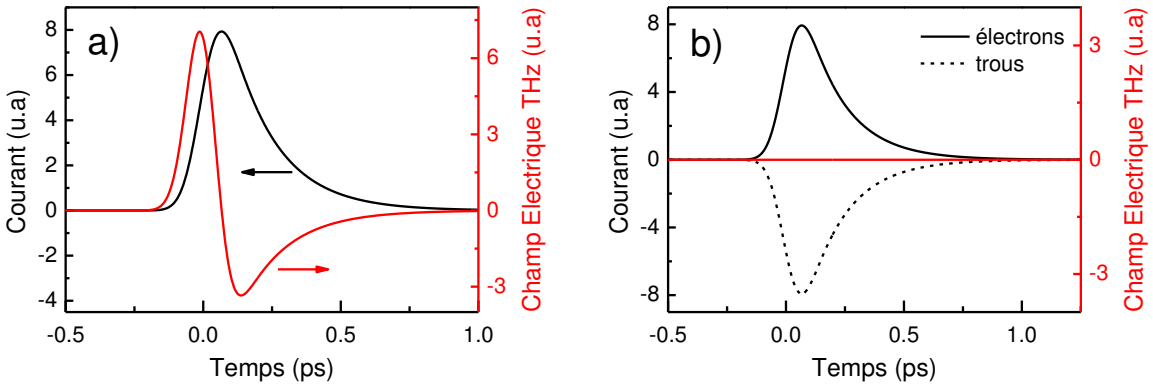


FIGURE 5.12 – Modélisation des courants photogénérés dans le graphène par l'effet photon drag. a) profils temporels du courant induit par les électrons (en noir) et du champ électrique THz rayonné en champ lointain (en rouge). b) Profils de courant des électrons (trait plein noir) et trous (trait tireté noir). Le champ électrique résultant (en rouge) est nul.

L'observation de photon drag dans le graphène impose de reconsidérer l'une ou/et l'autre de ces hypothèses. Dans le cas où l'énergie du photon optique $\hbar\omega$ est proche de E_F, une asymétrie du comportement des trous et des électrons peut être supposée. En effet, la proximité en énergie des électrons générés et du niveau de Fermi introduit une dynamique de relaxation différente pour les trous et les électrons. Ces considérations ont permis de développer une théorie du photon drag pour cette gamme d'énergie d'excitation [194]. Cependant, les expériences présentées ci-dessus correspondent au régime où l'énergie du photon optique $\hbar\omega$ est grande devant E_F. En effet, $\hbar\omega \sim 1.55$ eV, alors que le dopage est très faible pour l'ensemble des couches de graphène (environ 8 meV) et atteint au maximum 250 meV pour la couche la plus proche du substrat. Le rôle du niveau de Fermi est donc a priori très faible dans la situation présente. Une éventuelle différence des temps de vie $1/\Gamma_e^{(2)}$ des électrons et $1/\Gamma_h^{(2)}$ des trous induite par la présence du niveau de Fermi serait donc ici petite.

En fait, la symétrie miroir de la structure de bande n'est pas strictement exacte. En particulier, on a supposé que les interactions entre atomes de carbone non immédiatement voisins étaient nulles. Si on considère les interactions aux seconds voisins, la symétrie miroir entre la bande de valence et la bande de conduction est brisée comme on peut le voir sur la figure 5.13. Le calcul du courant a donc été mené en tenant compte de l'interaction aux seconds voisins [156]. Le courant global (trous + électrons) est cette fois-ci non nul et le profil temporel du champ THz lointain obtenu est représenté sur la figure 5.14 a). La durée brève de l'excitation optique et la rapidité des processus de relaxation des porteurs se traduit par un spectre étendu en fréquence, au-delà de 8 THz (figure 5.14 b)).

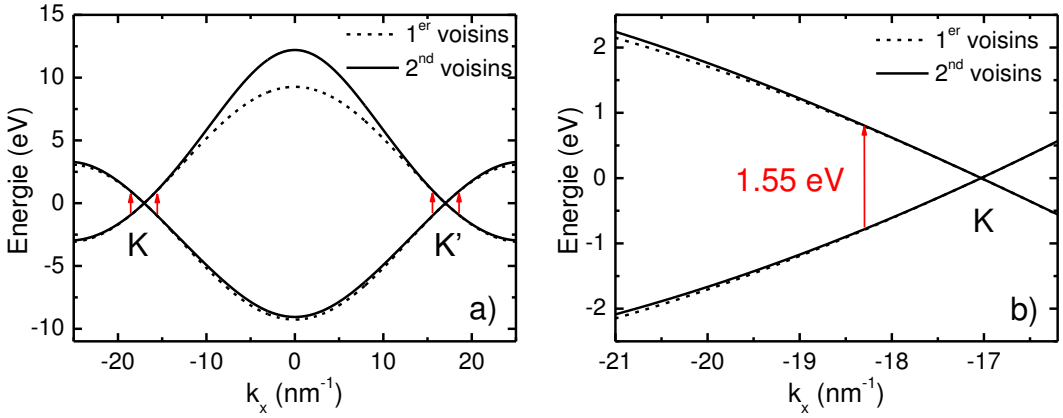


FIGURE 5.13 – a) Relation de dispersion du graphène suivant l'axe k_x. Les dispersions des bandes de valence et de conduction sont calculées dans l'approximation des liaison fortes tronquée aux plus proches voisins (ligne tiretée) et au seconds voisins (ligne continue). Les transitions interbandes générées par les impulsions infrarouges sont représentées par des flèches verticales rouges. b) Zoom dans la fenêtre [-21 ; -16.2] nm^{-1}. Les dispersions des trous et des électrons sont symétriques par rapport à l'énergie égale à 0 pour le modèle aux premiers voisins (trait tireté) mais pas avec le modèle aux seconds voisins (trait continu). La différence est très faible et peut etre notée plus facilement au voisinage de la valeur k_x = -21 nm^{-1}.

Afin de comparer les mesures expérimentales avec la modélisation, il est nécessaire de prendre en compte la réponse en fréquence introduite par le montage de détection de l'émission THz. Cette réponse a de nombreuses contributions induites par les dépendances en fréquence de l'accord de phase dans le cristal de détection, la durée des impulsions fs d'échantillonnage, la propagation (collection/focalisation) de l'onde THz ou encore le recouvrement entre les faisceaux THz et IR sur le cristal de détection [5]. le champ électrique THz $E_s(t)$ détecté par le montage électro-optique est la convolution du champ émis par la source THz $E_{THz}(\nu_{THz})$ avec la réponse du montage expérimental :

$$E_s(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} E_{THz}(\nu_{THz}) F(\nu, \nu_{THz}) \mathrm{e}^{-i\nu_{THz}t}\, \mathrm{d}\nu_{THz} \tag{5.16}$$

où $F(\nu, \nu_{THz})$ représente la fonction de réponse du montage. Il est commode de la décomposer en ses différentes contributions :

$$F(\nu, \nu_{THz}) = A_{Opt}(\nu_{THz})\, \chi^{(2)}(\nu, \nu_{THz}, \nu - \nu_{THz})\, \Delta\Phi(\nu, \nu_{THz}) g(\nu, \nu_{THz}) \tag{5.17}$$

$A_{Opt}(\nu_{THz})$ est la fonction d'autocorrélation des impulsions fs. Cette fonction d'autocorrélation est une fonction gaussienne dont la demi-largeur (fréquences positives) à mi-hauteur est de 6 THz pour des impulsions de largeur à mi-hauteur de 130 fs. $\chi^{(2)}(\nu, \nu_{THz})$ est la susceptibilité du second-ordre du cristal de ZnTe: elle varie peu

5. L'énumération n'est ici pas exhaustive. Un modèle de propagation des ondes THz dans un montage de spectroscopie dans le domaine temporel est développé dans la revue [207] : les dépendances en fréquence des différents éléments qui composent la TDS y sont détaillées.

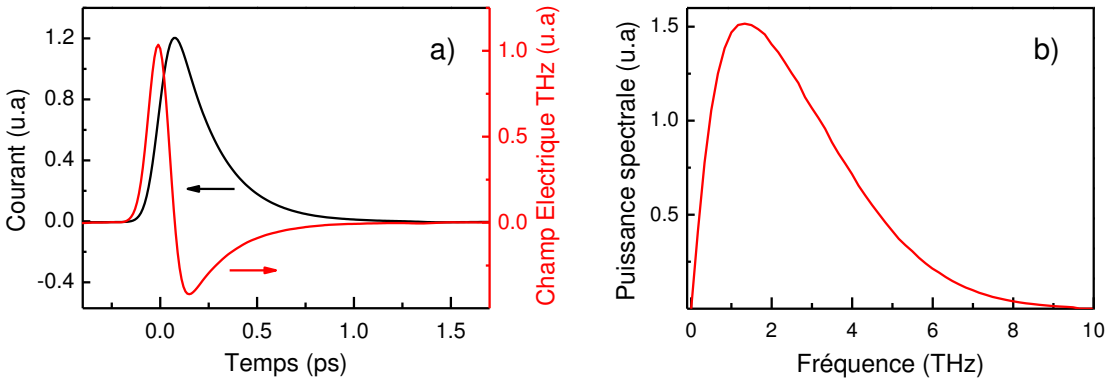


FIGURE 5.14 – Courants photogénérés dans le graphène par l'effet photon drag dans l'approximation des liaisons fortes aux seconds voisins. L'excitation optique est TM a) Profils temporels du courant total induit par les électrons et les trous (en noir) et du champ électrique THz rayonné en champ lointain (en rouge). b) Transformée de Fourier rapide du champ électrique THz temporel.

aux basses fréquences THz [1]. $\Delta\Phi(\nu, \nu_{THz})$ correspond à la différence entre la vitesse de groupe IR et la vitesse de phase THz dans le cristal de ZnTe. Pour une épaisseur de 1 mm, le premier désaccord maximal de phase (conduisant à une réponse nulle) se produit à la fréquence de 3 THz [1]. Enfin, la fonction $g(\nu, \nu_{THz})$ regroupe toutes les dépendances supplémentaires introduites par le montage. Elle inclut par exemple des effets induits par: (i) le recouvrement des faisceaux THz et IR sur le cristal de détection (ii) la collection de l'émission THz émise par la source, sensible à la diffraction (iii) les aberrations chromatiques du faisceau THz focalisé sur le cristal [207].

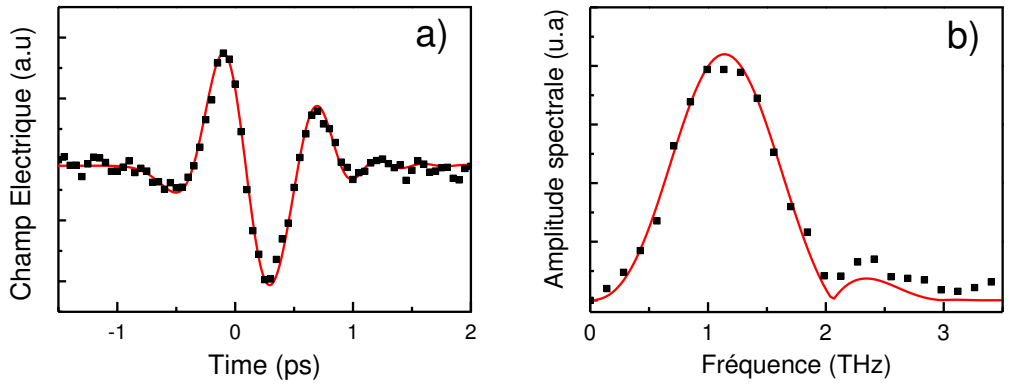


FIGURE 5.15 – Profil de l'émission THz du SiC sous excitation IR polarisée P. Le profil mesuré E_s est représenté en points noirs. L'émission modélisée incluant la fonction de réponse $F(\nu, \nu_{THz})$ est représentée par les courbes rouges. a) Profil temporel. b) Profil spectral. La courbe modélisée (en rouge) inclut: l'expression théorique E_{THz} résultant du processus de différence de fréquences, le désaccord de phase et la susceptibilité non-linéaire du cristal de ZnTe, la durée de l'impulsion fs ainsi que la fonction $g(\nu, \nu_{THz})$ qui prend en compte les autres contributions.

Ces différentes contributions sont difficiles à estimer de manière indépendante. Nous avons donc estimé l'allure de la fonction $g(\nu, \nu_{THz})$ numériquement en effectuant une calibration avec le signal émis par le SiC. En effet, le profil spectral théorique $E_{THz}(\nu_{THz})$ de l'émission THz du SiC sous excitation optique est connu (voir Annexe E). Avec l'obtention expérimentale de $E_s(\nu_{THz})$, il est ainsi possible de déterminer la fonction $g(\nu, \nu_{THz})$. L'estimation numérique de cette fonction est représentée sur la figure 5.15. La fonction $g(\nu, \nu_{THz})$ est ajustée pour reproduire les allures temporelles et spectrales mesurées du signal THz émis par le SiC. La fonction $F(\nu, \nu_{THz})$ calibrée à l'aide de l'émission du SiC est donc ajoutée au modèle pour reproduire le signal émis par le graphène, détecté par échantillonnage électro-optique.

5.4.3 Validation du modèle

En utilisant le modèle aux seconds voisins associé à la modélisation de la réponse de la TDS, on peut maintenant confronter les résultats expérimentaux aux prédictions théoriques. Le modèle reproduit la linéarité du champ THz avec la puissance IR ainsi que la dépendance avec la projection du vecteur d'onde du photon observée. Sur la figure 5.16, on peut voir la mesure et le résultat de la simulation (fonction de réponse du montage prise en compte) du champ THz polarisé suivant la direction **x**. Le faisceau IR excite le graphène avec un angle d'incidence de 37° et une polarisation S. On constate que le modèle (graphes c-d) reproduit fidèlement les allures temporelle et spectrale mesurées (graphes a-b) avec notamment un bon accord entre les valeurs de champ. Le champ électrique THz rayonné maximal est mesuré à 70 mV/cm (5.19 a)). La valeur obtenue par le modèle de 55 mV/cm est très proche. Elle a été obtenue en calculant le champ rayonné par une couche puis en multipliant par le nombre de couches de l'échantillon (absorption de 2.3 % du faisceau IR par chaque couche considérée).

De plus, le modèle suit les observations expérimentales faites sur les symétries. Ceci est illustré sur la seconde partie de la figure 5.16 (graphes e-f-g-h). On a représenté les champs THz mesurés suivant les directions **x** (panel e)) et **y** (panel g)) pour deux angles de polarisation. Pour les polarisations $\theta = 35°$ et $\theta = 145°$, la composante E_x du champ IR change de signe alors que la composante E_y reste la même (voir figure 5.4). D'après les expressions générales des courants induits par l'effet photon drag dans du graphène monocouche (équations 5.6 et 5.7), le courant et le champ THz changent de signe suivant la direction **x** mais pas suivant **y**. Ces règles de symétrie sont une signature de l'effet phton drag constatés à la fois par l'expérience (fig.5.16 e-g) et les simulations correspondantes (fig.5.16 f-h).

Finalement, le modèle proposé basé sur les liaisons fortes aux seconds voisins permet de reproduire fidèlement l'essentiel des observations expérimentales. Les règles de symétrie et l'allure temporelle sont vérifiées tant qualitativement que quantitativement. Nous avons donc validé l'origine physique de l'effet photon drag. C'est le couplage électronique aux seconds voisins qui permet la génération de rayonnement THz.
L'émission THz dépend de manière non triviale de la combinaison des conditions d'excitation (incidence, polarisation) et des différences de comportement des trous et électrons générés (masse effective). Au vu de la pertinence du modèle, il serait intéressant

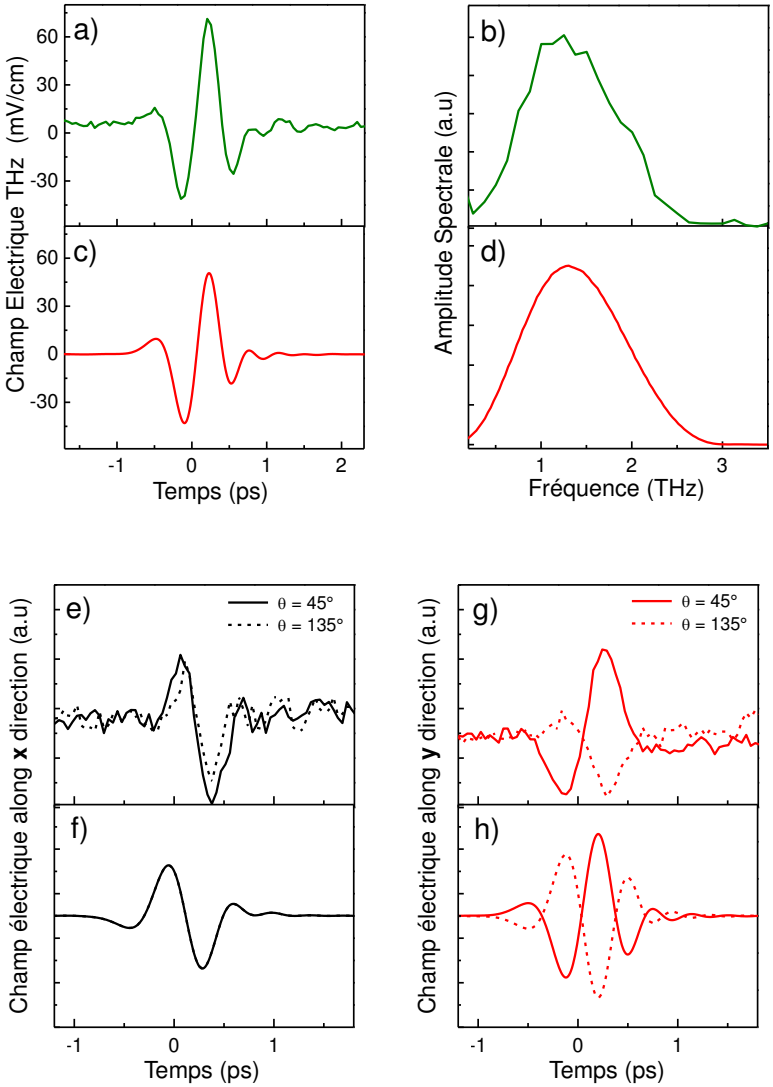


FIGURE 5.16 – **Figures a-b-c-d)**. Emission THz du graphène sous excitation IR mesurée et calculée, pour une excitation S à incidence de 37°. a) et c) Profils temporels mesurés (en vert) et modélisé (en rouge). b) et d) Profils spectraux mesurés (en vert) et modélisé (en rouge).**Figures e-f-g-h)** Emission THz polarisée suivant les directions **x** et **y** pour deux angles de polarisation IR : 45° (traits pleins) et 135° (traits tiretés). e), f) Champ électrique THz polarisé suivant **x** mesuré et modélisé. g), h) Champ électrique THz polarisé suivant **y** mesuré et modélisé.

de l'exploiter pour réfléchir à la structure de bande "idéale" qui permettrait d'obtenir une amplitude du rayonnement THz maximale. Des simulations en cours suggèrent par exemple que l'excitation des porteurs près du niveau de Fermi permettrait d'augmenter fortement l'émission THz.
De plus, un point fondamental très intéressant est que le rayonnement THz émis est très sensible à la structure de bande du graphène et permet donc d'étudier des propriétés

fines des électrons et trous photogénérés, comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant.

5.4.4 Analyse de la relaxation des porteurs photogénérés

Nous avons vu dans la section 5.3 que les dépendances en polarisation IR du champ THz suivent les règles de symétrie de l'effet photon drag. Toutefois, certains aspects demeuraient inexpliqués. En particulier, on peut voir sur la figure 5.17 que le changement de forme observé entre les polarisations S et P correspond dans le domaine fréquentiel à un décalage de la fréquence centrale émise d'environ 0.5 THz.

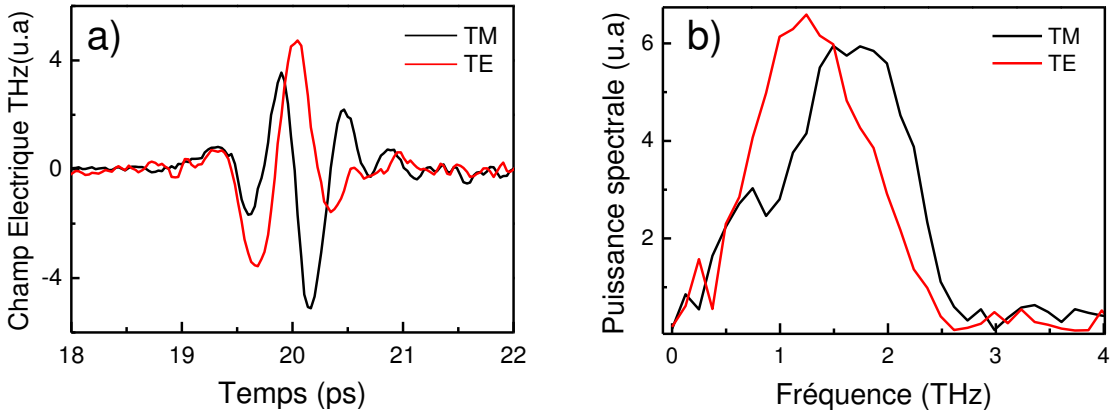


FIGURE 5.17 – Emission THz suivant **x** mesurée pour différentes polarisations IR: P (noir) et S (rouge). a) Profil temporel du champ électrique. b) Spectres obtenus par transformée de Fourier rapide.

En fait la dissymétrie de la structure de bande implique que les masses effectives des électrons et des trous sont différentes. En conséquence, il faut considérer des temps de vie des populations d'électrons et de trous photogénérées différents. Les temps de vie $1/\Gamma_e^{(2)}$ (électrons) et $1/\Gamma_h^{(2)}$ (trous) que nous considérons pour calculer l'évolution des populations via l'équation 5.13 correspondent à la relaxation du courant photogénéré. Ils sont donc associés aux processus de diffusion par lesquels les porteurs acquièrent un vecteur d'onde de direction totalement aléatoire, et cessent en moyenne de contribuer au courant. Le mécanisme de diffusion qui conduit à une redistribution aléatoire des vecteurs d'onde le plus rapidement est la diffusion par phonon optique. Le temps caractéristique est évalué entre 100 et 200 fs [208]. La prise en compte de temps de vie différents pour les électrons et les trous se traduit par une dépendance supplémentaire de l'amplitude de l'émission et de son allure spectrale avec la polarisation IR. On peut voir sur la figure 5.18 le résultat de la modélisation pour $1/\Gamma_e^{(2)} = 170$ fs et $1/\Gamma_h^{(2)} = 174$ fs. L'écart de 2.5 % entre les deux temps de vie est très faible car la dissymétrie est très peu marquée pour notre condition d'excitation $\hbar\omega = 1.55$ eV (voir figure 5.13). Ces valeurs sont celles qui ont données le meilleur accord avec les résultats expérimentaux.

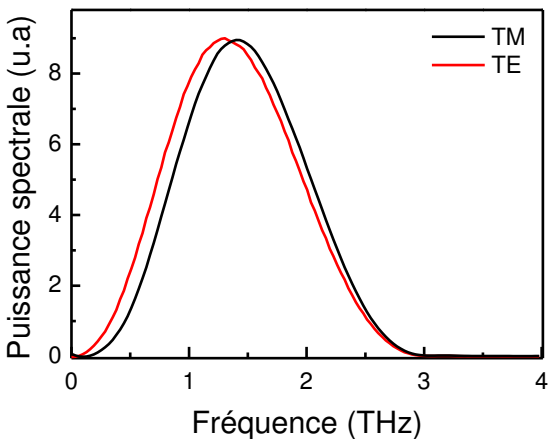


FIGURE 5.18 – Profil spectral modélisé de l'émission THz suivant **x** pour différentes polarisations IR: P (noir) et S (rouge).

Le choix de ces temps de vie différents se manifeste par un décalage spectral qu'on retrouve dans les données expérimentales. Le sens du décalage spectral obtenu par la simulation dépend du rapport des temps de vie. Si $1/\Gamma_h^{(2)}$ est plus grand que $1/\Gamma_e^{(2)}$ alors, le profil spectral P est plus haute fréquence que celui S et réciproquement. Dans la figure 5.18, ce décalage vaut environ 100 GHz et reste toutefois plus petit que celui obtenu expérimentalement. La sensibilité de la distribution de la population de porteurs photogénérés dans l'espace réciproque avec la polarisation infrarouge pourrait en être la cause. Dans le modèle, nous faisons l'hypothèse forte que les temps de relaxation sont insensibles à la distribution des porteurs dans l'espace réciproque. Une description plus fine de la dynamique des porteurs grâce pourrait donc être obtenue en considérant des temps de vie dépendants du vecteur d'onde des populations excitées [209].

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré l'émission d'impulsions THz sous excitation de graphène multicouches par des impulsions fs. Le mécanisme mis en jeu est l'effet photon drag, qui peut être vu comme un transfert de quantité de mouvement des photons aux porteurs du graphène. L'effet photon drag induit un courant transitoire dont la durée est essentiellement donnée par les mécanismes de diffusion du matériau (en particulier phonons optiques). Les temps de vie associes des porteurs dans le graphène sont très courts (de l'ordre de 100 fs) et se manifestent par des courants de durée très brève qui conduisent la génération d'impulsions THz large bande.
Ce mécanisme de génération n'est possible que si les électrons et les trous photogénérés ont des comportements différents. Dans notre situation, l'excitation se fait des énergies bien supérieures au niveau de Fermi ($\hbar\omega = 1.55$ eV et $E_F < 0.25$ eV), qui ne peut à lui seul expliquer l'observation de rayonnement THz. Ces conditions d'excitation sont intéressantes car elles rendent l'expérience très sensible à la structure de bande du graphène. Une nouvelle origine physique de l'effet photon drag a été déterminée ici. C'est l'existence du couplage électronique non nul aux seconds voisins [24] qui brise le comportement symétrique des électrons et des trous. Cette interprétation se démarque de la majorité des descriptions du graphène, où les interactions aux seconds voisins sont considérés comme des corrections faibles des effets physiques discutés. Notre étude apporte de plus des informations sur la différence entre les comportements des électrons et des trous: un écart d'environ 2 % entre les temps de relaxation des trous et des électrons est suggéré.

La sensibilité du champ THz émis à ces temps de vie a des retombées scientifiques importantes dans le cadre des études du gain optique et de l'inversion de population dans le graphène dans l'échelle de la centaine de fs après une excitation optique [210]. C'est sur ces échelles de temps très courtes que les porteurs sont cohérents et que l'on peut espérer déclencher une émission stimulée [170]. Nous avons vu également que l'excitation optique large bande du graphène est une méthode originale pour produire des impulsions THz large bande. Son intérêt est sa simplicité. L'émission THz ne nécessite aucune structuration de l'échantillon de graphène (contacts électriques par exemple [177]), est totalement contrôlée (amplitude et polarisation) par le faisceau optique et observable à température ambiante. Les simulations prédisent enfin un champ THz émis dont l'amplitude peut varier sur plusieurs ordres de grandeurs en fonction de la différence de comportement entre les électrons et trous photogénérés. Pour accroitre l'efficacité de conversion entre les impulsions IR et les impulsions fs, on pourrait donc essayer d'accroitre cette différence, par exemple en changeant l'énergie d'excitation ou en modifiant la valeur du niveau de Fermi.

Conclusion générale

Dans ce travail de thèse nous avons mené une étude sous deux approches différentes de deux sources de rayonnement THz: le LCQ et le graphène sous excitation IR pulsée. D'une part, nous nous sommes concentrés sur la compréhension des mécanismes fondamentaux permettant la génération de rayonnement THz. D'autre part nous avons fonctionnalisé l'émission THz de ces sources. L'ensemble des travaux expérimentaux présentés ont été effectués à l'aide d'un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel.

• Lasers à cascade quantique THz

Le LCQ est une source très prometteuse pour la gamme THz que nous avons étudiée dans une première partie de cette thèse. La phase du champ émis par un LCQ THz peut être contrôlée à l'aide de la technique d'injection seeding: une impulsion THz générée par une antenne (seed) est injectée dans la cavité du LCQ et permet d'initier la phase du champ électrique. Ce contrôle de phase conduit à la possibilité de reconstruire le profil temporel du champ laser émis par échantillonnage électro-optique cohérent.

Nous avons travaillé sur la mesure et l'optimisation du contrôle de phase. Nous avons défini un degré de cohérence d'échantillonnage qui reflète la qualité du contrôle de phase. Pour des amplitudes du seed suffisamment élevées, nous avons constaté que l'émission laser est très bien contrôlée en phase avec un degré de cohérence mesuré qui atteint 98 % [18]. La mesure du degré de cohérence d'échantillonnage est un outil qui permet donc de s'assurer de l'efficacité du contrôle de phase. Nous avons proposé de plus un dispositif simplifié où l'antenne n'est plus nécessaire pour la génération du seed. Le seed est directement produit à l'intérieur du LCQ à l'aide de l'excitation d'une facette par les impulsions fs du laser Ti:Sa [19]. L'avantage de la génération du seed intracavité est que le LCQ peut être mis directement en place de l'antenne photoconductrice dans un montage de TDS.
Ces travaux permettent d'envisager le LCQ comme une source THz puissante pour la spectroscopie dans le domaine temporel, en particulier dans la gamme de 2 à 5 THz. Le spectre émis des LCQs que nous contrôlons en phase a une largeur typique de l'ordre de la centaine de GHz. Pour un usage en spectroscopie, il est pertinent de chercher à étendre cette largeur. Des travaux préliminaires menés par l'équipe montrent la possibilité d'effectuer le contrôle de phase sur des LCQs large bande (600 GHz pour un laser LO-phonon).

Dans un contexte d'ajout de nouvelles fonctionnalités pour les LCQs THz, nous nous sommes également penchés sur la production d'impulsions courtes qui est encore un challenge. D'un point de vue fondamental, l'obtention de ce régime dépend fortement de la dynamique du gain et de son temps de recouvrement. La mesure en temps de la naissance du champ laser au régime permanent, via le contrôle de phase, donne accès naturellement à l'étude des effets dynamiques. Avec l'appui d'un modèle de Maxwell-

Bloch le profil de l'émission laser a été modélisé dans le domaine temporel. Une méthode originale, basée sur la comparaison entre les profils d'émission mesuré et modélisé, nous a permis d'estimer le temps de recouvrement du gain à une valeur de 15 ps pour un laser émettant à 2.45 THz [20]. Cette dynamique très rapide du gain permet de moduler de façon stable le courant d'un LCQ à des fréquences élevées. L'usage d'une modulation d'amplitude du courant à la fréquence d'aller-retour de la cavité (13 GHz) a été effectuée et a permis la génération d'impulsions courtes par un LCQ THz. Ces impulsions sont obtenues lorsque le point de fonctionnement du laser se situe à proximité de son seuil d'émission. Il a été démontré que le laser émet alors en régime de blocage de mode avec des impulsions de largeur limitée par transformée de Fourier. Un apport intéressant de ce travail est également la technique développée pour détecter ces impulsions courtes dans le domaine temporel. En effet, l'obtention du blocage de modes pour les LCQs a historiquement été difficile à cause du manque d'outils pour caractériser les impulsions émises. L'usage du contrôle de la phase du champ nous a permis de contourner cet obstacle. Nous avons montré qu'il est possible de reconstruire totalement le champ électrique des impulsions THz émises par le LCQ avec l'échantillonnage électro-optique associé à la technique d'injection seeding. Des impulsions de largeur à mi-hauteur de 15 ps ont été mesurées [23] avec une résolution de l'ordre de 50 fs.
Les perspectives de ces travaux tendent naturellement vers l'obtention d'impulsions plus courtes qui permettraient d'accéder à la fois à des spectres plus larges et des puissances crêtes plus élevées. Pour cela, il serait intéressant d'utiliser des LCQs à guide métal-métal avec dessin LO-phonon, pour lesquels on peut effectuer plus facilement la modulation de courant et qui émettent en plus à des températures de fonctionnement plus élevées.

- **Graphène**

Le graphène est la seconde source de rayonnement THz que nous avons étudiée. L'excitation optique de graphène multicouches avec les impulsions IR fs du laser Ti:Sa permet la génération d'impulsions THz large bande de durée typique 1 ps. Nous avons mis en évidence la génération de ces impulsions THz avec le montage de spectroscopie dans le domaine temporel. Le mécanisme de génération de rayonnement a été interprété comme un effet non-linéaire d'ordre deux. Cet effet est induit par un transfert de la quantité de mouvement des photons aux électrons des plans de graphène, connu comme l'effet "photon drag". L'énergie d'excitation ($\sim$ 1.55 eV) se situe bien au-delà du niveau de Fermi (inférieur à $\sim$ 250meV).

Dans ce régime d'excitation, la description standard des propriétés électroniques du graphène (liaisons fortes aux premiers voisins) n'est pas suffisante pour interpréter le champ THz observé expérimentalement. Les courants des trous et des électrons photogénérés s'annulent mutuellement. L'interprétation de l'émission observée nécessite en fait une description fine de la structure de bande du graphène: c'est l'interaction électronique des atomes seconds voisins des plans de carbone qui brise la symétrie des comportements des trous et des électrons. Cette sensibilité de l'émission THz au couplage entre seconds voisins est très riche d'informations car elle permet d'estimer des faibles différences de

comportement entre les trous et électrons photogénérés (de l'ordre de 2% entre les temps de relaxation des populations) auxquelles il est difficile d'avoir accès autrement.

Au-delà de cet intérêt fondamental, il pourrait être intéressant de chercher à rendre le mécanisme de conversion IR/THz plus efficace. L'émission THz résulte du courant net des porteurs, somme des contributions opposées des électrons et des trous. En augmentant la différence de temps de vie entre ces différents porteurs, par exemple en modifiant le niveau de Fermi du graphène, on peut espérer accroître fortement l'efficacité de conversion.

A

Modèle de Maxwell-Bloch pour l'émission laser

A.1 Obtention des équations de Maxwell-Bloch

L'état du système à deux niveaux s'écrit : $|\Psi\rangle = c_e|e\rangle + c_g|g\rangle$

L'hamiltonien H du système à deux niveaux soumis à un champ électrique polarisé suivant $\mathbf{x}$ est :

$$H = H_A + H_{AF}$$

avec (dans la base des états $\{|e\rangle, |g\rangle\}$) :

$$H_A = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$H_{AF} = -\mathbf{p}.\mathbf{E} = e\widehat{x}E_x$$

où $\mathbf{p} = -e\mathbf{x}$.
Le système peut être décrit dans le formalisme de la matrice densité qui s'écrit ici :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix}$$

A ce stade nous allons introduire un certain nombre d'opérateurs :

$$\mathbf{1} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}; \sigma^+ = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}; \sigma^- = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$$

On a ainsi :

$$\begin{aligned} \mathbf{1}|\Psi\rangle &= c_e|e\rangle + c_g|g\rangle \\ \sigma_z|\Psi\rangle &= c_e|e\rangle - c_g|g\rangle \\ \sigma^+|\Psi\rangle &= c_g|e\rangle \\ \sigma^-|\Psi\rangle &= c_e|g\rangle \end{aligned}$$

et encore :

$$\begin{aligned} c_e^* c_g &= \langle\Psi|\sigma^+|\Psi\rangle && \text{(A.1)} \\ c_g^* c_e &= \langle\Psi|\sigma^-|\Psi\rangle && \text{(A.2)} \\ |c_e|^2 - |c_g|^2 &= \langle\Psi|\sigma_z|\Psi\rangle && \text{(A.3)} \end{aligned}$$

et :

$$\rho = \frac{\rho_{ee}+\rho_{gg}}{2}\mathbf{1} + \frac{\rho_{ee}-\rho_{gg}}{2}\sigma_z + \rho_{eg}\sigma^+ + \rho_{ge}\sigma^-$$

Réécrivons l'hamiltonien global en fonction de ces opérateurs, soit :

$$H_A = \frac{\hbar\omega_{eg}}{2}\sigma_z$$

et d'autre part :

$$\begin{aligned} \langle\Psi|H_{AF}|\Psi\rangle &= \langle\Psi| - \widehat{p}E_x|\Psi\rangle \\ &= eE_x\langle\Psi|\widehat{x}|\Psi\rangle \\ &= eE_x\left(|c_e|^2\langle e|\widehat{x}|e\rangle + c_e^*c_g\langle e|\widehat{x}|g\rangle + c_g^*c_e\langle g|\widehat{x}|e\rangle + |c_g|^2\langle g|\widehat{x}|g\rangle\right) \end{aligned}$$

Posons :

$$\begin{aligned} M &= e\langle g|\widehat{x}|e\rangle = e\langle g|\widehat{x}|e\rangle^* \\ X &= e\langle e|\widehat{x}|e\rangle = -e\langle g|\widehat{x}|g\rangle \end{aligned}$$

où l'origine du système est définie de sorte que :

$$\langle e|\widehat{x}|e\rangle = -\langle g|\widehat{x}|g\rangle$$

Ainsi :

$$\begin{aligned} \langle\Psi|H_{AF}|\Psi\rangle &= E_x\left(|c_e|^2X + c_e^*c_gM^* + c_g^*c_eM - |c_g|^2X\right) \\ &= E_x\left(\left(|c_e|^2 - |c_g|^2\right)X + c_e^*c_gM^* + c_g^*c_eM\right) \end{aligned}$$

Puis les relations (A.1), (A.2), (A.3) :

$$\langle\Psi|H_{AF}|\Psi\rangle = E_x\left(\langle\Psi|\sigma_z|\Psi\rangle X + \langle\Psi|\sigma^+|\Psi\rangle M^* + \langle\Psi|\sigma^-|\Psi\rangle M\right)$$

On obtient alors :

$$H_{AF} = M^*\sigma^+E_x + M\sigma^-E_x + X\sigma_zE_x$$

L'évolution du système est donnée par l'équation de Von Neumann appliquée au hamiltonien $H = H_A + H_{AF}$:

$$\begin{aligned} \partial_t\rho &= \frac{1}{j\hbar}\{[H,\rho]\} \\ &= \frac{1}{j\hbar}\{M^*E_x\left[\sigma^+,\rho\right] + ME_x\left[\sigma^-,\rho\right] + XE_x\left[\sigma_z,\rho\right] + \frac{\hbar\omega_{eg}}{2}\left[\sigma_z,\rho\right]\} \end{aligned}$$

Ainsi :

$$\begin{aligned}\partial_t d &= \partial_t \rho_{ge} \\ &= \frac{E_x M}{j\hbar} w + \frac{2E_x X}{j\hbar} d + j\omega_{eg} d \\ \partial_t(\Delta n) &= \partial_t \rho_{ee} - \partial_t \rho_{gg} \\ &= \frac{2E_x}{j\hbar}(M^* d^* - M d)\end{aligned}$$

Nous ajoutons par ailleurs des termes phénoménologiques de pertes où T_2 représente la durée de vie liée à la perte de cohérence entre les états $|e\rangle$ et $|g\rangle$, T_1 le temps de recouvrement du gain. Par ailleurs, on note w_0 l'inversion de population sans champ électrique. Soit :

$$\begin{aligned}\partial_t d &= -\left(\frac{1}{T_2} - j\omega_{eg}\right) d + \frac{E_x M}{j\hbar}\Delta n + \frac{2E_x X}{j\hbar} d \\ \partial_t \Delta n &= \frac{2E_x}{j\hbar}(M^* d^* - M d) - \frac{\Delta n - \Delta n_0}{T_1}\end{aligned}$$

Cette description permet en particulier de décrire le comportement du gain. Le lien avec les equations de Maxwell peut être fait par l'intermédiaire de la polarisation électrique. En effet :

$$\begin{aligned}P_x &= 2NTr(\rho \mathbf{p}) \\ &= -2N\Delta n X - 2NMRe(d)\end{aligned}$$

d'où

$$\begin{aligned}\partial_t E_x &= -\frac{1}{\epsilon_0}\frac{\partial H_y}{\partial z} - \frac{1}{\epsilon_0}\partial_t P_x \\ \partial_t H_y &= -\frac{1}{\mu_0}\frac{\partial E_x}{\partial z}\end{aligned}$$

Finalement, en introduisant un terme phénoménologique de pertes $-lc_0 E_x$ et en posant $2d = \rho_1 - j\rho_2$ (suivant les notations de [97]), le jeu des équations de Maxwell-Bloch peut s'écrire :

$$\partial_t H_y = -\frac{1}{\mu_0}\frac{\partial E_x}{\partial z} \tag{A.4}$$

$$\begin{aligned}\partial_t E_x &= -\frac{1}{\epsilon_0}\frac{\partial H_y}{\partial z} - \frac{NM}{\epsilon_0 T_2}\rho_1 + \frac{NM}{\epsilon_0}\left(\omega_{eg} - \frac{5E_x X}{\hbar}\right)\rho_2 \\ &- \frac{2NX(\Delta n - \Delta n_0)}{\epsilon_0 T_1} - lc_0 E_x\end{aligned} \tag{A.5}$$

$$\partial_t \rho_1 = -\frac{1}{T_2}\rho_1 + \left(\omega_{eg} - \frac{E_x X}{\hbar}\right)\rho_2 \tag{A.6}$$

$$\partial_t \rho_2 = -\frac{1}{T_2}\rho_2 + \left(\omega_{eg} - \frac{E_x X}{\hbar}\right)\rho_1 + \frac{2E_x M}{\hbar}\Delta n \tag{A.7}$$

$$\partial_t(\Delta n) = -\frac{\Delta n - \Delta n_0}{T_1} - \frac{2E_x M}{\hbar}\rho_2 \tag{A.8}$$

A.2 Algorithme FDTD

Les équations précédentes sont implémentées numériquement en utilisant l'algorithme Finite Difference Time Domain (FDTD). Il repose sur l'approximation de toutes les dérivées par des differences finies. Simple et robuste, il est couramment utilisé pour des simulations mettant en jeu les équations de la chaleur, de Maxwell, de Schrôdinger. Une double discrétisation, spatiale et temporelle est faite, où m représente la coordonnée spatiale z (direction de propagation) et n la coordonnée temporelle t. Les pas spatial et temporel sont Δz et Δt. Ainsi, les valeurs de E_x sont définies sur un réseau de sorte que $E_x(m,n) = E_x(m\Delta z, n\Delta t)$. Les réseaux associés aux valeurs de E_x et H_y sont translatés d'un vecteur de coordonnées $(\frac{\Delta z}{2}, \frac{\Delta t}{2})$. Ceci permet d'accroître la précision de la simulation sans en altérer l'efficacité. Étant donne l'état initial, les différentes variables sont mises à jour à chaque itération en temps. Nous ne faisons aucune hypothèse simplificatrice supplémentaire sur les équations. Posons :

$$\begin{aligned}
\rho_1(z,t) &= exp\left(\frac{-t}{T_2}\right) u_1(z,t) \\
\rho_2(z,t) &= exp\left(\frac{-t}{T_2}\right) u_2(z,t) \\
\Delta n(z,t) &= \Delta n_0 + exp\left(\frac{-t}{T_1}\right) u_3(z,t)
\end{aligned}$$

De sorte que l'on peut écrire les jeux d'équations discrétisées comme suit :

$$H_y(m+\frac{1}{2}, n+\frac{1}{2}) = H_y(m+\frac{1}{2}, n-\frac{1}{2}) - \frac{\Delta t}{\mu_0 z}\left[E_x(m+1,n) - E_x(m,n)\right]$$

$$\begin{aligned}
E_x(m,n+1) = {} & E_x(m,n) - d\Delta H_y - A\left[u_1^{guess}(m,n+1) + u_1(m,n)\right] \\
& + B\left[u_2^{guess}(m,n+1) + u_2(m,n)\right] \\
& - F\left[u_3^{guess}(m,n+1) + u_3(m,n)\right] \\
& - G\left[E_x^{guess}(m,n+1) + E_x(m,n)\right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
u_1(m,n+1) = {} & u_1(m,n) + H\left[u_2^{guess}(m,n+1) + u_2(m,n)\right] \\
& - J\left[u_1^{guess}(m,n+1) + u_1(m,n)\right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
u_2(m,n+1) = {} & u_2(m,n) - H\left[u_1^{guess}(m,n+1) + u_1(m,n)\right] \\
& - J\left[u_2^{guess}(m,n+1) + u_2(m,n)\right] \\
& + C\left[E_x^{guess}(m,n+1) + E_x(m,n)\right]\left[D + \frac{1}{2}\left[u_3^{guess}(m,n+1) + u_3(m,n)\right]\right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
u_3(m,n+1) = {} & u_3(m,n) \\
& - K\left[u_3^{guess}(m,n+1) + u_3(m,n)\right] \\
& - \frac{C}{2}\left[E_x^{guess}(m,n+1) + E_x(m,n)\right]\left[u_2^{guess}(m,n+1) + u_2(m,n)\right]
\end{aligned}$$

Pour chaque pas en espace et en temps, une boucle est faite sur les quatre équations précédentes jusqu'à atteindre une solution auto-entretenue. Lors de la première itération pour mener à la convergence, les valeurs notées avec l'exposant "guess" sont fixées égales à leurs valeurs respectives au point temporel précédent. La valeur correcte adoptée est la moyenne de la valeur trouvée avec l'ancienne. On a enfin :

$$\Delta H_y = \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z}\left[H_y(m+\frac{1}{2}, n+\frac{1}{2}) - H_y(m-\frac{1}{2}, n+\frac{1}{2}\right]$$

Les différents coefficients sont les suivants :

$$\begin{aligned} A &= \frac{\Delta t N M}{2 T_2 \varepsilon} \\ B &= \frac{\Delta n_0 \Delta t N M}{2\varepsilon} \\ C &= \frac{\Delta t M}{\hbar} \\ D &= \Delta n_0 \\ F &= \frac{\Delta t N M}{T_1 \varepsilon} \\ G &= \frac{\Delta t l c_0}{2} \end{aligned}$$

L'espace discrétisé se décompose comme suit. Les deux extrémités sont des régions absorbantes, permettant de définir les conditions aux limites. La partie centrale correspond au LCQ, où le gain est simulé. On impose aux régions absorbantes des pertes très fortes ainsi qu'un indice égal a 1. Ainsi, les réflexions des ondes aux limites spatiales du LCQ sont prises en compte sans que les bords du domaine simulé n'y contribuent. Si l'on souhaite étudier l'effet d'une impulsion THz couplée au LCQ, le champ à une des interfaces région absorbante/LCQ est fixé, égal à celui de l'impulsion THz injectée tant que celle-ci dure, puis laissé libre.

B

Caractéristiques des LCQs utilisés

B.1 Croissance L182 - émission à 2.5 THz

Le laser L182 a une structure de bande de type bound-to-continuum avec une fréquence d'émission centrée à 2.5 THz. Les échantillons utilisés ici sont issus d'une collaboration avec l'équipe du Prof. Edmund Linfield, de l'Université de Leeds.

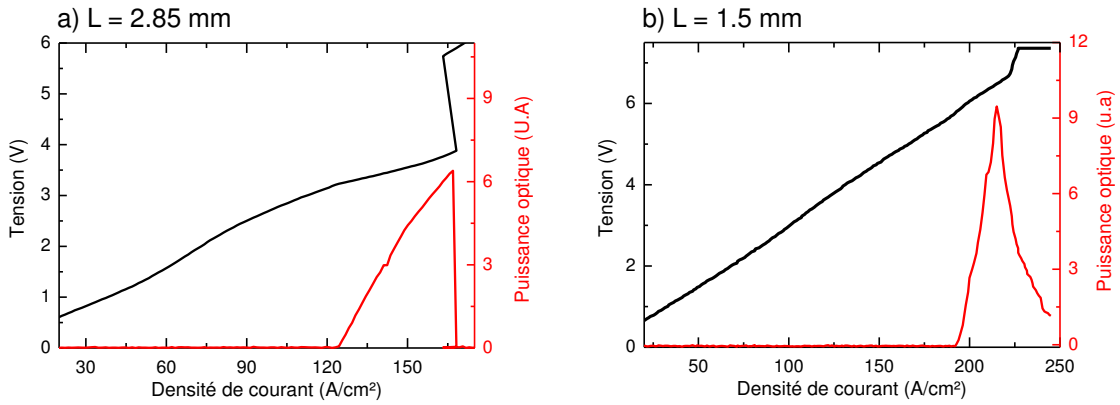


Figure B.1 – Caractéristiques courant-tension-puissance optique de l'échantillon L182 à 10 K pour deux longueurs de cavité - a) 2.85 mm b) 1.5 mm.

La succession de couches de semi-conducteur $Al_{0.15}Ga_{0.85}As/GaAs$ formant une zone d'émission et une zone de transport (= une période de la région active) à partir de la barrière d'injection est :
4.2/11.8/**3.5**/11.3/**2.7**/11.4*/**2.0**/12.0*/**2.0** /11.8/**1.8**/12.4/**1.5**/15.3/**0.6**/10.0/**0.6**/13.5
Les épaisseurs des couches en nm sont notées en gras pour les barrières ($Al_{0.15}Ga_{0.85}As$) et en écriture normal pour les puits (GaAs). Les puits notés d'un astérisque présentent un dopage par silicium ($1.6.10^{16}$ cm^{-3}). Cette période est répétée 90 fois pour former l'ensemble de la région active. Le guide d'onde de ce LCQ est de type simple plasmon. Le confinement se fait à l'aide d'une couche de GaAs fortement dopée (5.10^{18} $/cm^3$)

succédant au contact métallique supérieur. Une couche dopée intermédiaire précède la première zone d'injection. En dessous de la région active la structure se termine par une couche GaAs dopée et épaisse puis par le substrat non dopé. La région active a une épaisseur de 11.5 μm pour une largeur de 180 μm.

Sur la figure B.1, sont reportées les caractéristiques courant-tension-puissance optique des deux lasers de longueur de cavité différentes que nous avons utilisés. Pour l'échantillon de longueur 2.85 mm, la plage de courant sur laquelle l'émission laser est observée est d'environ 50 A/cm^2 avec un courant seuil égal à 120 A/cm^2. Le seuil associé à une longueur de cavité 1.5 mm (figure B.1 b)) est mesuré à environ 190 A/cm^2.

B.2 Croissance V557 - émission à 2.9 THz

Le laser V557 a une structure de bande de type bound-to-continuum avec une fréquence d'émission centrée à 2.9 THz. Les échantillons utilisés ici sont issus d'une collaboration avec l'équipe du Prof. David Ritchie, de l'Université de Cambridge (décrit dans la référence [211]). Le guide d'onde associé est de type simple plasmon. La succession de couches de semi-conducteur $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$/GaAs formant une zone d'émission et une zone de transport en commencant par la barrière d'injection estest:
3.8/11.6/**3.5**/11.3/**2.7**/11.4*/**2.0**/12.0*/**2.0**/12.2/**1.8**/12.8/**1.5**/15.8/**0.6**/9.0/**0.6**/14.0
Les puits notés d'un astérisque présentent un dopage par silicium ($1.6.10^{16}$ cm^{-3}). Cette période est répétée 90 fois. Le ruban laser a une largeur de 160 μm pour une épaisseur de 11.6 μm. La caractéristique courant-tension-puissance optique est reportée sur la figure B.2. La densité de courant seuil vaut 143 A.cm^{-2} pour le laser utilisé de longueur de cavité 5 mm et 68 A.cm^{-2} pour le laser utilisé de longueur de cavité 2.96 mm .

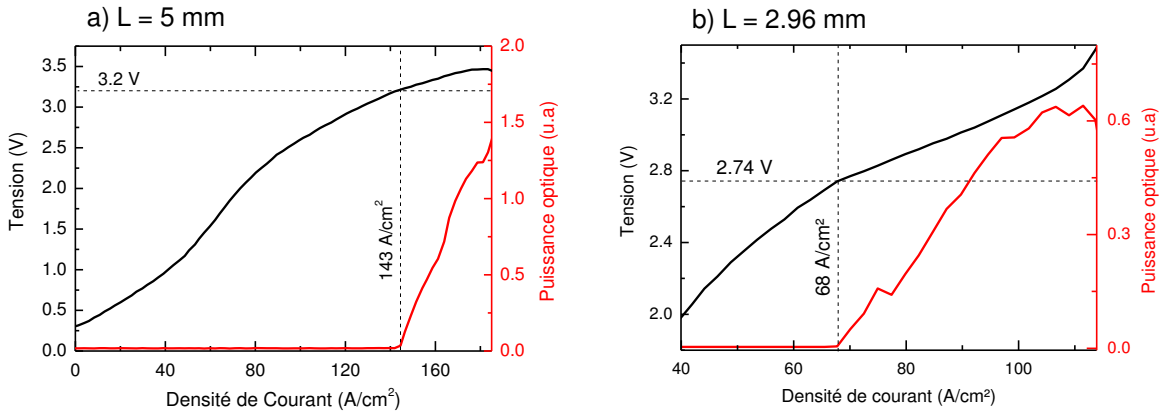


FIGURE B.2 – Caractéristiques courant-tension-puissance optique de l'échantillon V557 de longueur de cavité à 10 K pour deux longueurs de cavité - a) 5 mm b) 2.96 mm.

B.3 Croissance V455 - émission à 1.9 THz

Le laser V455 a une structure de bande de type bound-to-continuum avec une fréquence d'émission centrée à 1.9 THz (décrit dans la référence [212]). Les échantillons utilisés ici sont issus d'une collaboration avec l'équipe du Prof. David Ritchie, de l'Université de Cambridge. Le guide d'onde associé est de type simple plasmon. La succession de couches de semi-conducteur $Al_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs$ formant une zone d'émission et une zone de transport est (en commencant par la barrière d'injection) est:
4.8/11.97/ **4.2**/11.4/**3**/11.78*/ **2.9**/12.54*/ **2.5**/14.53/ **2.3**/13.82/**0.99**/11.54/**1**/ 15.03
Les puits notés d'un astérisque présentent un dopage par silicium ($1.3.10^{16}$ cm^{-3}). Cette période est répétée 90 fois. Le ruban laser a une largeur de 250 μm pour une épaisseur de 11.2 μm. La caractéristique courant-tension-puissance optique est reportée sur la figure B.3. La densité de courant seuil vaut 86 $A.cm^{-2}$ pour le laser utilisé de longueur de cavité 3 mm.

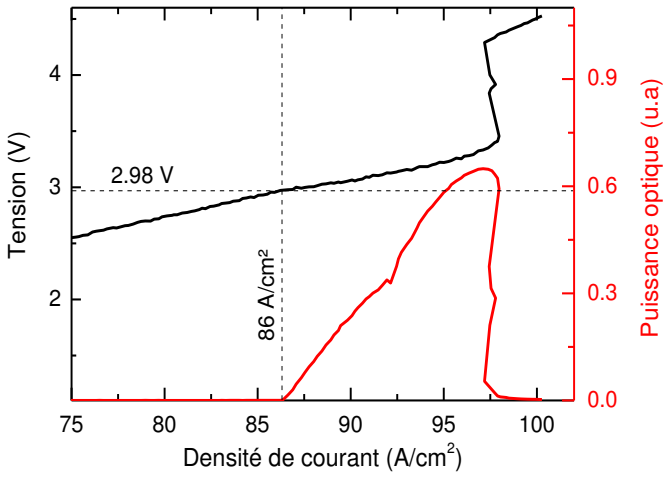


FIGURE B.3 – Caractéristiques courant-tension-puissance optique de l'échantillon V455 de longueur de cavité 3 mm à 10 K.

B.4 Croissance V453 - émission à 2.05 THz

Le laser V453 a une structure de bande de type bound-to-continuum avec une fréquence d'émission centrée à 2.05 THz. Les échantillons utilisés ici sont issus d'une collaboration avec l'équipe du Prof. David Ritchie, de l'Université de Cambridge. Le guide d'onde associé est de type métal-métal. La succession de couches de semi-conducteur $Al_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs$ formant une zone d'émission et une zone de transport est (en commencant par la barrière d'injection) est:
5/12.6/**4.4**/12.0/**3.2**/12.4*/**3.0**/13.2*/**2.4**/14.4/**2.4**/14.4/**1.0**/11.8/**1.0**/14.4 Les puits notés d'un astérisque présentent un dopage par silicium ($1.3.10^{16}$ cm^{-3}). Cette période est répétée 90 fois. Le ruban laser a une largeur de 80 μm pour une épaisseur de 11.5 μm. La caractéristique courant-tension-puissance optique est reportée sur la figure B.4. La densité de courant seuil vaut 115 $A.cm^{-2}$ pour le laser utilisé de longueur de cavité

3.06 mm.

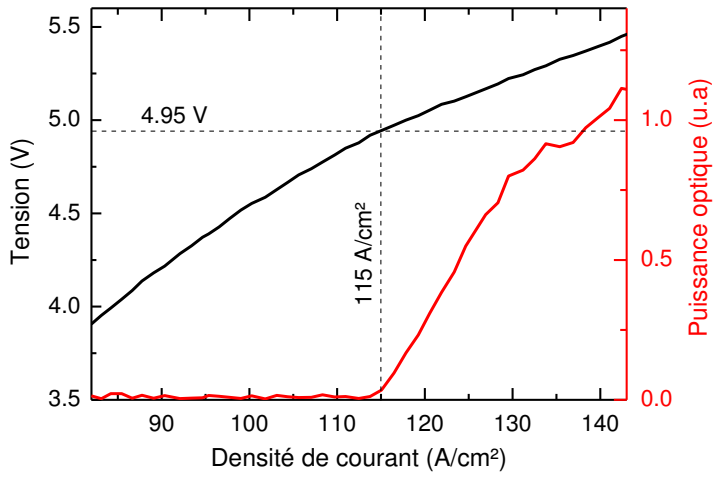


FIGURE B.4 – Caractéristiques courant-tension-puissance optique de l'échantillon V453 de longueur de cavité 3.06 mm à 10 K.

C

Détection du rayonnement total d'un LCQ

C.1 Montage

Le montage pour mesurer l'émission non-synchronisée avec les impulsions fscomprend un polariseur et un analyseur de Glan, ainsi qu'une balance de photodiodes (photodiodes Centronic OSD5-5T). L'orientation de l'analyseur est ajustée en l'absence du cristal de ZnTe croisé au polariseur. Le système d'amplification comprend un amplificateur interne à la balance de photodiode (résistance de transimpédance de $4.5.10^4$ Ω) et un amplificateur externe (standford research systems model SR560) qui précède le détecteur synchrone.

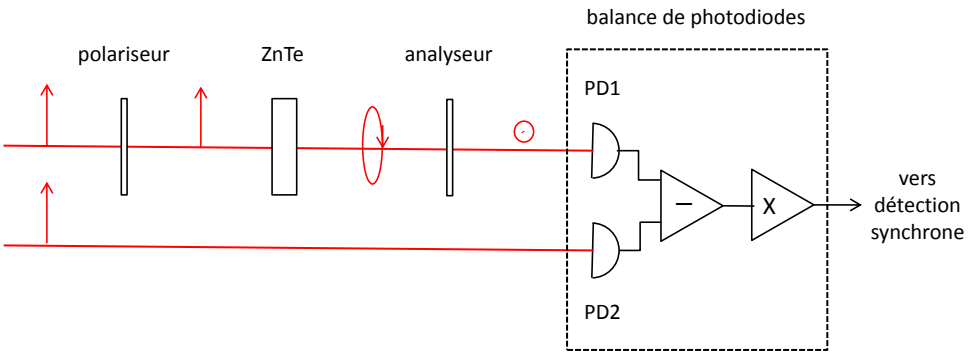


Figure C.1 – Montage associé à la détection de l'intensité non synchronisé

C.2 Expression du signal optique

Nous exprimons ici l'intensité I transmise par l'analyseur et détectée par la photodiode PD1 en fonction de l'intensité I_0 du faisceau incident sur le polariseur. Nous utilisons le formalisme de Jones [90].

Les axes des polariseur et analyseur (suivant $\overrightarrow{u_x}$ et $\overrightarrow{u_y}$) sont croisés. On suppose que les axes propres du cristal de ZnTe sont orientés à 45° de ces derniers (orientation qui

maximise en pratique le signal en TDS). La polarisation du champ incident sur le système s'écrit alors dans la base $(\overrightarrow{u_x}, \overrightarrow{u_y})$: $\begin{pmatrix}1\\0\end{pmatrix}$

Effet du cristal de ZnTe sur la polarisation:

La matrice de Jones du cristal de ZnTe s'écrit (dans la base des vecteurs portés par ses axes propres) :

$$M_Z = \begin{pmatrix} e^{i\frac{\Gamma_0+\Gamma}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\Gamma_0+\Gamma}{2}} \end{pmatrix}$$

où $\Gamma_0 + \Gamma$ représente le déphasage entre ses deux axes propres introduit par le cristal sur le champ optique, Γ_0 résultant de la biréfringence résiduelle du cristal et Γ de la biréfringence induite par le champ THz. Mais les axes propres du cristal sont orientés à 45° des axes du polariseur. La matrice de Jones dans la base $(\overrightarrow{u_x}, \overrightarrow{u_y})$ s'écrit alors :

$$M'_Z = \frac{1}{2}\begin{pmatrix}1 & -1\\1 & 1\end{pmatrix} M_Z \begin{pmatrix}1 & 1\\-1 & 1\end{pmatrix}$$

soit:

$$M'_Z = \begin{pmatrix}\cos\Delta & i\sin\Delta\\ i\sin\Delta & \cos\Delta\end{pmatrix}$$

en posant $\Delta = \dfrac{\Gamma_0+\Gamma}{2}$.

Finalement, la polarisation du champ transmis dans le cristal de ZnTe peut s'écrire :

$$M'_Z \begin{pmatrix}1\\0\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}\cos\Delta\\ i\sin\Delta\end{pmatrix}$$

Effet de l'analyseur :

Après l'analyseur la polarisation finale du champ s'écrit enfin :

$$\begin{pmatrix}0 & 0\\0 & 1\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\cos\Delta\\ i\sin\Delta\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}0\\ i\sin\Delta\end{pmatrix}$$

On en déduit l'expression de l'intensité :

$$I = I_0 \sin^2(\Delta)$$

On obtient alors dans le cadre de l'approximation des petits angles :

$$I = \frac{I_0}{4}(\Gamma_0^2 + \Gamma^2 + 2\Gamma\Gamma_0)$$

L'intensité détectable I_2 se réduit à la composante modulée à la fréquence de référence de la détection synchrone, c'est à dire :

$$I_2 = \frac{I_0}{4}(\Gamma^2 + 2\Gamma\Gamma_0)$$

où I_0 représente l'intensité transmise à travers le système polariseur et analyseur parallèles.

Si le faisceau incident sur le cristal n'est pas rectiligne la qualité du signal mesuré se détériore. Le faisceau IR à la sortie du laser Ti :Sa est rectiligne. Cependant, ce faisceau est réfléchi sur un grand nombre de miroirs avant de parvenir sur le cristal ce qui peut altérer son état de polarisation. Le polariseur est ajouté pour assurer une polarisation parfaitement rectiligne. Ceci permet d'accroître le coefficient d'extinction après l'analyseur (typiquement de 10^4 à 10^5). Le second faisceau qui incide sur la photodiode PD2 permet de réduire le signal électronique à l'entrée du système d'amplification et d'éviter les effets de saturation.

C.3 Traitement électronique du signal optique

Dans le cadre du couplage d'une impulsion THz dans la cavité du LCQ, le rayonnement émis par le laser peut avoir simultanément une contribution synchronisée (déclenchée par l'impulsion THz externe) et une contribution non synchronisée (déclenchée par l'émission spontanée) de sorte que :

$$\langle I_2(\tau)\rangle = \frac{I_0}{4}\left\{\left\langle\Gamma_s^2(t)\right\rangle + \left\langle\Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle + 2\Gamma_0\left\langle\Gamma_s(t)\right\rangle\right\} \tag{C.1}$$

où les déphasages induits par l'émission synchronisée et non synchronisée sont respectivement notés Γ_s et Γ_{ns}.

Si l'on veut distinguer ces deux contributions, il est nécessaire de s'affranchir de la contribution linéaire $2\Gamma_0\langle\Gamma_s(t)\rangle$, supérieure de plusieurs ordres de grandeurs aux deux contributions quadratique. La méthode utilisée pour supprimer cette composante est la suivante. La phase de l'impulsion THz et donc de l'émission synchronisée qui en découle peut être modifiée en changeant le signe de la tension appliquée sur l'antenne photoconductrice employée. En appliquant une modulation symétrique (par rapport à la tension nulle) sur l'antenne, on change donc périodiquement le signe de l'impulsion THz, toutes choses égales par ailleurs. Ainsi pour deux créneaux de tension successifs de signe opposés, $\langle\Gamma_s(t)\rangle$ change de signe alors que les contributions quadratiques n'en changent pas. Un choix de fréquence de détection approprié permet de ne pas détecter la partie linéaire tout en conservant la partie quadratique.
Lors par exemple d'une mesure du gain d'un QCL, on utilise un choix de modulations de tensions sur l'antenne/ le QCL pertinent (dit "F-2F" figure C.2 a)), de manière à ne détecter que la "contribution" de l'impulsion THz amplifiée par le QCL. La détection synchrone, à la fréquence de modulation du QCL F, permet alors de faire la différence (signal transmis dans le QCL allumé)- (signal transmis dans le QCL éteint).
Ici, on applique successivement des tensions positives et négatives sur l'antenne (figure C.2 b)) afin de déphaser d'un facteur π l'impulsion THz incidente. En détectant à la fréquence de modulation du QCL 2F, on extrait cette fois ci la différence ((signal transmis dans le QCL allumé)- (signal déphasé de π transmis dans le QCL allumé). Ceci permet d'être très peu sensible à la contribution $2\Gamma_0\langle\Gamma_s(t)\rangle$ (modulée à la fréquence F) tout en extrayant la contribution $\left\langle\Gamma_{ns}^2(t)\right\rangle + 2\Gamma_0\langle\Gamma_s(t)\rangle$ (modulée à la fréquence 2F).

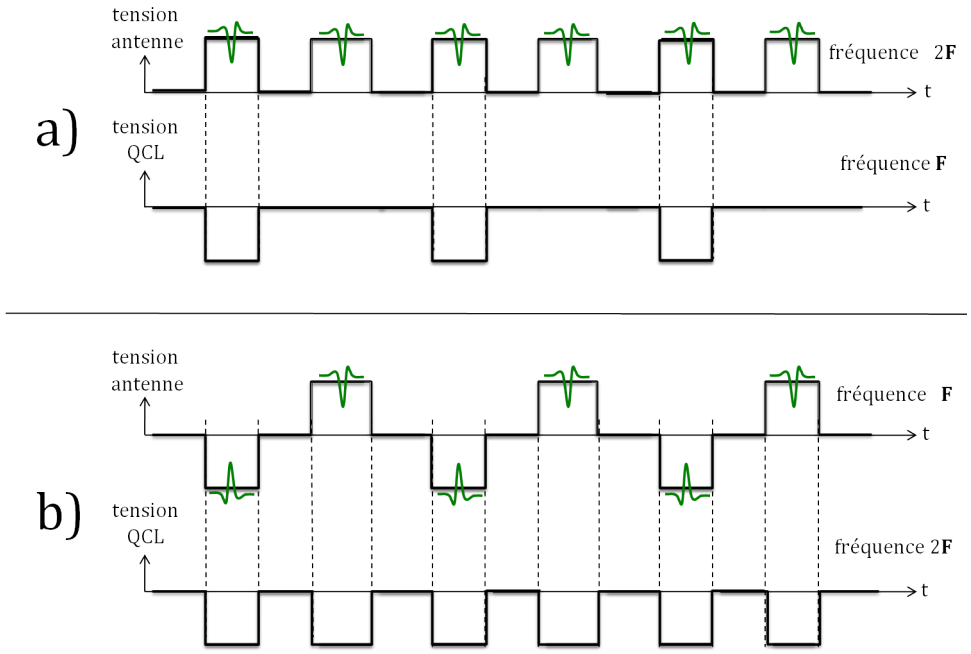


FIGURE C.2 – Montage associé à la détection de l'intensité non synchronisé

On mesure ainsi l'intensité totale émise par le LCQ, synchronisée et non-synchronisée (utilisée dans la section 3.4.4).

Cette méthode ne permet pas à elle seule de minimiser de manière suffisante la contribution linéaire. On a donc recours aux paramètres de réglage internes de la détection synchrone pour maximiser les effets de moyennage qui n'affectent que la partie linéaire. Qualitativement le choix de ces paramètres se porte sur :

- une grande constante de temps, typiquement de 1 à 5 s.
- une pente forte pour les filtres utilisés en interne par le détecteur synchrone, typiquement 24 dB/octave.
- un délai d'attente petit (devant la constante de temps) entre les mesures associées à deux points successifs d'échantillonnage. Les mesures ont été faites avec un délai approximatif de 50 ms.

Par ailleurs, cette méthode est applicable quand l'impulsion THz utilisée pour l'injection par ensemencement est produite par une antenne mais pas quand elle est produite par une petite section comme cela peut être le cas pour le laser L182 de longueur de cavité 2.85 mm. Il faudrait en fait appliquer alternativement une tension positive puis négative sur la petite section. Les petite et grande section du LCQ sont électriquement couplées. Cette modulation modifie les propriétés électriques de la grande section et ne peut donc être utilisée.

D Caractérisation du graphène

L'échantilon MEG30TL est issu d'une collaboration avec le *Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses* à Grenoble. La croissance de graphène est effectuée sur la face C d'un substrat de (4H)-SiC. Le graphène ainsi formé présente environ 35 couches, indépendamment orientées les unes par rapport aux autres. La surface de l'échantillon est 4x4 mm^2 avec une épaisseur d'environ 430 μm.

D.1 Fabrication

Il existe diverses méthodes permettant de produire du graphène monocouche ou multi-couches [25], qui se distinguent par la qualité des propriétés électroniques, l'homogénéité et la taille des échantillons obtenus. Les trois méthodes les plus communément utilisées sont: l'exfoliation mécanique, la croissance sur substrat de carbure de Silicium (SiC), et la croissance CVD (Chemical Vapor Deposition). En particulier, l'exfoliation est celle qui a permis historiquement la découverte du graphène. La croissance sur SiC est celle par laquelle les échantillons étudiés dans ce chapitre ont été obtenus. Nous décrivons donc ici uniquement cette méthode de production.

Les échantillons de graphène étudiés sont obtenus avec une approche introduite dès 2004 [213], qui consiste à produire le graphène à partir d'un cristal de carbure de silicium hydrogéné 4H(6H)-SiC épitaxié. Le cristal est porté à haute température (typiquement 1300°C), de sorte que les atomes de silicium en surface sont évaporés. La surface devient alors composée d'un fine couche d'atomes de carbone, dont la structure détaillée est dépendante de la surface considérée du cristal de SiC [214]. Pour la face terminée par des atomes de Si (face (0001)), la cinétique de formation des plans de carbone est lente. Par conséquent, il est possible de contrôler le nombre de couches: on obtient typiquement du graphène monocouche ou bicouches. Il est possible de produire une monocouche continue sur plusieurs mm, cependant elle n'est pas parfaitement uniforme: en-dessous de cette couche peuvent se former localement des empilements de quelques couches près des irrégularités de surface. La mobilité des électrons est relativement faible et la croissance sur cette face n'est donc actuellement pas la plus favorable pour des applications électroniques. En revanche, la cinétique est très rapide pour la face terminée par des atomes de carbone (face (000-1)). Le nombre de couches obtenu est typiquement de quelques dizaines et peut atteindre la centaine, la mobilité des porteurs étant très

élevée. Le graphène formé couvre toute la surface et présente des plis comme le montre la figure D.1: cette structure géométrique des feuilles de graphène est indépendante de la structuration propre de la surface du SiC. Il a été démontré que les différents plans de carbone sont orientés de manière aléatoire et ne suivent pas un empilement de type Bernal, comme pour le graphite. De plus la structure de bande associée à l'empilement des couches de graphène est très proche de celle de graphène monocouche [205]. Pour ces raisons, on utilise la désignation de graphène multicouches et non de graphite. En contraste avec le graphène exfolié, la première couche de graphène est fortement lié au substrat et en est très proche (environ 0.2 nm de distance avec le substrat [215] contre 0.4 entre les feuilles de graphène suivantes). Enfin, les couches présentent une inhomogénéité de dopage, décroissant avec la distance au substrat [216].

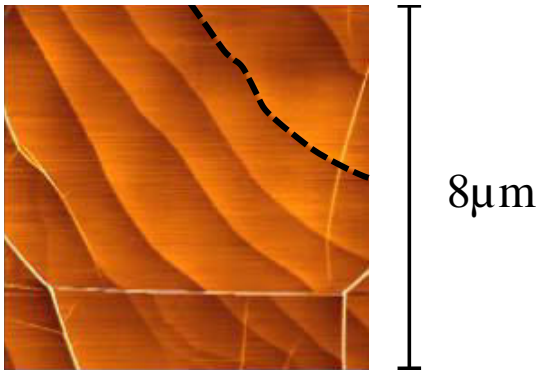


FIGURE D.1 – Image AFM de 10-12 couches de graphène sur la face C d'un substrat de SiC d'après [217]. La surface du SiC présente une structure en forme de terrasses : le trait tireté noir marque la séparation entre deux terrasses successives. Les feuilles de graphène présentent des plis, marqués par les lignes blanches.

D.2 Mesure du niveau de Fermi

Les couches présentent un dopage inhomogène, plus élevé lorsque l'on s'approche de la surface. Afin d'estimer le niveau de Fermi des différentes couches, nous avons analysé l'absorption de l'échantillon MEG30TL sous champ magnétique. Appliquer un champ magnétique perpendiculaire à un plan de graphène conduit en fait à l'apparition d'une série de niveaux de Landau (voir figure D.2 a)) où :

$$E_n = \mathrm{sgn}(n) v \sqrt{2ehB|n|} \tag{D.1}$$

correspond à l'énergie du niveau de landau dénoté avec l'indice n. $v = \pm E(\mathbf{p})/|\mathbf{p}|$ est la vitesse effective due à la dispersion linéaire du graphène autour du point de Dirac. Ainsi, l'absorption de lumière dans un tel système peut être analysé pour extraire des informations sur le profil du niveau de Fermi [218]. En effet, la transition du niveau n au niveau $n+1$ ne peut être observée que si la couche de graphène a son niveau de Fermi compris entre les énergies E_n et E_{n+1}. La mesure de l'absorption liée à la transition $n \Longrightarrow n+1$ en fonction de la valeur du champ magnétique peut ainsi donner accès à une évaluation du niveau de Fermi. En outre, cette méthode permet de distinguer différentes couches

ayant des énergies de Fermi différentes. La transmission dans le lointain infrarouge de l'échantillon sou champ magnétique avec un FTIR au LPA. La lumière est émise par une lampe à vapeur de mercure et collectée par un bolomètre. Toutes les mesures ont été effectuées à 4 K dans la géométrie Faraday. Le domaine d'énergies comprises entre 6 et 720 meV (50 cm^{-1} à 6000 cm^{-1}) a été exploré. Toutefois, la gamme 80 - 220 meV n'est pas accessible à cause de l'absorption très forte du substrat. Des amplitudes de champ magnétique dans la gamme 50 mT - 15 T ont été utilisés. Le principe de la mesure est résumé dans la figure D.2. Par exemple, l'absorption n'est possible entre les niveaux $n = 1$ et $n = 2$ que si l'amplitude du champ magnétique est compris entre les valeurs B_1 et B_2. L'identification de B_1 et B_2 permet ainsi d'estimer le niveau de Fermi de la couche de graphène associée.

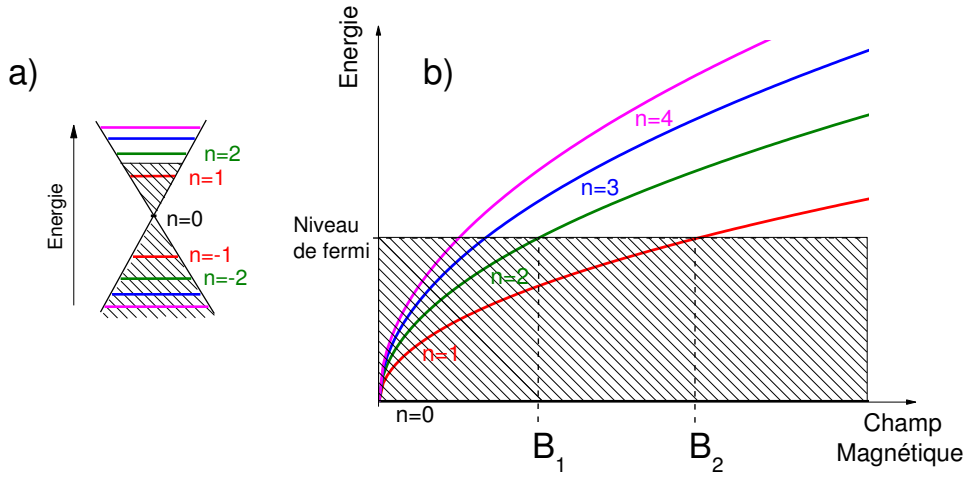


FIGURE D.2 – a) Structure de bande du graphène sous champ magnétique avec l'échelle de niveaux de Landau. La région située en-dessous du niveau de Fermi est hachurée. b) Profil d'énergie des niveaux de landau en fonction du champ magnétique.

La valeur du niveau de Fermi dépend de la couche de graphène considéré [216]. Cinq valeurs de niveau de Fermi associées à différentes couches ont été identifiées à partir des mesures dont celles représentées sur la figure D.3 : 8, 50, 90, 200 et 250 meV. Les couches de graphène proches de l'interface avec le substrat de SiC sont attendues les plus dopées. Ce dopage des premières couches du graphène épitaxié est issu d'un champ électrique d'écrantage à l'interface avec le SiC [215] avec une distance d'écrantage très courte [216] et donc une décroissance du dopage très rapide en s'éloignant de l'interface.

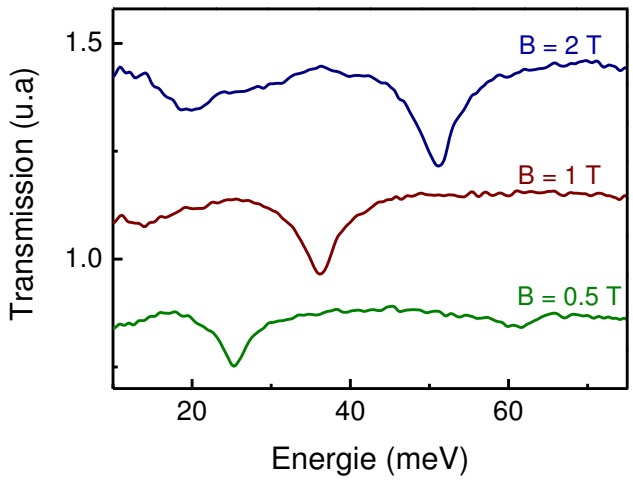


FIGURE D.3 – Transmission de la lumière incidente sur l'échantillon MEG30TL en focntion de l'énergie d'illumination pour trois valeurs différentes de champ magnétique.

E

Émission THz du SiC sous excitation optique pulsée

Le carbure de silicium est un matériau dont la non-linéarité permet la génération de différence de fréquences. En effet, la génération de THz sous excitation IR pulsée a été récemment observée [219] et interprétée en terme de mécanisme non-linéaire d'ordre 2.

Afin d'évaluer la contribution du substrat de SiC au rayonnement THz de l'échantillon MEG30TL, nous avons caractérisé la réponse non-linéaire du SiC. Pour cela, nous avons examiné l'effet seul d'un même échantillon sans graphène. Il s'agit d'un cristal de SiC originel (avant le traitement thermique permettant la formation des couches de graphène). Les profils spectral et temporel typiques de l'émission sont reportés sur la figure E.1. Le profil temporel (figure E.1 a)) est marqué par une impulsion quasi-monocycle avec une durée de l'ordre de 1 ps. Le profil spectral obtenu par transformée de fourier est reporté sur la figure b). La composante spectrale la plus marquée se situe à 1.1 THz. Au-delà de 1.2 THz, on observe une décroissance globale avec un second pic dans le spectre situé à 2.32 THz. La décroissance forte entre 1.2 et 2.1 THz est due au désaccord de phase entre les ondes THz et IR qui se propagent dans le SiC. De manière générale, le désaccord de phase induit une dépendance fréquentielle du champ $E(\omega)$ généré à la différence de fréquence [196] de la forme :

$$E(\omega) \propto \sin(\Delta kL/2)/(\Delta kL/2) \tag{E.1}$$

avec $\Delta k = \omega(n_{THz} - n_{opt}^{gr})$, où n_{THz}, n_{opt}^{gr} sont respectivement l'indice de phase de l'onde THz et l'indice de groupe de l'onde optique. Avec n_{THz}=3.0 et en supposant une valeur de 2.67 pour n_{opt}^{gr} (proche de 2.72, estimation faite dans [220]), la composante du champ THz rayonnée à 2.1 THz doit s'annuler d'après l'équation E.1. On confirme expérimentalement ce désaccord par la présence d'un creux marqué à cette fréquence. On note par ailleurs que la réponse du cristal de détection (ZnTe épaisseur 1 mm) est marquée par une décroissance très forte à des fréquences un peu plus élevées, dans la gamme 2-3 THz. Les mesures de l'émission du graphène sont sensibles à la polarisation de l'excitation IR. Il est donc important de caractériser la sensibilité de l'émission du substrat à la polarisation IR. Le résultat est reporté sur la figure E.2. On remarque que l'amplitude du signal détecté évolue notablement avec la polarisation. Le champ est maximum sous excitation polarisée P et minimum sous excitation S. Ceci est conforme

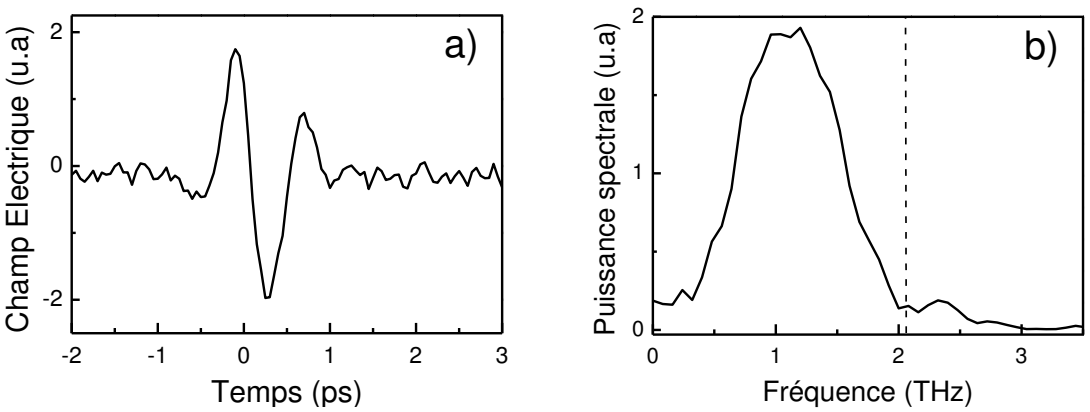


FIGURE E.1 – Emission THz induite par le substrat de SiC sous illumination IR. Ce profil a été mesuré pour un angle d'incidence de 25° et une polarisation S du faisceau IR. a) Profil temporel. b) Spectre en amplitude. Le spectre est obtenu par transformée de Fourier rapide du profil temporel. Le trait vertical tireté marque le creux du spectre situé proche de 2.1 THz, caractéristique d'un désaccord de phase entre les ondes IR et THz se propageant dans le SiC.

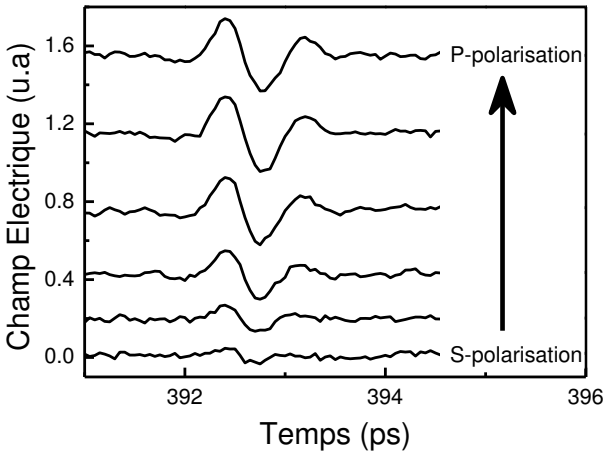


FIGURE E.2 – Profil du champ rayonné par le substrat de SiC pour diverses polarisations IR de P à S pour un angle d'incidence de 25°. La détection (orientation du cristal de ZnTe et du polariseur THz) est optimisée pour la mesure du champ suivant **x**.

à l'expression du tenseur de susceptibilité. Comme l'axe-c est suivant la direction z, ce tenseur s'écrit pour la différence de fréquence :

$$\chi^{(2)}_{ijk} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi^{(2)}_{zxx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi^{(2)}_{zxx} & 0 & 0 \\ \chi^{(2)}_{zxx} & \chi^{(2)}_{zxx} & \chi^{(2)}_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Ainsi les polarisations non-linéaires suivant **x** et **y** sont données par :

$$P_x = 4\varepsilon_0 \chi_{zxx} E_z E_x \tag{E.2}$$

$$P_y = 4\varepsilon_0 \chi_{zxx} E_z E_y \tag{E.3}$$

où E_z, E_x et E_y sont les composantes du champ électrique infrarouge suivant **z**, **x** et **y**. Les équations E.2 et E.3 montrent que la polarisation induite dans le matériau est nulle lorsque le champ IR n'a pas de composantes suivant **z** (polarisation S). Ceci va dans le sens des mesures, avec une émission minimale en polarisation S.

Le résultat important de cette étude est qu'en polarisation S, la contribution du SiC est négligeable et c'est donc cette configuration que l'on va préférentiellement choisir pour étudier l'émission du graphène et qui correspond à l'essentiel des mesures décrites dans le chapitre 5. Pour permettre la comparaison des échantillons MEG30TL et de l'échantillon sans graphène, les deux ont été placés sur un même monture, l'un au-dessus de l'autre (selon la direction **y** voir figure 5.4). La monture dispose de platines de translation micrométriques. On peut ainsi passer d'un échantillon à l'autre sans modifier les conditions expérimentales. Nous avons constaté que le champ THz émis par le substrat est au maximum de 30 % de l'amplitude du champ électrique rayonné par le graphène sous polarisation infrarouge P.

F

Publications et Communications

Publications

1. A. Brewer, J.R. Freeman, P. Cavalié, J. Maysonnave, J. Tignon, S.S. Dhillon, H.E. Beere, et D.A. Ritchie. "Coherent detection of metal-metal terahertz quantum cascade lasers with improved emission characteristics". *Applied Physics Letters* **104**, 081107 (2014)

2. J.R. Freeman, J. Maysonnave, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, S.S. Dhillon, et J. Tignon. "Laser-seeding dynamics with few-cycle pulses : Maxwell-Bloch finite-difference time-domain simulations of terahertz quantum cascade lasers". *Physical Review A* **87**, 063817 (2013)

3. J.R. Freeman, J. Maysonnave, H.E. Beere, D.A. Ritchie, J. Tignon, et S.S. Dhillon. "Electric field sampling of modelocked pulses from a quantum cascade laser". *Optics Express* **21**, 16162-16169 (2013)

4. J. Maysonnave, K. Maussang, J.R. Freeman, N. Jukam, J. Madéo, P. Cavalié, R. Rungsawang, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, H.E. Beere, D.A. Ritchie, S.S. Dhillon et J. Tignon. "Mode-locking of a terahertz laser by direct phase synchronization".*Optics Express* **20**, 20855-20862 (2012)

5. J.R. Freeman, J. Maysonnave, N. Jukam, P. Cavalié, K. Maussang, H.E. Beere, D.A. Ritchie, J. Mangeney, S. S. Dhillon, et J. Tignon. "Direct intensity sampling of a modelocked terahertz quantum cascade laser". *Applied Physics Letters* **101**, 181115 (2012)

6. J. Madéo, P. Cavalié, J.R. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, H.E. Beere, D.A. Ritchie, C. Sirtori, J. Tignon et S.S. Dhillon. "All-optical wavelength shifting in a semiconductor laser using resonant nonlinearities". *Nature Photonics* **6**, 519-524 (2012)

7. J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalié, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, J. Tignon et S.S. Dhillon. "Integrated injection seeded terahertz source and amplifier for time-domain spectroscopy". *Optics Letters* **37**, 731-733 (2012)

8. J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalié, P. Dean, P.Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, S.S. Dhillon et J. Tignon. "Measuring the sampling coherence of a terahertz quantum cascade laser". *Optics Express* **20**, 16662-16670 (2012)

9. R. Rungsawang, N. Jukam, J. Maysonnave, P. Cavalié, J. Madéo, D. Oustinov, S.S. Dhillon, J. Tignon, P. Gellie, C. Sirtori, S. Barbieri, H.E. Beere, and D.A. Ritchie. "Gain enhancement in a terahertz quantum cascade laser with parylene antireflection coatings". *Applied Physics Letters* **98**, 101102 (2011)

Conférences

1. J. Maysonnave, J.R. Freeman, N. Jukam, P. Cavalié, K. Maussang, H.E. Beere, D.A. Ritchie, J. Mangeney, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Direct optical sampling of a modelocked terahertz Quantum Cascade Laser", 38th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2013) Mainz , Germany

2. J.R. Freeman, J. Maysonnave, K. Maussang, P. Cavalié, E.H. Linfield, G. Davies, J. Mangeney, S.S. Dhillon, J. Tignon, "maxwell-Bloch FDTD simulations of seeding in terahertz quantum cascade laser", International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST 2013) Kyoto , Japan

3. J. Maysonnave, J.R. Freeman, N. Jukam, P. Cavalié, K. Maussang, H.E. Beere, D.A. Ritchie, J. Mangeney, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Direct intensity sampling of a modelocked terahertz Quantum Cascade Laser", International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST 2013) Kyoto , Japan

4. J. Maysonnave, K. Maussang, J.R. Freeman, N. Jukam, P. Cavalié, J. Mangeney, S. Khanna, E.H. Linfield, G. Davies, H.E. Beere, D.A. Ritchie, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Modelocking in a Terahertz Quantum Cascade Laser", Journées de la Matière Condensée (JMC 2013) Montpellier, France

5. J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, K. Maussang, P. Cavalié, J.R. Freeman, J. Mangeney, P. Dean, S. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Integrated injection seeded THz Quantum Cascade Laser for time-domain spectroscopy", Journées de la Matière Condensée (JMC 2013) Montpellier, France

6. J. Maysonnave, K. Maussang, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Madéo, P. Cavalié, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Generation and amplification of ultrafast THz pulses using gain switching in quantum cascade lasers", *Proceedings of SPIE*, 8268, (2012)

7. P. Cavalié, J. Madéo, J.R. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, C. Sirtori, J. Tignon, S.S. Dhillon, "Optical wavelength shifting using resonant non-linearities in THz quantum cascade lasers", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2012) San Jose, USA

8. P. Cavalié, J. Madéo, J.R. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, J. Mangeney, H.E. Beere, D.A. Ritchie, C. Sirtori, J. Tignon, S.S. Dhillon, "Optical wavelength shifting using resonant non-linearities in THz quantum cascade lasers", 37th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2012) Univ Wollongong, Wollongong, Australia

9. J.R. Freeman, J. Maysonnave, K. Maussang, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, P. Cavalié, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Injection seeding dynamics of THz quantum cascade lasers 2012 37th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves", 37th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2012) Univ Wollongong, Wollongong, Australia

10. J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalie, J.R. Freeman, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, J. Tignon, S.S. Dhillon, "Integrated injection seeded THz source and amplifier for time-domain spectroscopy", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2012) San Jose, USA

11. J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, K. Maussang, R. Rungsawang, J. Madeo, P. Cavalié, J.R. Freeman, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies,S.S. Dhillon, J. Tignon, "Time-domain measurements of the sampling coherence of a quantum cascade laser", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2012) San Jose, USA

12. J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, K. Maussang, R. Rungsawang, J. Madeo, P. Cavalié, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies,S.S. Dhillon, J. Tignon, "Time domain measurements of the sampling coherence of a terahertz quantum cascade laser", 37th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2012) Univ Wollongong, Wollongong, Australia

13. J. Maysonnave, K. Maussang, N. Jukam, P. Cavalié, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, H.E. Beere, D.A. Ritchie, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Phase Modelocking of a Terahertz quantum cascade laser", Conference on Lasers and Electro-

Optics (CLEO 2012) San Jose, USA

14. J. Madéo, N. Jukam, D. Oustinov, R. Rungsawang, J. Maysonnave, P. Cavalie, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, S.S. Dhillon, "Phase seeding of a terahertz quantum cascade laser", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2011) Baltimore, USA

15. J. Maysonnave, N. Jukam, K. Maussang, R. Rungsawang, J. Madéo, P. Cavalié, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Ultrafast Gain Switching of THz Quantum Cascade Lasers : Principle and Applications", 37th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2011) Houston, USA

16. R. Rungsawang, F. Perez, D. Oustinov, J. Madéo, J. Gomez, N. Jukam, J. Maysonnave, P. Cavalié, T. Wojtowicz, S.S. Dhillon, J. Tignon, "Terahertz radiation from spin coherence optically induced in diluted magnetic semiconductors", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2011) Baltimore, USA

Bibliographie

[1] Yun-Shik Lee. *Principles of Terahertz Science and Technology.* Springer, (2009).

[2] M. Tonouchi. "Cutting-edge terahertz technology". *Nature Photonics*, Vol. **1**(97) :105, 2007.

[3] M.C. Kemp, P.F. Taday, B.E. Cole, J.A. Cluff, A.J. Fitzgerald, and W.R. Tribe. "Security applications of terahertz technology". *Proc. SPIE*, Vol. **5070** :44–52, 2003.

[4] W.H. Fan, A. Burnett, P.C. Upadhya, J. Cunningham, E.H. Linfield, and A.G. Davies. "Far-Infrared Spectroscopic Characterization of Explosives for Security Applications Using Broadband Terahertz Time-Domain Spectroscopy". *Applied Spectroscopy*, Vol. **61** :638–643, 2007.

[5] A. Redo-Sanchez, G. Salvatella, R. Galceran, E. Roldos, J.-A. Garcia-Reguero, M. Castellari, and J. Tejada. "Assessment of terahertz spectroscopy to detect antibiotic residues in food and feed matrices". *Analyst*, Vol. **136** :1733–1738, 2011.

[6] Dimitri Oustinov. *"Etude statique et dynamique de lasers à cascade quantique par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel".* PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, (2011).

[7] E. Castro-Camus, M. Palomar, and A.A. Covarrubias. "Leaf water dynamics of Arabidopsis thaliana monitored in-vivo using terahertz time-domain spectroscopy". *Scientific Reports*, Vol. **18**, 2013.

[8] A.A. Gowen, C. O'Sullivan, and C.P. O'Donnell. "Terahertz time domain spectroscopy and imaging : Emerging techniques for food process monitoring and quality control". *Trends in Food Science & Technology*, Vol. **25**(1) :40–46, 2012.

[9] P. Y. Han, M. Tani, M. Usami, S. Kono, R. Kersting, and X.-C. Zhang. "A direct comparison between terahertz time-domain spectroscopy and far-infrared Fourier transform spectroscopy". *Journal of Applied Physics*, Vol. **89**(4) :2357–2359, 2001.

[10] T.D. Dorney, R.G. Baraniuk, and D.M. Mittleman. "Material parameter estimation with terahertz time-domain spectroscopy". *J. Opt. Soc. Am. A*, Vol. **18**(7) :1562–1571, 2001.

[11] N. Jukam, S. Dhillon, Z-Y. Zhao, G. Duerr, J. Armijo, N. Sirmons, S. Hameau, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, and J. Tignon. "Gain Measurements of THz Quantum Cascade Lasers using THz Time-Domain Spectroscopy". *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. **14** :436–442, (2008).

[12] J. Kroll, J. Darmo, S.S. Dhillon, X. Marcadet, M. Calligaro, C. Sirtori, and K. Unterrainer. "Phase-resolved measurements of stimulated emission in a laser". *Nature*, Vol. **449** :698–701, (2007).

[13] Jérôme Faist. *Quantum Cascade Lasers.* Oxford University Press, 2013.

[14] J. Faist, F. Capasso, D. Sivco, C. Sirtori, A. Hutchinson, and A. Cho. "Quantum Cascade Lasers". *Science*, Vol. **264** :553–556, (1994).

[15] C. Walther, M. Fischer, G. Scalari, R. Terazzi, N. Hoyler, and J. Faist. "Quantum cascade lasers operating from 1.2 to 1.6 THz". *Applied Physics Letters*, Vol. **91**(13) :131122, 2007.

[16] I.P. Marko, A.R. Adams, S.J. Sweeney, R. Teissier, A.N. Baranov, and S. Tomic. "Evidence of carrier leakage into the L-valley in InAs-based quantum cascade lasers under high hydrostatic pressure". *Physica Satus Solidi*, Vol. **246** :512–515, (2009).

[17] D. Oustinov, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Madeo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, and S.S. Dhillon. "Phase seeding of a terahertz quantum cascade laser.". *Nature communications*, Vol. **1** :69, (2010).

[18] J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, R. Rungsawang, K. Maussang, J. Madeo, P. Cavalie, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, S.S. Dhillon, and J. Tignon. "Measuring the sampling coherence of a terahertz quantum cascade laser". *Optics Express*, Vol. **20**, (2012).

[19] J. Maysonnave, N. Jukam, M.S.M. Ibrahim, R. Rungsawang, J. Maussang, K. Madeo, P. Cavalie, P. Dean, S.P. Khanna, D.P. Steenson, E.H. Linfield, A.G. Davies, J. Tignon, and S.S. Dhillon. "Integrated injection seeded terahertz source and amplifier for time-domain spectroscopy". *Optics Letters*, Vol. **37**, (2012).

[20] J .R. Freeman, J. Maysonnave, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, S.S. Dhillon, and J. Tignon. "Laser-seeding dynamics with few-cycle pulses : Maxwell-Bloch finite-difference time-domain simulations of terahertz quantum cascade lasers". *Physical Review A*, Vol. **87** :063817, (2013).

[21] S. Barbieri, M. Ravaro, P. Gellie, G. Santarelli, C. Manquest, C. Sirtori, S.P. Khanna, E.H. Linfield, and A.G Davies. " Coherent sampling of active-modelocked terahertz quantum cascade lasers and frequency synthesis". *Nature Photonics*, Vol. **5**, (2011).

[22] J.R. Freeman, J. Maysonnave, N. Jukam, P. Cavalie, K. Maussang, H.E. Beere, D.A. Ritchie, J. Mangeney, S.S. Dhillon, and J. Tignon. "Direct intensity sampling of a modelocked terahertz quantum cascade laser ". *Applied Physics Letters*, Vol. **101** :181115, (2012).

[23] J.R. Freeman, J. Maysonnave, H.E. Beere, D.A. Ritchie, J. Tignon, and S.S. Dhillon. "Electric field sampling of modelocked pulses from a quantum cascade laser". *Optics Express*, Vol. **21**(13) :16162–16169, (2013).

[24] Mikhail I. Katsnelson. *Graphene : Carbon in Two Dimensions*. Cambridge University Press, (2012).

[25] F. Bonaccorso, Z. Sun, T. Hasan, and A. C. Ferrari. "Graphene photonics and optoelectronics". *Nature Photonics*, Vol. **4** :611–622, (2010).

[26] M.M. Glazov and S.D. Ganichev. "High frequency electric field induced nonlinear effects in graphene". *Physics Reports*, Vol. **535** :101–138, (2014).

[27] Anthony Siegman. *Lasers*. University Science Books Mill Valley, California, 1981.

[28] M. Joffre, C. Benoit à la Guillaume, N. Peyghambarian, M. Lindberg, D. Hulin, M. Migus, S.W. Koch, and A. Antonetti. "Coherent effects in pump–probe spectroscopy of excitons". *Optics Letters*, Vol. **13**(4) :276–278, 1988.

[29] R. Casiday and R. Frey. ""I Have Seen the Light !" Vision and Light-Induced Molecular Changes". `http://www.chemistry.wustl.edu/~edudev/LabTutorials/Vision/Vision.html`.

[30] U. Morgner, F. X. Kartner, S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi. "Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti :sapphire laser". *Optics Letters*, Vol. **24**(6) :411–413, (1999).

[31] F.E. Doany, D. Grischkowsky, and C.-C. Chi. "Carrier lifetime versus ion implantation dose in silicon on sapphire". *Applied Physics Letters*, Vol. **50**(8) :460–462, 1987.

[32] K. A. McIntosh, K.B. Nichols, S. Verghese, and E.R. Brown. "Investigation of ultrashort photocarrier relaxation times in low-temperature-grown GaAs". *Applied Physics Letters*, Vol. **70**(3) :354–356, 1997.

[33] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy, and M. Helm. "High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor". *Applied Physics Letters*, Vol. **86**(12) :121114, 2005.

[34] J. Madéo, N Jukam, D. Oustinov, R. Rosticher, N. Rungsawang, J. Tignon, and S.S. Dhillon. "Frequency tunable terahertz interdigitated photoconductive antennas". *Electronics Letters*, Vol. **46** :611–613, 2010.

[35] G. Gallot, Jiangquan Zhang, R. W. McGowan, Tae-In Jeon, and D. Grischkowsky. "Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation". *Applied Physics Letters*, Vol. **74**(23) :3450–3452, 1999.

[36] S. Gu and M. Tani. *Terahertz Optoelectronics*. Springer, Berlin, (2005).

[37] J. Hebling, A.G. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl. "Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts". *Applied Physics B*, Vol. **78**(5) :593–599, 2004.

[38] D.J. Cook and R.M. Hochstrasser. "Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air". *Optics Letters*, Vol. **25**(16) :1210–1212, 2000.

[39] P.C.M Planken, H.K. Nienhuys, H.J. Bakker, and T. Wenckebach. "Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe". *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol. **18**(3) :313–317, 2001.

[40] G. Gallot, Jiangquan Zhang, R. W. McGowan, Tae-In Jeon, and D. Grischkowsky. "Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation". *Applied Physics Letters*, Vol. **74**(23) :3450–3452, 2006.

[41] H.G. Roskos. "Overview on time-domain terahertz spectroscopy and its applications in atomic and semiconductor physics". *Physica Scripta*, Vol. **2000**(T86) :51, 2000.

[42] C. Jansen, S. Wietzke, O. Peters, M. Scheller, N. Vieweg, M. Salhi, N. Krumbholz, C. Jördens, T. Hochrein, and M. Koch. "Terahertz imaging : applications and perspectives". *Applied Optics*, Vol. **49**(19) :E48–E57, 2010.

[43] P.U. Jepsen, D.G. Cooke, and M. Koch. "Terahertz spectroscopy and imaging – Modern techniques and applications". *Laser & Photonics Reviews*, Vol. **5**(1) :124–166, 2011.

[44] L. Esaki and R. Tsu. "Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors". *IBM J. Res. Develop.*, Vol. **14** :61–65, (1970).

[45] R. Kazarinov and R. Suris. "Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice". *Sov. Phys. Semicond.*, Vol. **4** :707–709, (1971).

[46] T. Ando, A. Fowler, and F. Stern. "Electronic properties of two-dimensionnal systems". *Review in Modern Physics*, Vol. **54** :437–672, (1982).

[47] R. Gornik and D. Tsui. "Voltage tunable far-infrared emission from Si inversion layers". *Physical Review Letters*, Vol. **37** :1425–1428, (1976).

[48] L. West and S. Eglash. "First observation of an extremely large-dipole infrared transition within the conduction band of a GaAs quantum well". *Applied Physics Letters*, Vol. **46** :1156–1158, (1985).

[49] M. Helm, P. England, E. Colas, F. DeRosa, and S. Allen. Iintersubband emission from semiconductor superlattices excited by sequential resonant tunneling". *Physical Review Letters*, Vol. **63** :74–77, (1989).

[50] B. Levine, K. Choi, C. Bethea, J. Walker, and R. Malik. "New 10 microns infrared detectors using intersubband absorption in resonant tunneling GaAlAs superlattices". *Applied Physics Letters*, Vol. **50** :1092–1094, (1987).

[51] R.N. Hall, G.E. Fenner, J.D. Kingsley, T.J. Soltys, and R.O. Carlson. "Coherent light emission from GaAs junctions". *Physical Review Letters*, Vol. **9** :366–368, (1962).

[52] M.I. Nathan, W.P. Dunke, G. Burns, F.H. Dill Jr, and G. Lasher. "Stimulated emission of radiation from GaAs p-n junctions". *Applied Physics Letters*, Vol. **1** :62–64, (1962).

[53] R.D. Dupuis, P.D. Dapkus, N. Holonyak Jr, E.A. Rezek, and R. Chin. "Room-temperature laser operation of quantum-well Ga1xAlxAsGaAs laser diodes grown by metalorganic chemical vapor deposition". *Applied Physics Letters*, Vol. **32** :295–297, (1978).

[54] W.W. Bewley, C.L. Canedy, C.S. Kim, M. Kim, C.D. Merritt, J. Abell, I. Vurgaftman, and J.R. Meyer. "Continuous-wave interband cascade lasers operating above room temperature at λ = 4.7-5.6 μm". *Optics Express*, Vol. **20**(3) :3235–3240, 2012.

[55] Gérald Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures.* les Editions De Physique, 1988.

[56] H.C. Liu and F. Capasso. *Intersubband Transitions in Quantum Wells : Physics and Device Applications I.* Academic press, (2000).

[57] H.C. Liu and F. Capasso. *Intersubband Transitions in Quantum Wells : Physics and Device Applications II.* Academic press, (2000).

[58] M. Razeghi. "High-Performance InP-Based Mid-IR Quantum Cascade Lasers". *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, Vol. **15**(3) :941–951, 2009.

[59] M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilegems, E. Gini, and H. Melchior. "Continuous Wave Operation of a Mid-Infrared Semiconductor Laser at Room Tempera- ture". *Science*, Vol. **295** :301–304, (2002).

[60] Y. Bai, S. Slivken, S. Kuboya, S.R. Darvish, and M. Razeghi. "Quantum cascade lasers that emit more light than heat". *Nature photonics*, Vol. **4** :99–102, (2010).

[61] C.Y. Wang, L. Kutznetsova, V.M. Gkortsas, L. Diehl, F.X. Kartner, A. Belkin, A. Belyanin, X. Li, D. Ham, H. Schneider, P. Grant, C.Y. Song, S. Haffouz, Z.R. Wasilewski, H.C. Liu, and F. Capasso. "Mode-locked pulses from mid-infrared quantum Cascade Lasers". *Optics Express*, Vol. **17**, (2009).

[62] S. Fathololoumi, E. Dupont, C.W.I. Chan, Z.R. Wasilewski, S.R. Laframboise, D. Ban, A. Mátyás, C. Jirauschek, Q. Hu, and H.C. Liu. Terahertz quantum cascade lasers operating up to &#x0223c ; 200 k with optimized oscillator strength and improved injection tunneling. *Optics Express*, Vol. **20**(4) :3866–3876, 2012.

[63] B.S. Williams, S.M. Kumar, Q. Hu, and J.L. Reno. "Operation of terahertz quantum-cascade lasers at 164 K in pulsed mode and at 117 K in continuous-wave mode". *Optics Express*, Vol. **13** :3331–3339, (2005).

[64] M.I. Amanti, G. Scalari, R. Terazzi, M. Fischer, M. Beck, J. Faist, A. Rudra, P. Gallo, and E. Kapon. "Bound-to-continuum terahertz quantum cascade laser with a single-quantum-well phonon extraction/injection stage". *New Joural of Physics*, Vol. **11** :125022, (2009).

[65] E. Dupont, S. Fathololoumi, and H. Liu. "Simplify density-matrix model applied to three-well terahertz quantum-cascade lasers". *Physical Review B*, Vol. **81** :205311, (2010).

[66] L. Li, L. Chen, J. Zhu, J.R. Freeman, P. Dean, A. Valavanis, A.G. Davies, and E.H. Linfield. "Terahertz quantum cascade lasers with >1 W output powers". *Electronics Letters*, Vol. **50**(4) :051912, (2014).

[67] B.S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, and J.L. Reno. "High-power terahertz quantum-cascade lasers". *Electronics Letters*, Vol. **42** :89–91, 2006.

[68] J.H. Smet, C.G. Fonstad, and Q. Hu. "Intrawell and interwell intersubband transitions in multiple quantum wells for far infrared sources". *Journal of Applied Physics*, Vol. **79**(12) :9305–9320, 1996.

[69] M. Helm, P. England, E. Colas, F. DeRosa, and S. Allen. "Intersubband emission from semiconductor superlattices excited by sequential resonant tunneling". *Physics Review Letters*, Vol. **63** :74–77, (1989).

[70] G. Scalari, C. Walther, M. Fischer, R. Terazzi, H. Beere, D. Ritchie, and J. Faist. "THz and sub-THz quantum cascade lasers". *Lasers and Photonics Reviews*, Vol. **3** :45–66, (2009).

[71] A. Tredicucci, F. Capasso, C. Gmachl, D.L. Sivco, A.L. Hutchinson, and A.Y. Cho. "High performance interminiband quantum cascade lasers with graded superlattices". *Applied Physics Letters*, Vol. **73** :2101–2103, (1998).

[72] R. Kohler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. Beere, E Linfield, A. Davies, and D. Ritchie. "Terahertz semiconductor-heterostructure device". *Nature*, Vol. **417** :156–159, (2002).

[73] G. Scalari, I. Ajili, J. Faist, H. Beere, E. Linfield, D. Ritchie, and A. Davies. "Far-infrared bound-to-continuum quantum-cascade lasers operating up to 90 K". *Applied Physics Letters*, Vol. **82** :3165–3167, (2003).

[74] C. Worrall, J. Alton, M. Houghton, S. Barbieri, H.E. Beere, D.A. Ritchie, and C. Sirtori. "Continuous wave operation of a superlattice quantum cascade laser emitting at 2 THz". *Optics Express*, Vol. **14**(1) :171–181, 2006.

[75] A. Leuliet, A. Vasanelli, A. Wade, G. Fedorov, D. Smirnov, G. Bastard, and C. Sirtori. "Electron scattering spectroscopy by a high magnetic field in quantum cascade lasers". *Physical Review B*, Vol. **73** :085311, 2006.

[76] B. Williams, H. Callebaut, S. Kumar, H. Qin, and J. Reno. "3-4 THz quantum-cascade laser based on longitudinal-optical-phonon scattering for depopulation". *Applied Physics Letters*, Vol. **82** :1015–1017, (2003).

[77] S. Kumar, Q. Hu, and J. Reno. "186 K operation of terahertz quantum-casacde lasers based on a diagonal design". *Applied Physics Letters*, Vol. **94** :131105, (2009).

[78] G. Scalari, M. Amanti, C. Walther, R. Terazzi, M. Beck, and J. Faist. "Broadband Thz lasing from a photon-phonon quantum-cascade stucture". *optics Express*, Vol. **18** :8043–8052, (2010).

[79] H. Raether. "Surface plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings". *Springer-Verlag*, Vol. **111** :1–56, (1998).

[80] B. Williams, S. Kumar, Q. Hu, and J. Reno. "Operation of terahertz quantum-cascade laser at 164 K in pulsed mode and 117 K in continuous-wave mode". *Optics Express*, Vol. **13** :3331–3339, (2005).

[81] B.W. Hakki and T.L. Paoli. "Gain spectra in GaAs doubleheterostructure injection lasers". *Journal of Applied Physics*, Vol. **46**(3) :1299–1306, 1975.

[82] W. Parz, T. Müller, J. Darmo, M. Austerer, G. Strasser, L. Wilson, J. Cockburn, A. Krysa, J. Roberts, and K. Unterrainer. "Intersubband gain-induced dispersion". *Optics Letters*, Vol. **34**(2) :208–210, 2009.

[83] S. Kohen, B.S. Williams, and Q. Hu. "Electromagnetic modeling of terahertz quantum cascade laser waveguides and resonators". *Journal of Applied Physics*, Vol. **97**(5) :053106, 2005.

[84] K. Iwashita and K. Nakagawa. "Suppression of Mode Partition Noise by Laser Diode Light Injection ". *Microwave Theory and Techniques*, Vol. **30** :1657–1662, (1982).

[85] J. Yu, U.N. Singh, N.P. Barnes, and M. Petros. "125-mJ diode-pumped injection-seeded Ho :Tm :YLF laser.". *Optics letters*, Vol. **23** :780–2, (1998).

[86] S. Hannemann, E-J. van Duijn, and W. Ubachs. "A narrow-band injection-seeded pulsed titanium :sapphire oscillator-amplifier system with on-line chirp analysis for high-resolution spectroscopy.". *The Review of scientific instruments*, Vol. **78** :103102, (2007).

[87] N.P Barnes and J.C Barnes. "Injection Seeding I : Theory". *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. **29** :2670–2683, (1993).

[88] J.C. Barnes, N.P. Barnes, W. Edwards, and L.G. Wang. "Injection seeding ; II : Ti :Al[sub 2]O[sub 3] experiments". *IEEE Journal of Quantum Electronics*, (1993).

[89] Pierre Gellie. *"Active mode-locking and control of the spectral properties of terahertz quantum cascade lasers"*. PhD thesis, Université Paris Diderot - Paris 7, (2012).

[90] Amnon Yariv. *Quantum Electronics*. Wiley, 1975.

[91] V-M Gkortsas, C. Wang, L. Kuznetsova, L. Diehl, A. Gordon, C. Jirauschek, M. a Belkin, A. Belyanin, F. Capasso, and F.X. Kartner. "Dynamics of actively mode-locked Quantum Cascade Lasers.". *Optics express*, Vol. **18** :13616–30, (2010).

[92] L. Ajili, G. Scalari, J. Faist, H. Beere, E. Linfield, D. Ritchie, and G. Davies. "High power quantum cascade lasers operating at $\lambda \sim 87$ and 130 μm". *Applied Physics Letters*, Vol. **85**(18) :3986–3988, 2004.

[93] A Hugi, G Villares, S Blaser, H.C. Liu, and J. Faist. "Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser.". *Nature*, Vol. **492** :229–233, (2012).

[94] P. Harrison. "The nature of the electron distribution functions in quantum cascade lasers". *Applied Physics Letters*, Vol. **75**(18) :2800–2802, 1999.

[95] A Gordon, C Wang, L. Diehl, F. Kartner, A. Belyanin, D. Bour, S. Corzine, G. Hofler, H. Liu, H. Schneider, T. Maier, M. Troccoli, J. Faist, and Federico Capasso. "Multimode regimes in quantum cascade lasers : From coherent instabilities to spatial hole burning". *Physical Review A*, Vol. **77** :1–18, (2008).

[96] C. Menyuk and M. Talukder. "Self-Induced Transparency Modelocking of Quantum Cascade Lasers". *Physical Review Letters*, Vol. **102**(2) :1–4, (2009).

[97] R.W. Ziolkowski, J. M Arnold, and D.M. Gogny. "Ultrafast pulse interactions with two-level atoms". *Physical Review A*, Vol. **52** :3082–3094, (1995).

[98] N. Jukam, S.S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madeo, C. Manquest, S. Barbieri, C. Sirtori, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, and J. Tignon. "Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser". *Nature Photonics*, Vol. **3** :715, (2009).

[99] Un video de la simulation complète peut etre telechargee dans la rubrique "supplemental material". `http://journals.aps.org/pra/abstract/10.1103/PhysRevA.87.063817`.

[100] H. Choi, L. Diehl, Z. Wu, M. Giovannini, J. Faist, F. Capasso, and T. Norris. "Gain Recovery Dynamics and Photon-Driven Transport in Quantum Cascade Lasers". *Physical Review Letters*, Vol. **100** :1–4, (2008).

[101] R. Green, A. Tredicucci, N. Vinh, B. Murdin, C. Pidgeon, H. Beere, and D. Ritchie. "Gain recovery dynamics of a terahertz quantum cascade laser". *Physical Review B*, Vol. **80** :2–6, (2009).

[102] J. Faist, D. Hofstetter, M. Beck, T. Aellen, M. Rochat, and S. Blaser. "Bound-to-Continuum and Two-Phonon Resonance Quantum-Cascade Lasers for High Duty Cycle, High-Temperature Operation". *IEEE Journal of quantum electronics*, Vol. **38** :533–546, (2002).

[103] R. Rungsawang, O. Marshall, J.R. Freeman, H.E. Beere, S. Malik, J. Alton, S. Barbieri, and D.A. Ritchie. "Intensity detection of terahertz quantum cascade laser radiation using electro-optic sampling". *Applied Physics Letters*, Vol. **93**(19) :191111, (2008).

[104] J. Darmo, M. Martl, and K. Unterrainer. "Quasi phase-matched terahertz detector". *Electronics Letters*, Vol. **46**, (2010).

[105] Z. Jiang and X.C. Zhang. "Single-shot spatiotemporal terahertz field imaging". *Optics Letters*, Vol. **23** :1114, (1998).

[106] A. Brewer, J.R. Freeman, P. Cavalié, J. Maysonnave, J. Tignon, S.S. Dhillon, H. E. Beere, and D.A. Ritchie. "Coherent detection of metal-metal terahertz quantum cascade lasers with improved emission characteristics". *Applied Physics Letters*, Vol. **104** :081107, (2014).

[107] S.S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madeo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, and J. Tignon. "Integrated terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers". *Applied Physics Letters*, Vol. **96**(6) :061107, (2010).

[108] D. Burghoff, T-Y. Kao, D. Ban, A. Wei, M. Lee, Q. Hu, and J. Reno. "A terahertz pulse emitter monolithically integrated with a quantum cascade laser". *Applied Physics Letters*, Vol. **98** :061112, (2011).

[109] Y. Chassagneux, R. Colombelli, W. Maineult, S. Barbieri, H.E. Beere, D.A. Ritchie, S.P. Khanna, E.H. Linfield, and A.G. Davies. "Electrically pumped photonic-crystal terahertz lasers controlled by boundary conditions.". *Nature*, Vol. **457** :174–8, (2009).

[110] J.A. Fan, M.A. Belkin, F. Capasso, S.P. Khanna, M. Lachab, A.G. Davies, and E.H. Linfield. "Surface emitting terahertz quantum cascade laser with a double-metal waveguide". *Optics Express*, Vol. **14**(24) :11672, (2006).

[111] N. Yu, Q.J. Wang, M.A Kats, J.A. Fan, S.P. Khanna, L. Li, A.G. Davies, E.H. Linfield, and F. Capasso. "Designer spoof surface plasmon structures collimate terahertz laser beams.". *Nature materials*, Vol. **9** :730–5, (2010).

[112] W. Maineult, P. Gellie, A. Andronico, P. Filloux, G. Leo, C. Sirtori, S. Barbieri, E. Peytavit, T. Akalin, J-F. Lampin, H.E. Beere, and D.A. Ritchie. "Metal-metal terahertz quantum cascade laser with micro-transverse-electromagnetic-horn antenna". *Applied Physics Letters*, Vol. **93**(18) :183508, (2008).

[113] G Scalari, A.V. Kolck, M. Fischer, M. Beck, and J. Faist. "Coupling terahertz radiation between sub-wavelength metal-metal waveguides and free space using monolithically integrated horn antennae". *Optics Express*, Vol. **17**(20) :846–848, (2009.

[114] B. Cagnac and J.P. Faroux. *Lasers*. Les Editions De Physique, (2002).

[115] Valeria Nuzzo. *"Mechanisms of femtosecond laser-cornea interaction in keratoplasty"*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, (2008).

[116] S. Arahira, Y. Matsui, and Y. Ogawa. "Mode-locking at very high repetition rates more than terahertz in passively mode-locked distributed-Bragg-reflector laser diodes". *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. **32**(7) :1211–1224, (1996).

[117] R. Trebino. *"frequency-Resolved Optical Gating : The Measurement of Ultrashort Laser Pulses"*. Springer, (2002).

[118] W.E. Lamb Jr. "Theory of an Optical Maser". *Physical Review*, Vol. **134** :A1429–A1450, (1964).

[119] H.D. Macomber. "Theory of Pulse Shaping by Saturable Optical Materials ". *Journal of Applied Physics*, Vol. **38** :3525, (1967).

[120] H.D. Macomber. "Semiconductir saturable absorber mirrors (SESAM's) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers". *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. **2** :435–453, (1996).

[121] L. E. Hargrove, R. L. Fork, and M. A. Pollack. "Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation". *Applied Physics Letters*, Vol. **5** :4, (1964).

[122] R. Arkhipov, A. Pimenov, M. Radziunas, D. Rachinskii, A.G. Vladimirov, D. Arsenijevic, H. Schmeckebier, and D. Bimberg. "Hybrid Mode Locking in Semiconductor Lasers : Simulations, Analysis, and Experiments". *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. **19** :1100208–1100208, (2013).

[123] Haus H.A. "Mode-Locking of Lasers". *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. **6**(6) :1173–1185, (2000).

[124] P. Gellie, S. Barbieri, J.F. Lampin, P. Filloux, C. Manquest, C. Sirtori, I. Sagnes, S.P. Khanna, E.H. Linfield, A.G. Davies, H. Beere, and D. Ritchie. "Injection-locking of terahertz quantum cascade lasers up to 35 GHz using RF amplitude modulation". *Optics Express*, Vol. **18**(20) :20799–20816, (2010).

[125] R. Paiella, F. Capasso, C. Gmachl, Harold Y. Hwang, D.L. Sivco, A.L. Hutchinson, A.Y. Cho, and H. C. Liu. "Monolithic active mode locking of quantum cascade lasers". *Applied Physics Letters*, Vol. **77** :169–171, (2000).

[126] A. Soibel, F. Capasso, C. Gmachl, M.L. Peabody, A.M. Sergent, R. Paiella, D.L. Sivco, A.Y. Cho, and H. C. Liu. "Stability of pulse emission and enhancement of intracavity second-harmonic generation in self-mode-locked quantum cascade lasers". *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. **40**(3) :197–204, (2004).

[127] A. Soibel, F. Capasso, C. Gmachl, M.L. Peabody, A.M. Sergent, R. Paiella, H.Y. Hwang, D.L. Sivco, A.Y. Cho, H.C. Liu, C. Jirauschek, and F.X. Kartner. "Active mode locking of broadband quantum cascade lasers". *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. **40**(7) :844–851, (2004).

[128] R. Paiella, F. Capasso, C. Gmachl, D.L. Sivco, J.N. Baillargeon, A.L. Hutchinson, A.Y. Cho, and H. C. Liu. "Self-Mode-Locking of Quantum Cascade Lasers with Giant Ultrafast Optical Nonlinearities". *Science*, Vol. **290**(5497) :1739–1742, (2000).

[129] C. Wang, L. Diehl, A. Gordon, C. Jirauschek, F. Kartner, A. Belyanin, D. Bour, S. Corzine, G. Hpfler, M. Troccoli, J. Faist, and F. Capasso. "Coherent instabilities in a semiconductor laser with fast gain recovery". *Physical Review A*, Vol. **75** :23–26, (2007).

[130] T. Maier, H. Schneider, H.C. Liu, M. Walther, and P. Koidl. "Two-photon QWIPs for quadratic detection of weak mid-infrared laser pulses ". *Infrared Physics & Technology*, Vol. **47**(1-2) :182 – 187, (2005).

[131] C. Schmidt-Langhorst and H-G. Weber. "Optical sampling techniques". *Journal of Optical and Fiber Communications Reports*, Vol. **92** :86–114, (2005).

[132] P.S. Carter. "Magnetically-Tunable Microwave Filters Using Single-Crystal Yttrium-Iron-Garnet Resonators". *Microwave Theory and Techniques, IRE Transactions on*, Vol. **9**(3) :252–260, 1961.

[133] C. Hovater and M. Poelker. "Injection modelocked Ti-sapphire laser with discretely variable pulse repetition rates to 1.56 GHz ". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. **418**(2–3) :280 – 284, (1998).

[134] W. Maineult, L. Ding, P. Gellie, P. Filloux, C. Sirtori, S. Barbieri, T. Akalin, J.-F. Lampin, I. Sagnes, H. E. Beere, and D. A. Ritchie. "Microwave modulation of terahertz quantum cascade lasers : a transmission-line approach". *Applied Physics Letters*, Vol. **96** :021108, (2010).

[135] P. Gellie, W. Maineult, A. Andronico, G. Leo, C. Sirtori, S. Barbieri, Y. Chassagneux, J. R. Coudevylle, R. Colombelli, S. P. Khanna, E. H. Linfield, and A.G. Davies. "Effect of transverse mode structure on the far field pattern of metal-metal terahertz quantum cascade lasers". *Journal of Applied Physics*, Vol. **104**(12) :124513, (2008).

[136] P. Cavalié, J. Freeman, K. Maussang, E. Strupiechonski, G. Xu, R. Colombelli, L. Li, A.G. Davies, E.H. Linfield, J. Tignon, and S.S. Dhillon. "High order sideband generation in terahertz quantum cascade lasers". *Applied Physics Letters*, Vol. **102**(22) :221101, (2013).

[137] S. Barbieri, W. Maineult, S.S. Dhillon, C. Sirtori, J. Alton, N. Breuil, H.E. Beere, and D.A. Ritchie. "13 GHz direct modulation of terahertz quantum cascade lasers". *Applied Physics Letters*, Vol. **91**(14) :143510–143510–3, (2007).

[138] J. Madeo, P. Cavalié, J. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, H.E. Beere, D.A. Ritchie, C. Sirtori, J. Tignon, and S.S. Dhillon. "All-optical wavelength shifting in a semiconductor laser using resonant nonlinearities". *Nature Photonics*, Vol. **6** :519–524, (2012).

[139] Pierrick Cavalié. *"Optique non-linéaire résonante et contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique"*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, (2013).

[140] R. Trebino, K.W. DeLong, D.N. Fittinghoff, J.N. Sweetser, M.A. Krumbügel, B.A. Richman, and D.J. Kane. "Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating". *Review of Scientific Instruments*, Vol. **68**(9) :3277–3295, 1997.

[141] H.R. Telle, G. Steinmeyer, A.E. Dunlop, J. Stenger, D.H. Sutter, and U. Keller. "Carrier-envelope offset phase control : A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation". *Applied Physics B*, Vol. **69**(4) :327–332, 1999.

[142] R. Ell, U. Morgner, F. X. KÃÂrtner, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, M. J. Lederer, A. Boiko, and B. Luther-Davies. "Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti :sapphire laser". *Optics Letters*, Vol. **26**(6) :373–375, (2001).

[143] Th. Udem, R. Holzwarth, and T.W. Hänsch. "Optical frequency metrology". *Nature*, Vol. **416** :233–137, (2002).

[144] C. Iaconis and I. Walmsley. Importance of coherence for electron transport in terahertz quantum cascade lasers. *Optics Letters*, **23** :792–794, (1998).

[145] D. Burghoff, T-Y. Kao, D. Ban, A. Wei, M. Lee, Q. Hu, and J. Reno. "Characterization of ultrashort electromagnetic pulses". *Adv. Opt. Photon.*, **1** :308–437, (2009).

[146] C. Kubler, R. Huber, S. Tubel, and A. Leitenstorfer. "Ultrabroadband detection of multi-terahertz field transients with gase electro-optic sensors : Approaching the near infrared". *Applied Physics Letters*, **85** :3360–3362, (2004).

[147] "The Nobel Prize in Physics 2010". `http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2010/`.

[148] K.S. Novoselov, Z. Jiang, Y. Zhang, S.V. Morozov, H.L. Stormer, U. Zeitler, J.C. Maan, G.S. Boebinger, P. Kim, and K.S. Geim. "Room-temperature quantum Hall effect in graphene". *Science*, Vol. **315** :1379, (2007).

[149] Y.-W. Tan, Y. Zhang, K. Bolotin, Y. Zhao, S. Adam, E.H. Hwang, S. Das sarma, H.L. Stormer, and P. Kim. "Measurement of scattering rate and minimum conductivity in graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **99** :246803, (2007).

[150] N. Stander, B. Huard, and D. Goldhaber-Gordon. "Evidence for Klein tunneling in graphene p-n junctions". *Physical Review Letters*, Vol. **102** :026807, (2009).

[151] S.V. Morozov, K.S. Novoselov, and A.K. Geim. "Electronic transport in graphene". *Physics-Uspekhi*, Vol. **51** :744, (2008).

[152] S.A. Mikhailov. "Nonlinear electromagnetic response of graphene". *Europhysics Letters*, Vol. **79** :27002, (2007).

[153] E. Hendry, P.J. Hale, J.J. Moger, A.K. Savchenko, and S.A. Mikhailov. "Coherent Nonlinear Optical Response of Graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **105** :097401, (2010).

[154] D. Sun, C. Divin, J. Rioux, J.E. Sipe, C. Berger, W.A. de Heer, P.N. First, and T.B. Norris. "Coherent Control of Ballistic Photocurrents in Multilayer Epitaxial Graphene Using Quantum Interference". *Nano Letters*, Vol. **10**(4) :1293–1296, (2010).

[155] A.F. Gibson and M.F. Kimmitt. *Infrared and Millimeter Waves, Vol. 3, Detection of Radiation.*

[156] S. Reich, J. Maultzsch, C. Thomsen, and P. Ordejón. "Tight-binding description of graphene". *Physical Review B*, Vol. **66** :035412, (2002).

[157] S. Bae, H. Kim, Y. Lee, X. Xu, J.-S. Park, Y. Zheng, J. Balakrishnan, T. Lei, H. Ri Kim, Y.I. Song, Y.-J. Kim, K.S. Kim, B. Ozyilmaz, J.-H. Ahn, B.H. Hong, and S. Iijima. "Roll-to-roll production of 30-inch graphene films for transparent electrodes". *Nature Nanotechnology*, Vol. **5** :574–578, (2010).

[158] F. Xia, T. Mueller, Y.-M. Lin, A. Valdes-Garcia, and P. Avouris. "Ultrafast graphene photodetectors". *Nature Nanotechnology*, Vol. **4** :839–843, (2009).

[159] T. Mueller, F. Xia, and P. Avouris. "Graphene photodetectors for high-speed optical communications". *Nature Photonics*, Vol. **4** :297–301, (2010).

[160] Z. Sun, T. Hasan, F. Torrisi, D. Popa, G. Privitera, F. Wang, F. Bonaccorso, D.M. Basko, and A.C. Ferrari. "Graphene Mode-Locked Ultrafast Laser". *ACS Nano*, Vol. **4**(2) :803–810, (2010).

[161] K.I. Bolotin, K.J. Sikes, Z. Jiang, M. Klima, G. Fudenberg, J. Hone, P. Kim, and H.L. Stormer. "Ultrahigh electron mobility in suspended graphene ". *Solid State Communications*, Vol. **146**(9–10) :351 – 355, (2008).

[162] X. Du, I. Skachko, A. Barker, and E.Y. Andrei. "Approaching ballistic transport in suspended graphene". *Nature Nanotechnology*, Vol. **3** :491–495, (2008).

[163] R.R. Nair, P. Blake, K.S. Grigorenko, A.N. Novoselov, T.J. Booth, T. Stauber, N.M.R. Peres, and A.K. Geim. "Fine structure constant defines transparency of graphene". *Science*, Vol. **320** :1308–1308, (2008).

[164] C. Lee, X. Wei, J.W. Kysar, and J. Hone. "Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene". *Science*, Vol. **321**(5887) :385–388, (2008).

[165] J. Yan, M.-H. Kim, J.A. Elle, A.B. Sushkov, G.S. Jenkins, H.M. Milchberg, M.S. Fuhrer, and H.D. Drew. "Dual-gated bilayer graphene hot-electron bolometer". *Nature Nanotechnology*, Vol. **7** :472–478, (2012).

[166] K.C. Fong and K.C. Schwab. "Ultrasensitive and wide-bandwidth thermal measurement of graphene at low temperatures". *Physical Review X*, Vol. **2** :031006, (2012).

[167] X. Cai, A.B. Sushkov, R.J. Suess, M.M. Jadidi, G.S. Jenkins, L.O. Nyakiti, R.L. Myers-Ward, J. Yan, D.K. Gaskill, T.E. Murphy, H.D. Drew, and M.S. Fuhrer. "Sensitive Room-Temperature Terahertz Detection via Photothermoelectric Effect in Graphene". *ArXiv e-prints (arXiv :1305.3297)*, (2013).

[168] N.M. Gabor, J.C.W. Song, Q. Ma, N.L. Nair, T. Taychatanapat, K. Watanabe, T. Taniguchi, L.S. Levitov, and P. Jarillo-Herrero1. "Hot carrier-assisted intinsic photoresponse in graphene". *Science*, Vol. **334** :648–652, (2011).

[169] M.W. Graham, S.-F. Shi, D.C. Ralph, J. Park, and P.L. McEuen. "Photocurrent measurement of supercollision cooling in graphene". *Nature Physics*, Vol. **9** :103–108, (2013).

[170] V. Ryzhii, M. Ryzhii, A. Satou, T. Otsuji, A.A. Dubinov, and V.Y. Aleshkin. "Feasibility of terahertz lasing in optically pumped epitaxial multiple graphene layer structures". *Journal of Applied Physics*, Vol. **106**(8) :084507, 2009.

[171] F. Wang, Y. Zhang, C. Tian, C. Girit, A. Zettl, M. Crommie, and Y.R. Shen. "Gate-Variable Optical Transitions in Graphene". *Science*, Vol. **320**(5873) :206–209, (2008).

[172] Y.W. Son, M.L. Cohen, and S.G. Louie. "Half-metallic graphene nanoribbons". *Nature*, Vol. **444** :347–349, (2006).

[173] M.Y. Han, B. Ozyilmaz, Y.B. Zhang, and P. Kim. "Energy band-gap engineering of graphene nanoribbons". *Physical Review Letters*, Vol. **98** :206805, (2007).

[174] E. H. Hwang and S. Das Sarma. "Dielectric function, screening, and plasmons in two-dimensional graphene". *Physical Review B*, Vol. **75** :205418, (2007).

[175] L. Ju, B. Geng, J. Horng, C. Girit, M. Martin, H.A. Hao, Z. Bechtel, X. Liang, and Y.R. Wang F. Zettl, A. Shen. "Graphene plasmonics for tunable terahertz metamaterials". *Nature Nanotechnology*, Vol. **6** :630–634, (2011).

[176] F. Rana. "Graphene Terahertz Plasmon Oscillators". *Nanotechnology, IEEE Transactions on*, Vol. **7**(1) :91–99, (2008).

[177] L. Prechtel, L. Song, D. Schuh, P. Ajayan, Wegscheider W., and A.W. Holleitner. "Time-resolved ultrafast photocurrents and terahertz generation in freely suspended graphene". *Nature Communications*, (646), (2012).

[178] S. Boubanga-Tombet, S. Chan, T. Watanabe, A. Satou, V. Ryzhii, and T. Otsuji. "Ultrafast carrier dynamics and terahertz emission in optically pumped graphene at room temperature". *Physical Review B*, Vol. **85** :035443, (2012).

[179] S.A. Mikhailov. "Theory of the giant plasmon-enhanced second-harmonic generation in graphene end semiconductor two-dimensionnal electron systems". *Physical Review B*, Vol. **84** :045432, (2011).

[180] M. Dragoman, D. Neculoiu, G. Deligeorgis, G. Konstantinidis, D. Dragoman, A. Cismaru, A.A. Muller, and R. Plana. "Millimeter-wave generation via frequency multiplication in graphene". *Applied Physics Letters*, Vol. **97** :093101, (2012).

[181] J.J. Dean and H.M. van Driel. "Second harmonic generation from graphene and graphitic films". *Applied Physics Letters*, Vol. **95** :261910, (2009).

[182] J.J. Dean and H.M. van Driel. "Graphene and few-layers graphite probed by second-harmonic generation : Theory and experiment". *Physical Review B*, Vol. **82** :125411, (2010).

[183] A.Y. Bykov, T.V. Murzina, M.G. Rybin, and E.D. Obraztsova. "Second harmonic generation in multilayer graphene induced by direct electric current". *Physical Review B*, Vol. **85** :121413, (2012).

[184] G. Hotopan, S. Ver Hoeye, C. Vazquez, R. Camblor, M. Fernandez, F. Las Heras, P. Alvarez, and R. Menendez. "Millimeter wave microstrip mixer based on graphene". *Progress In Electromagnetic Research*, Vol. **118** :57, (2011).

[185] N. Kumar, J. Kumar, C. Gerstenkorn, R. Wang, H.-Y. Chiu, A.L. Smirl, and H. Zhao. Third harmonic generation in graphene and few-layer graphite films. *Physical Review B*, **87** :121406, (2013).

[186] S.-Y. Hong, J.I. Dadap, N. Petrone, P.-C. Yeh, J. Hone, and R.M. Osgood. Optical third-harmonic generation in graphene. *Physical Review X*, **3** :021014, (2013).

[187] E. Hendry, P.J. Hale, J.J Moger, and A.K. Savchenko. "Coherent nonlinear optical response of graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **105** :097401, (2010).

[188] N.L. Rangel, A. Gimenez, A. Sinitskii, and J.M. Seminario. "Graphene signal mixer for sensing applications". *Phys. Chem. C*, Vol. **115** :12128, (2011).

[189] T. Gu, N. Petrone, J.F. McMillan, A. van der Zande, M. Yu, G.Q. Lo, D.L. Kwong, J. Hone, and C.W. Wong. "regenerative oscillation and four-wave mixing in graphene optoelectronics". *Nature Photonics*, Vol. **6** :554, (2012).

[190] J. Karch, C. Drexler, P. Olbrich, M. Fehrenbacher, M. hirmer, M.M. Glazov, S.A. Tarasenko, E.L. Ivchenko, B. Birkner, J. Eroms, D. Weiss, R. Yakimova, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, M. Ostler, T. Seyller, and S.D. Ganichev. "terahertz radiation driven chiral edge currents in graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **107** :276601, (2011).

[191] C. Jiang, V.A Shalygin, V.Y. Panevin, S.M. Danilov, M.M. Glazov, R. Yakimova, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, and S.D. Ganichev. "Helicity-dependent photocurrents in graphene layers excited by midinfrared radiation of a CO2 laser". *Physical Review B*, Vol. **84** :125429, (2011).

[192] J. Karch, P. Olbrich, M. Schmalzbauer, C. Zoth, C. Brinsteiner, M. Fehrenbacher, U. Wurstbauer, M.M. Glazov, S.A. Tarasenko, E.L. Ivchenko, D. Weiss, J. Eroms, R. Yakimova, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, and S.D. Ganichev. "Dynamic Hall effect driven by circularly polarized light in a graphene layer". *Physical Review Letters*, Vol. **105** :227402, (2010).

[193] J. Karch, P. Olbrich, M. Schmalzbauer, C. Brinsteiner, U. Wurstbauer, M.M. Glazov, S.A. Tarasenko, E.L. Ivchenko, D. Weiss, J. Eroms, and S.D. Ganichev. "Photon helicity driven electric currents in graphene". *ArXiv e-prints (arXiv :1002.1047)*, (2010).

[194] M.V. Entin, L.I. Magarill, and D.L. Shepelyansky. "Theory of resonant photon drag in monolayer graphene". *Physical Review B*, Vol. **81** :165441, (2010).

[195] P.A. Obraztsov, T. Kaplas, S.V. Garnov, M. Kuwata-Gonokami, A.N. Obraztsov, and Y.P. Svirko. "All-optical control of ultrafast photocurrents in unbiased graphene". Vol. **4**(4007).

[196] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics, 2nd Edition.* Academic Press, (2003).

[197] Eougenious L. Ivchenko. *Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures.* Alpha Science, Harrow UK, (2005).

[198] M.M. Glazov. "Second harmonic generation in graphene". *JETP Letters*, Vol. **93**(7) :366–371, 2011.

[199] T. Hattori, K. Egawa, S.-I. Ookuma, and T. Itatani. "Intense Terahertz Pulses from Large-Aperture Antenna with Interdigitated Electrodes". *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. **45**(4L) :L422, (2006).

[200] T. Li, L. Luo, M. Hupalo, J. Zhang, M. C. Tringides, J. Schmalian, and J. Wang. "Femtosecond Population Inversion and Stimulated Emission of Dense Dirac Fermions in Graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **108** :167401, (2012).

[201] E. Malic, T. Winzer, E. Bobkin, and A. Knorr. "Microscopic theory of absorption and ultrafast many-particle kinetics in graphene". *Physical Review B*, Vol. **84** :205406, (2011).

[202] S. Boubanga-Tombet, S. Chan, T. Watanabe, A. Satou, V. Ryzhii, and T. Otsuji. "Ultrafast carrier dynamics and terahertz emission in optically pumped graphene at room temperature". *Physical Review B*, Vol. **85** :035443, 2012.

[203] P.A. George, J. Strait, J. Dawlaty, S. Shivaraman, M. Chandrashekhar, F. Rana, and M.G. Spencer. "Ultrafast Optical-Pump Terahertz-Probe Spectroscopy of the Carrier Relaxation and Recombination Dynamics in Epitaxial Graphene". *Nano Letters*, Vol. **8**(12) :4248–4251, (2008).

[204] A. N. Grigorenko, M. Polini, and K. S. Novoselov. "Graphene plasmonics". *Nature Photonics*, Vol. **6** :749–758, (2012).

[205] J. Hass, F. Varchon, J.E. Millan-Otoya, M. Sprinkle, N. Sharma, W.A. de Heer, C. Berger, P.N. First, L. Magaud, and Conrad E.H. "Why Multilayer Graphene on 4 H-SiC (000-1) Behaves Like a Single Sheet of Graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **100** :125504, (2008).

[206] Simon Huppert. *"Non-linéarités optiques et oscillations terahertz dans le graphène et les superréseaux"*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, (2014).

[207] A. Tomasino, A. Parisi, S. Stivala, P. Livreri, A.C. Cino, A.C. Busacca, M. Peccianti, and R. Morandotti. "Wideband THz Time Domain Spectroscopy based on Optical Rectification and Electro-Optic Sampling". *Scientific Reports*, Vol. **3**(3116), (2013).

[208] M. Breusing, C. Ropers, and T. Elsaesser. "Ultrafast Carrier Dynamics in Graphite". *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **102** :086809, 2009.

[209] E. Malic, T. Winzer, and A. Knorr. "Efficient orientational carrier relaxation in optically excited graphene". *Applied Physics Letters*, Vol. **101**(21) :213110, (2012).

[210] I. Gierz, J.C. Petersen, M. Mitrano, C. Cacho, I.C.E. Turcu, E. Springate, A. Stöhr, A. Köhler, U. Starke, and A. Cavalleri. "Snapshots of non-equilibrium Dirac carrier distributions in graphene". *Nature Materials*, Vol. **12** :1119–1124, 2013.

[211] S. Barbieri, J. Alton, H.E. Beere, J. Fowler, E.H. Linfield, and D.A. Ritchie. "2.9THz quantum cascade lasers operating up to 70K in continuous wave". *Applied Physics Letters*, Vol. **85**(10) :1674–1676, 2004.

[212] J.R. Freeman, O. Marshall, H.E. Beere, and D.A. Ritchie. "Improved wall plug efficiency of a 1.9THz quantum cascade laser by an automated design approach". *Applied Physics Letters*, Vol. **93**(19) :191119, 2008.

[213] C. Berger, Z. Song, T. Li, X. Li, A.Y. Ogbazghi, R. Feng, Z. Dai, A.N. Marchenkov, E.H. Conrad, P.N. First, and W.A. de Heer. "Ultrathin Epitaxial Graphite 2D Electron Gas Properties and a Route toward Graphene-based Nanoelectronics". *The Journal of Physical Chemistry B*, Vol. **108**(52) :19912–19916, (2004).

[214] N. Srivastava, G. He, Luxmi, P.C. Mende, R.M. Feenstra, and Y. Sun. "Graphene formed on SiC under various environments : comparison of Si-face and C-face". *Journal of Physics D : Applied Physics*, Vol. **45** :154001, (2012).

[215] F. Varchon, R. Feng, J. Hass, X. Li, B.N. Nguyen, C. Naud, P. Mallet, J.-Y. Veuillen, C. Berger, E.H. Conrad, and L. Magaud. Electronic structure of epitaxial

graphene layers on sic : Effect of the substrate. *Physical Review Letters*, Vol. **99** :126805, (2007).

[216] D. Sun, C. Divin, C. Berger, W.A. de Heer, P.N. First, and T.B. Norris. "Spectroscopic Measurement of Interlayer Screening in Multilayer Epitaxial Graphene". *Physical Review Letters*, Vol. **104** :136802, (2010).

[217] J. Hass, W.A. de Heer, and E.H. Conrad. "The growth and morphology of epitaxial multilayer graphene". *Journal of Physics : Condensed Matter*, Vol. **20**(32) :323202, (2008).

[218] M.L. Sadowski, G. Martinez, M. Potemski, C. Berger, and W.A. de Heer. "Landau Level Spectroscopy of Ultrathin Graphite Layers". *Physical Review Letters*, Vol. **97** :266405, (2006).

[219] J.H. Strait, P.A. George, J. Dawlaty, S. Shivaraman, M. Chandrashekhar, F. Rana, and M.G. Spencer. "Emission of terahertz radiation from SiC". *Applied Physics Letters*, Vol. **95**(5) :051912, (2009).

[220] P.T.B. Shaffer. "Refractive Index, Dispersion, and Birefringence of Silicon Carbide Polytypes". *Applied Optics*, Vol. **10**(5) :1034–1036, (1971).

Résumé

La gamme des ondes terahertz (THz) se situe à l'interface des domaines électronique et optique. Malgré un potentiel d'applications élevé, elle souffre d'un manque de dispositifs performants. Dans ce cadre, cette thèse se concentre sur l'étude fondamentale et la réalisation de nouvelles fonctionnalités associées à différentes sources THz, en utilisant la spectroscopie THz dans le domaine temporel (TDS). Cet outil puissant permet de mesurer le profil temporel d'un champ électrique THz et est utilisé pour explorer l'émission THz de lasers à cascade quantique (LCQ) et de graphène.
Dans une première partie, la réponse ultrarapide de LCQs est étudiée. Un contrôle de la phase du champ électrique de LCQs THz via la technique "d'injection seeding" est réalisé puis optimisé. Il nous permet de mesurer le profil temporel de l'émission laser. A l'appui de cette expérience et de simulations, une description quantitative de la dynamique du gain est faite. Ces informations sont critiques pour la production d'impulsions courtes. Une modulation rapide du gain de LCQ est ensuite réalisée et conduit à la génération d'impulsions courtes (durée $\sim$ 15 ps) en régime de blocage de modes. Ces études permettent notamment d'envisager les LCQs comme sources puissantes pour la TDS.
Dans une seconde partie, nous montrons que le graphène peut émettre un rayonnement THz sous excitation optique par un effet non linéaire d'ordre 2. Cette émission résulte d'un transfert de quantité de mouvement des photons aux électrons du graphène ("photon drag"). Elle permet ainsi d'explorer des propriétés subtiles du graphène, telles que de très faibles différences de comportement entre les électrons et trous photogénérés.

Mots clés: **Terahertz, Lasers à cascade quantique, Graphène, Spectroscopie terahertz dans le domaine temporel, blocage de modes, photon drag.**

Abstract

The terahertz (THz) range is a region of the electromagnetic spectrum which lies at the limit between the electronic and optical domain. Currently, THz applications suffer from the lack of sources and detectors. In this context, this thesis focuses on the fundamental study and the development of new functionalities of different THz sources, using THz time-domain spectroscopy (TDS) as a base. This powerful tool enables to acquire the temporal profile of a THz electric field and is used to explore the THz emission properties of quantum cascade lasers (QCLs) and graphene.
In the first part, the ultrafast response of QCLs is investigated. A phase control of the electric field of THz QCLs via injection seeding is realised and optimised. This enables the measurement of the amplitude and temporal profile of the laser emission. Through these experiments and simulations, a quantitative description of the gain dynamics can be accessed. This information is critical for modelocking. Finally, a fast modulation of the gain of QCLs is realized and leads to short pulses generation (15 ps) in a modelocked regime. These studies open the way for using QCLs as powerful sources in TDS.
In the second part, THz radiation generation from graphene under optical excitation is demonstrated by a second order non-linear process. The THz emission results from the momentum transfer from the photons to the electrons of graphene (photon drag). As well as broadband THz generation, novel bandstructure properties of graphene can be explored such as the different dynamics between the photogenerated electrons and holes.

Keywords: **Terahertz, Quantum cascade laser, Graphene, Terahertz time-domain spectroscopy, Modelocking, Photon drag.**