

Absorption à deux photons pour la détection infrarouge

Benjamin Vest

▶ **To cite this version:**

Benjamin Vest. Absorption à deux photons pour la détection infrarouge. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique, 2015. Français. ⟨NNT : ⟩. ⟨tel-01262307⟩

HAL Id: tel-01262307

https://pastel.hal.science/tel-01262307v1

Submitted on 26 Jan 2016

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

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



Distributed under a Creative Commons CC BY-NC-SA 4.0 - Attribution - Non-commercial use - ShareAlike - International License

université PARIS-SACLAY

ÉCOLE POLYTECHNIQUE UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY

École Polytechnique

École doctorale **ED 447**

Unité de recherche **Département d'Optique Théorique et Appliquée**

Thèse présentée par **Benjamin Vest**

Soutenue le **23 octobre 2015**

En vue de l'obtention du grade de docteur de l'École Polytechnique

Discipline **Physique**

Titre de la thèse

Absorption à deux photons pour la détection infrarouge

Une alternative aux schémas classiques de détection quantique

Thèse dirigée par	M. Emmanuel Rosencher	directeur
	M. Riad Haïdar	co-directeur
	M. Julien Jaeck	co-encadrant

Composition du jury

Rapporteurs	M. Benoît Boulanger	Institut Néel	
	M. Thomas Coudreau	Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques	
Examinateurs	M. Claude Fabre	Laboratoire Kastler Brossel	président du jury
	M. Jacob Khurgin	John Hopkins University	
	M. Riad Haïdar	École Polytechnique	
	M. Julien Jaeck	ONERA	

université PARIS-SACLAY

ÉCOLE POLYTECHNIQUE UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY

École Polytechnique

École doctorale **ED 447**

Unité de recherche **Département d'Optique Théorique et Appliquée**

Thèse présentée par **Benjamin Vest**

Soutenue le **23 octobre 2015**

En vue de l'obtention du grade de docteur de l'École Polytechnique

Discipline **Physique**

Titre de la thèse

Absorption à deux photons pour la détection infrarouge

Une alternative aux schémas classiques de détection quantique

Thèse dirigée par	M. Emmanuel Rosencher	directeur
	M. Riad Haïdar	co-directeur
	M. Julien Jaeck	co-encadrant

Composition du jury

Rapporteurs	M. Benoît Boulanger	Institut Néel	
	M. Thomas Coudreau	Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques	
Examinateurs	M. Claude Fabre	Laboratoire Kastler Brossel	président du jury
	M. Jacob Khurgin	John Hopkins University	
	M. Riad Haïdar	École Polytechnique	
	M. Julien Jaeck	ONERA	

université PARIS-SACLAY

ÉCOLE POLYTECHNIQUE UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY

École Polytechnique

Doctoral School **ED 447**

University Department **Département d'Optique Théorique et Appliquée**

Thesis defended by **Benjamin Vest**

Defended on **23rd October, 2015**

In order to become Doctor from École Polytechnique

Academic Field **Physics**

Thesis Title

Two-photon absorption for infrared detection

An alternative to conventional detection schemes

Thesis supervised by	M. Emmanuel Rosencher	Supervisor
	M. Riad Haïdar	Co-Supervisor
	M. Julien Jaeck	Co-Monitor

Committee members

Referees	M. Benoît Boulanger	Institut Néel	
	M. Thomas Coudreau	Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques	
Examiners	M. Claude Fabre	Laboratoire Kastler Brossel	Committee President
	M. Jacob Khurgin	John Hopkins University	
	M. Riad Haïdar	École Polytechnique	
	M. Julien Jaeck	ONERA	

Mots clés : détection, optique non-linéaire, nanosciences
Keywords: detection, non-linear optics, nanosciences

Cette thèse a été préparée au

Département d'Optique Théorique et Appliquée
ONERA
Chemin de la Hunière et des Joncherettes
91120 PALAISEAU
France

Site http://www.onera.fr/



À Manu, dont l'exemple me guide encore,

À mes parents,

旅は , 道連れ
Aucune route n'est longue au côté d'un ami.

Proverbe japonais

Science isn't about *why* - it's about *why not*.

Cave Johnson

[...] parce que trouver sa place, c'est commencer à s'ennuyer. Pour moi, le bonheur n'est pas de trouver sa place, mais de la chercher.

Antoine de Maximy

Absorption à deux photons pour la détection infrarouge
Une alternative aux schémas classiques de détection quantique

Résumé

Les travaux de cette thèse portent sur l'étude de l'absorption à deux photons non-dégénérée comme solution de détection infrarouge dans des matériaux à gap visible. Leur utilisation n'impose pas le recours au refroidissement du détecteur.

Dans un premier temps, nous étudions différentes descriptions du processus d'absorption à deux photons pour les appliquer au cadre de la détection de lumière. Des expériences de caractérisation ont ensuite été menées sur des détecteurs commerciaux. Elles ont mis en évidence la compétition entre processus d'absorption linéaire et non-linéaire de photons d'énergie sub-gap dans les semiconducteurs.

Dans un second temps, nous avons travaillé à la conception de photodétecteurs non-refroidis intégrant des cavités résonantes nanostructurées. En confinant les photons dans un volume réduit, ces structures permettent d'améliorer de plusieurs ordres de grandeur le rendement quantique de détection. Les performances des dispositifs conçus ont pu être démontrées à la fois numériquement, et expérimentalement, après fabrication en salle blanche des photodétecteurs et caractérisation de leurs propriétés optoélectroniques.

Le travail mené veut se présenter comme une alternative originale et innovante aux méthodes classiques de détection quantique infrarouge refroidie.

Mots clés : détection, optique non-linéaire, nanosciences

Two-photon absorption for infrared detection
An alternative to conventional detection schemes

Abstract

This work was focused on the investigation of non-degenerate two-photon absorption (ND-2PA) as a solution for detecting infrared photons in visible bandgap materials. This allows high performance operation at high temperatures.

Firstly, we investigated the different descriptions of two-photon absorption and applied them in the theoretical frame of photodetection. We have then characterised several commercial photodetectors, thus highlighting the competition between linear and non-linear processes of sub-bandgap photon absorption, as well as the need to compensate the intrinsic inefficiency of two-photon absorption by using non-conventional photodetectors.

Secondly, we designed uncooled photodetectors based on two-photon absorption inside a semiconductor embedded in a resonnant metallic nanostructure. Due to strong field enhancement, non-linear processes are increased by several orders of magnitude. These performances were both proven numerically and experimentally, after fabrication of sample devices in a clean room environment, and characterisation of their optoelectronics properties.

This work is a first step toward an innovative method for infrared photodetection at high operating temperatures.

Keywords: detection, non-linear optics, nanosciences

Département d'Optique Théorique et Appliquée
ONERA – Chemin de la Hunière et des Joncherettes – 91120 PALAISEAU – France

Remerciements

Ou la surprenante vertu de l'ignorance

Cher lecteur,

Le manuscrit que tu as entre tes mains n'a pas vraiment été écrit pour toi. Désolé de te le dire aussi franchement. Je crois te comprendre, car je pense que nous avons beaucoup de choses en commun : vois-tu, moi aussi j'ai lu des thèses. Pour certaines d'ailleurs, je n'ai lu que les remerciements, les dédicaces... pour d'autres je me suis aventuré plus loin. Puis ce fut mon tour d'écrire. Ce n'est qu'en apportant le manuscrit à l'impression que la chose m'a frappé : toutes ces heures que j'ai passées devant mon écran à tracer des figures, à lier des idées, à organiser une pensée pour la coucher sur le papier, je les ai éprouvées sûrement trop souvent en ma seule compagnie. Pourtant - tu me connais peut-être bien - je suis un obstiné de l'empathie, de la communication. Les chapitres qui suivent me ressemblent forcément, en particulier dans une tentative permanente de s'adresser à quelqu'un d'autre. Mais je pense avoir échoué... et c'est un peu triste. Je suis triste parce que ce n'est pas possible. L'empathie ne peut pas avoir de place là où l'essentiel du dialogue oppose un doctorant et son écran d'ordinateur. L'exercice de la rédaction est un exercice égoïste. Pour cette fois-ci, je pense donc avoir écrit pour moi, en toute liberté. Mais j'ai abouti à quelque chose qui a beaucoup de valeur à mes yeux, plus que je ne l'aurais jamais imaginé : quelque chose dont je suis fier. Comme un coq ! Et ça, ça me rend heureux.

Avec ta permission donc, cher lecteur, c'est à moi que j'adresserai les chapitres qui suivent, comme un témoignage de la mesure que je devais prendre de moi-même et des défis que je me lance. Mais ces lignes prochaines, elles, sont pour toi : tu t'y retrouveras peut-être. Et c'est bien normal, car ce travail n'aurait pas de sens sans toi.

Ce manuscrit a été rédigé pendant l'année 2015, dont beaucoup de monde se souviendra à tout jamais qu'elle fût en France une année triste. J'ai une pensée envers tous ceux que cette année a touchés. Je pense aussi à un certain dimanche de janvier, où j'ai compris tant de choses. Ainsi qu'à un certain vendredi de novembre, qui en aura changé tant d'autres...

Ce manuscrit tout entier est dédié à Manu, et je souhaite lui adresser mes remerciements les plus profonds. Notre rencontre fut brève ; je suis certain que le rendez-vous n'a pu être manqué. Manu m'a fait comprendre le lien intime qui unit la science et l'imaginaire. Plus encore, il m'a fait comprendre à quel point ce lien est précieux, qu'aucune recherche jeune, joyeuse, altruiste, épanouie ne saurait exister sans lui. Qu'on ne saurait l'oublier sans quelque part y laisser la part de nous qui, de fil en aiguille, nous a amené à devenir chercheur. Et que toute concession est au fond une capitulation... Je suis convaincu que cela faisait bien longtemps que Manu n'allait pas au travail en se levant le matin : il ne faisait que poursuivre les rêves qu'il avait commencés il y a bien longtemps, et qui persistaient encore dans son bureau : ici, un calendrier Blake et Mortimer arborant l'Espadon, et là, un tableau noir et quelques craies. A l'heure où je rédige ces lignes, cela fait moi aussi longtemps que je ne me lève plus le matin pour faire de la physique, mais pour les histoires qu'elle me raconte. Mais cela, j'aurais tellement aimé lui dire en personne...

Je remercie tout aussi profondément mes parents et ma famille pour leur soutien, leur amour et les valeurs qu'ils m'ont transmises. La conscience que si le talent rend quelqu'un bon, seul l'effort et le travail sont à mêmes de le rendre meilleur. Que mettre ces mêmes talents au service de chacun est une responsabilité. Que l'indignation est un devoir moral, et une source dans laquelle il nous faut puiser la force d'agir : le courage. Et pour tout ce que ceci donne inlassablement de sens au plus beau des verbes : se battre.

Je tiens tout particulièrement à remercier les membres de mon jury pour leur sympathie et leur bienveillance, et à leur témoigner ma sympathie et la profonde fierté que je ressens d'avoir vu leur regard se porter sur mon travail : Claude Fabre, Thomas Coudreau, Benoit Boulanger, et Jacob Khurgin. J'espère pouvoir croiser encore souvent vos routes !

Après Manu, je tiens à remercier bien évidemment Riad et Julien, qui ont complété notre micro-équipe que j'aimais voir comme la bande des quatre mousquetaires. Merci Riad pour ton impressionnante énergie, ta constance, ton sens de la formule et la très grande liberté que tu m'as accordée pendant ma thèse. J'ai toujours été un peu troublé en fouillant les archives de SupOptique de constater le parallélisme de nos parcours : somme toute, il est devenu évident que nos points communs nous ferait nous rencontrer.

Merci Julien pour ces plus de 3 années et demi passées ensemble, car on se connait désormais depuis bien longtemps. Dans les bons moments de cette thèse comme dans les moments plus difficiles, nos conceptions se sont toujours systématiquement rejointes sur cette filiation que nous avons héritée de Manu. En ce sens, le travail qui suit est aussi le tien. Il est surtout le produit de la relation que tu m'as aidé à bâtir : celle d'un collègue, et celle d'un ami.

Je remercie Pedro, de son vrai nom Pedro, pour être mon ami depuis encore plus

longtemps. M'avoir raisonnablement converti au sport est un petit miracle que seuls certains potes sont capables d'accomplir. Je n'oublie bien sûr pas notre passion pour le Restéco, le Couchois, les Raids, le jeu des mille boules, la pratique vidéoludique niveau PGM... Affaire à suivre, avec tous mes encouragements pour la dernière année de thèse et pour la suite, quelle que soit la voie qui trouvera grâce à tes yeux.

L'ONERA n'aurait pas été l'ONERA sans Q. Merci pour m'avoir également soutenu sur le plan sportif, pour tant de bons moments passés ensemble (le Puy du Fou n'était qu'un commencement), nos grandes discussions sur tout ou rien, pour perdre toute compétence particulière aux jeux de société après avoir bu une bière, pour avoir été un, sinon le pilier de l'équipe. Je te souhaite tout le bonheur du monde aux côtés de Julie et d'un nouveau venu, Lucien (nojoke) : gloire au tout nouveau papa !

Que dire d'un autre grand nom du J3 : merci à Patoche pour sa pratique quotidienne du trolling en compétition : c'est impossible de ne pas trouver ça drôle, et en plus c'est contagieux. Merci là encore, pour de très nombreuses et longues discussions, pour tes fines et subtiles analyses politiques et pour avoir été à mes yeux, le meilleur des Némésis lorsqu'il s'agit de se retrouver autour d'un plateau de jeu.

Merci à Paul, dit Paulo, qui a été un parfait camarade de promotion si l'on peut dire. Au sein de l'équipe, tout nous différenciait, et on apprend jamais autant que de ceux qui sont différents de nous. C'est dire si j'ai énormément appris à tes côtés. Heureusement, nous nous retrouvions aussi tout naturellement sur l'essentiel : une certaine idée de la France (ou du Groland). Avec tout ce que ça implique. Voilà voilà. On se comprend, et c'est là la marque du pote que tu es à mes yeux.

Merci à Greg avec qui je me suis tellement marré pendant ces années de thèse, et pour son apport notable aux discussions culturelles du labo : une touche très années 90, aux nuances outre-Rhin, d'un goût toujours exquis.

Merci à Mathilde, déjà pour avoir eu le courage de revenir après ton stage. Chapeau ! Comment oublier gâteaux, tartes, pâtisseries, brownies, cookies qui ont également accéléré ma conversion au sport. Bon courage à toi pour la suite de la thèse !

Merci à Clément, qui devrait lire ces remerciements si tant est que j'annonce qu'un pot se tiendra en fin de paragraphe. Merci Antoine, fidèle membre de la team running de l'ONERA et joyeux drille du J3.

Remerciements et encouragements spéciaux à Baptiste, qui se lance dans une thèse qui poursuivra ce travail. Je n'ai aucun doute qu'il en fera quelque chose de très, très grand ! Comme un grand pouvoir implique de grandes responsabilités, il hérite également de la charge lourde mais indispensable de trouver semaine après semaine des vidéos qui valent le coup sur Youtube. Pour ça peut-être plus que pour le reste, bon courage !

J'ai une pensée évidemment pour tant d'autres :

— Les anciens de la team J3 : Dr BenP, homonyme et super collègue, Charlie, injouable à Diplo, Thomas, Christelle, Émilie, ex-nouvelle futur collègue à l'IOGS ;

— La team des doctorants du D1, trop nombreuse pour être citée intégralement. Une petite citation à l'ordre de Doudax et sa joie proverbiale, et à mon coloc mais néanmoins ami Julien Imboule, dont j'ai partagé la thèse dans des proportions inédites ;

— Les amis du LPN, en particulier l'adorable Émilie Steveler dont l'aide et le soutien en salle blanche ou en afterwork sont de super souvenirs. J'espère te croiser bientôt à Strasbourg). Je pense aussi à Michaël Verdun qui m'a là encore apporté beaucoup d'aide et que j'ai toujours eu plaisir à croiser au labo ! Et puis, Christophe, Nathalie, Fabrice, Jean-Luc...

Tous ceux qu'il conviendrait de remercier et saluer par ailleurs,

— Les amis de l'X, de la team des Olympiades, et de l'asso X'Doc que j'ai eu la joie de présider ;

— Mes rencontres de Paris-Saclay, MT180, dont l'expérience a été, forcément, fondatrice, et dont je tire encore les fruits ;

— Mes amis de SupOp, les SupOp 2K12 qui ont eu la merveilleuse idée de former la promo la plus légendaire de l'IOGS, en particulier les Dreads Jérèm, Louis, Margaux et Fanny, mais aussi Popo et Imboule (encore lui), les 2K13 qui ont eu notablement moins de chance avec leur promo... ;

— Les collègues enseignants de l'IOGS, Lionel, Thierry, Cédric, Fabienne, François, Gaëlle, Yvan, Raymond, Karen, avec qui j'ai continué à forger ma passion de l'enseignement, et les futurs collègues de NAPHEL et de la team JJG.

Pour terminer, je suis conscient que trois ans de thèse, c'est également beaucoup de, eh ben, pas la thèse. Tout ce travail n'aurait pas été possible sans beaucoup de petits riens qui font tout : des passions nées pendant la thèse, d'autres plus anciennes : le cinéma, grâce à la MJC Jacques Tati d'Orsay et le Cinépal' de Palaiseau, et qui donne une partie de sa saveur à ce manuscrit ; Youtube et la chaîne JDG ; Steam et ses soldes ; Le Japon, avec trois voyages inoubliables, en compagnie du meilleur poto qu'il soit, Valou ; Et enfin, la souffrance et la douleur, avec Tintin au Tibet et Tintin et le Temple du Soleil sur SNES, inachevés et véritable trou béant dans le travail accompli pendant trois ans. Gageons que cet oubli sera bientôt corrigé... **Et maintenant, haut les cœurs !**

THIS IS A TRUE STORY.

The events depicted in this film took place in Minnesota in 1987.

At the request of the survivors, the names have been changed.

Out of respect for the dead, the rest has been told exactly as it occurred.

Fargo, de Joel et Ethan Coen

Sommaire

Résumé xv

Remerciements xvii

Sommaire xxiii

Introduction 1

I Détection quantique IR 5

1 Introduction aux enjeux de la détection 7

2 Aperçu de la détection quantique infrarouge 17

II Fondements théoriques de la détection non-dégénérée 29

3 Absorption à deux photons : développements théoriques 31

4 Détection à deux photons 51

III Processus de détection sub-gap dans les semi-conducteurs 79

5 Expériences d'absorption sub-gap à un faisceau 81

6 Absorption non-dégénérée en régime continu 105

IV Nanostructures pour l'exaltation de l'absorption à deux photons 119

7 Nanostructures pour l'absorption à deux photons dégénérée 121

8 Caractérisation expérimentale des structures 2PHOT02 141

9 Détection non-dégénérée dans des nanostructures **161**

Conclusion **185**

Annexe A : statistiques quantiques de l'absorption non-dégénérée **187**

Annexe B : Concepts avancés de structures pour la détection non-dégénérée **193**

Bibliographie **199**

Introduction : Du *Solid State Infrared Quantum Counter* au Détecteur Infrarouge à Deux Photons

J'ai effectué ma thèse à l'ONERA comme membre du Département d'Optique Théorique et Appliquée (DOTA), avec un financement de l'Ecole Polytechnique. J'ai travaillé au sein du consortium MINAO, qui regroupe une partie de l'équipe CIO du DOTA et des membres du Laboratoire Photonique et Nanostructures (LPN) de Marcoussis. Parmi les activités de recherche de cette équipe, un des enjeux est la structuration de la matière à l'échelle de la longueur d'onde et en deçà, en vue de réaliser différentes fonctions optiques appliquées à la détection infrarouge. Cette thèse a été dirigée par Emmanuel Rosencher, qui nous a brutalement quitté en juin 2013.

S'il y avait un point de départ pour expliquer les motivations de mes travaux de thèse, il serait à trouver dans un article de Bloembergen paru en 1959 et intitulé *"Solid State Infrared Quantum Counters"*[1]. Dans cette étude, Bloembergen propose un schéma de transitions optiques résonantes entre différentes niveaux d'énergie d'un cristal contenant des ions : lorsqu'une première transition est excitée par un photon infrarouge (IR), une deuxième transition peut suivre, celle-ci étant excitée par un très fort flux de photons issus d'une pompe, fournie par l'expérimentateur. Une transition de fluorescence depuis ce niveau excité permet, à l'aide d'un photomultiplicateur, de mesurer la population de l'état excité, et donc de remonter à l'excitation de la première transition par le photon IR.

Cette proposition est la première à faire apparaître l'opportunité d'associer des photons IR à détecter avec des photons de pompe pour effectuer des transitions optiques larges en énergie à des fins de comptage de photons IR. Les technologies de détection et d'imagerie IR se sont depuis largement développées, mettant de côté l'idée originale de Bloembergen. Il faut attendre 2011 et la thèse de Fabien Boitier effectuée à l'ONERA pour qu'elle soit pour la première fois réalisée [Boitier 11], dans le cadre de ses travaux sur les mesures de corrélation de photons par absorption à deux photons dans les semiconducteurs. Dans son travail, le détecteur utilisé est une photocathode en GaAs, semiconducteur dont la longueur d'onde de coupure se situe en bordure du

1. Voir la référence [Bloembergen 59]

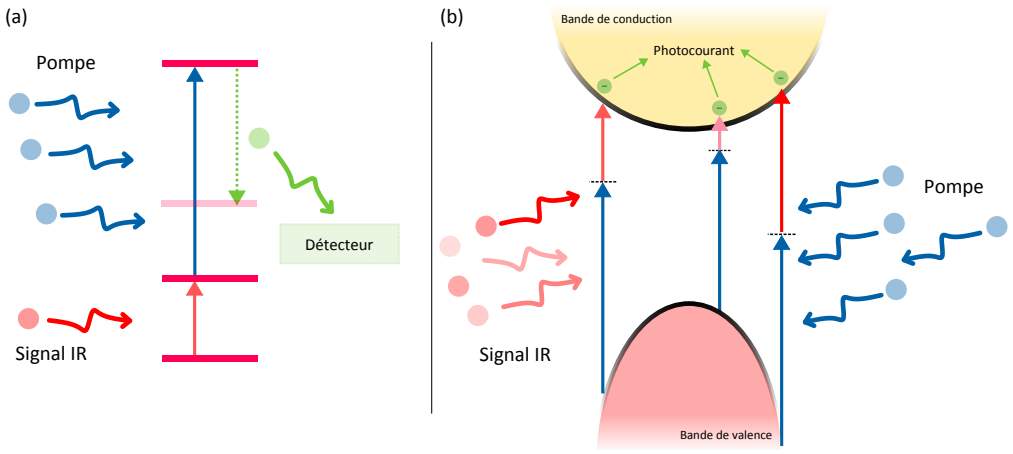


FIGURE 1 – (a) Principe du *Solid State Infrared Quantum Counter* de BLOEMBERGEN : les transitions se font par des niveaux discrets. (b) Réalisation à l'ONERA. Le processus utilisé est l'absorption à deux photons non-dégénérée entre la bande de valence et la bande de conduction d'un semiconducteur.

spectre visible, à 840 nm. Les deux longueurs d'ondes en jeu sont une pompe à 1550 nm et un signal IR à 1900 nm. A la différence de l'idée originale de BLOEMBERGEN, le processus ne repose pas sur trois niveaux discrets et deux transitions résonantes à un photon, mais sur une transition unique à deux photons entre deux bandes d'énergie, ce qui confère une bande spectrale de détection bien plus large au système (voir figure 1). Le processus optique employé est l'absorption à deux photons non-dégénérée, un processus non-linéaire du troisième ordre au cours duquel deux photons d'énergies différentes sont quasi-simultanément absorbés, pour donner ici naissance à des photoporteurs.

Bloembergen soulignait déjà dans son article que si le rendement intrinsèque à attendre de sa solution avait de fortes chances d'être faible, l'intérêt était certainement à trouver dans la solution elle-même. Ce diagnostic a été confirmé par la réalisation de Fabien BOITIER, où le rendement intrinsèquement très bas de l'absorption à deux photons n'est compensé que par l'utilisation de flux important de photons et surtout d'un détecteur extrêmement sensible et performant. Mais cette performance justement, n'était auparavant à comprendre que vis-à-vis de l'application « standard »de cette photocathode : la détection de photons visibles. Plutôt que d'utiliser un détecteur IR, on a donc compté des photons IR avec un photocompteur conçu... pour le visible. L'absorption à deux photons non-dégénérée n'a pas tant permis de faire mieux qu'elle a permis de faire différemment.

Les détecteurs quantiques IR sont conçus pour absorber des photons d'énergie inférieure à 1 eV, les matériaux utilisés sont donc de gap semblable, comme l'InGaAs (0.75 eV). L'utilisation « standard »de ces matériaux rencontre une limite fondamentale de

performance : le bruit associé au courant d'obscurité. En effet, ce niveau de bruit (qui va naturellement contraindre le rapport signal à bruit (RSB)) est proportionnel à $e^{-\frac{E_g}{nkT}}$, E_g étant l'énergie de gap du semi-conducteur, donc une constante propre au matériau, T la température du matériau, k la constante de Boltzmann, et n un facteur compris entre 1 et 2 décrivant les différentes contributions au courant d'obscurité . La solution promue jusque là pour réduire ce niveau de bruit est de refroidir le détecteur jusqu'à des températures cryogéniques à l'aide d'un cryostat. Cette solution est efficace mais introduit des contraintes technologiques et économiques, l'intégration d'un tel dispositif n'étant pas gratuite...

D'où l'intérêt de faire les choses différemment. C'est dans cet esprit qu'en 2011, une équipe du CREOL a démontré le potentiel de l'absorption à deux photons non-dégénérée pour la détection IR à température ambiante, en utilisant des diodes en GaN, dont le gap est situé dans l'UV, à 380 nm, pompées à 390 nm pour détecter un rayonnement à 5600 nm, dans un régime femtoseconde propice aux effets non-linéaires, bien que peu conforme à de nombreuses applications de détection IR comme de l'imagerie [Fishman 11].

Objectifs et enjeux de mon travail de thèse

Mon sujet de thèse porte sur des problématiques de physique de la détection, dans un souci de « recherche finalisée ». Dans ce manuscrit, j'étudie des alternatives aux schémas classiques de détection IR en cherchant à détecter ces mêmes photons IR dans des matériaux à grand gap et à température ambiante, matériaux intrinsèquement soumis à des courants d'obscurité plus faibles. Pour cela, je m'appuie sur l'absorption à deux photons, processus non-linéaire du troisième ordre permettant l'absorption de paires de photons d'énergie sub-gap, l'un pouvant être le photon IR que l'on cherche à détecter.

Ce processus est déjà bien connu, mais son caractère non-linéaire, intrinsèquement peu efficace, l'a cantonné à des applications impliquant de hauts niveaux d'intensité optique, ou des régimes temporels extrêmement courts : mesures d'autocorrélation, optical switching... Mon travail a donc consisté à étudier des pistes d'amélioration de l'efficacité de ce processus **appliqué à la détection IR**, c'est à dire dans un régime de nettement **plus basse intensité optique, et continu**.

Deux axes principaux se dégagent de mon travail pour contribuer à l'augmentation de cette efficacité :

1. **Une voie « quantique »**. Je me suis intéressé à une certaine configuration énergétique des transitions à deux photons, celle où les énergies des deux photons sont extrêmement différentes, leur somme restant légèrement supérieure au gap. On parle d'absorption extrêmement non-dégénérée en énergie (*Extremely Non-Degenerate Two-Photon Absorption*, ou END-2PA). L'END-2PA a pour propriété

principale d'être un processus bien plus efficace que l'absorption de deux photons d'énergie identique, ou absorption à deux photons dégénérée (*Degenerate Two-Photon Absorption*, D-2PA). Elle est naturellement adaptée à la situation de l'IR, où les photons ont une énergie typiquement inférieure à 500 meV. Elle se prête donc particulièrement bien à la détection de photons IR d'énergie très faible (IR moyen à lointain, pour des longueurs d'onde comprises entre 3 et 12 μm). Elle implique de travailler avec deux sources différentes de photons, une source "pompe", qui va fournir en grand nombre des photons de forte énergie (photons visibles) susceptibles de s'associer à ceux de la source "signal" (photons IR), afin de réaliser une transition à deux photons à travers le gap.

2. **Une voie « électromagnétique ».** J'ai bénéficié de l'expertise de notre équipe dans le domaine de la nanostructuration afin de réaliser des éléments permettant d'améliorer l'efficacité du processus d'absorption à deux photons. Ici, les nanostructures ont pour objectif de confiner les champs électromagnétiques des deux sources et de les recouvrir autant que possible pour augmenter le taux de 2PA. La conception de telles structures exploite les outils numériques développés en interne. Leur fabrication s'est déroulée en salle blanche au LPN. Leur caractérisation a donné lieu à l'élaboration d'un banc de mesures au laboratoire ONDA de l'ONERA.

L'association des deux voies permet de faire émerger une première architecture de photodétecteur IR non refroidi basé sur l'END-2PA. La démarche adoptée, prospective, a tenu à rester en contact permanent avec le contexte de la détection IR, telle qu'elle est comprise et utilisée aujourd'hui, afin de proposer de détecter l'IR autrement.

Organisation du mémoire

Mon mémoire se structure selon quatre parties. La première partie s'intéresse à la détection IR et aux enjeux des technologies refroidies de détection IR. La deuxième partie présente les modèles théoriques que j'ai développés et utilisés pour décrire l'absorption à deux photons dans les semi-conducteurs et le principe de la photodétection basée sur le processus de 2PA. La troisième partie traite des mécanismes d'absorption sub-gap dans les photodétecteurs et leur caractérisation. La quatrième et dernière partie présente les nanostructures développées pour l'exaltation de la D-2PA et la ND-2PA.

Première partie

Détection quantique IR

Mary Poppins : Our first game is called Well Begun is Half-Done.
Michael : I don't like the sound of that...

Mary Poppins
de Robert Stevenson

Chapitre 1

Introduction aux enjeux de la détection

Ce chapitre présente en guise d'introduction le contexte général de mon travail : celui de la détection de lumière, plus particulièrement de la détection infrarouge. Il y sera donc question des propriétés de ce rayonnement, des technologies de détection qui lui sont consacrées, et des applications qui y sont associées.

1.1 Introduction : Une brève histoire de la détection quantique

On a tendance à l'oublier, mais la lumière est probablement notre principale source d'informations sur notre environnement. Elle est le médiateur de la vue, l'un de nos sens, si ce n'est le plus important, tant la quantité d'informations véhiculée par une scène observable est prodigieuse, au delà de la simple information visuelle : l'état de la végétation nous renseigne sur un climat, les ombres et les perspectives nous renseignent sur les distances. La lumière bénéficie d'une omniprésence comme phénomène naturel, ce qui a justifié son étude depuis des temps extrêmement reculés. Elle dispose d'une grande force symbolique depuis la nuit des temps, alimentée par des principes aussi élémentaires que le cycle jour/nuit et qui se traduit dans des constructions purement humaines et spirituelles, comme le mythe prométhéen : la lumière est le symbole de la connaissance. Certaines interprétations de la mythologie établissent un lien entre Prométhée et Lucifer, le "porteur de lumière".

La puissance évocatrice de la lumière et l'enjeu de la détection découlent certainement de la pure induction logique humaine, qui aboutit à ce que l'on pourrait appeler un "principe de réalité" : ce qui existe peut être vu, et la lumière donne à voir. Car c'est un fait que l'on éprouve depuis toujours : la lumière a la très bonne idée d'interagir avec la matière, elle rend les choses visibles et leur confère une existence matérielle.

Mais si l'étude de la lumière est très ancienne, la compréhension de sa nature est encore extrêmement sujette à interrogation...

Une des raisons en est justement la médiation physiologique de l'oeil, qui longtemps n'a permis de comprendre le phénomène lumineux qu'au travers du prisme de la per-



FIGURE 1.1 – Prométhée, en souffrance manifeste

ception sensorielle : on parle d'instruments d'optique subjectifs (lunettes, télescopes, goniomètres...). Une autre est que si l'étude de la matière est rendue possible avec la lumière, l'étude de la lumière n'est possible qu'à l'aide de la matière : à des égards particulièrement intensifs, les progrès de l'optique puis plus tard de la photonique ont été tributaires des progrès de toutes les autres sciences et techniques.

Les premières études de la lumière datent d'Euclide qui posent les bases de l'optique, en s'intéressant à la propagation en ligne droite de la lumière dans les milieux homogènes, à la réflexion et la réfraction. Les effets de loupe sont observés et les premiers verres lentiformes sont déjà présents dans l'Empire Romain. Mais c'est vers 1280 que le moine Roger Bacon conçoit les premières "lunettes de vue", c'est à dire le premier dispositif conçu et pensé pour améliorer la vision humaine, et mieux voir. Dans les siècles suivants, quelques lents progrès s'opèrent sur le traitement et la fabrication des verres.

Une révolution considérable survient au crépuscule du XVIème siècle, lorsqu'apparaissent les premiers microscopes conçus par Leeuwenhoek et lorsque Galilée conçoit sa première lunette astronomique en 1609 : les pionniers de l'optique instrumentale franchissent une étape capitale pour l'humanité : l'œil n'est plus nu, mais "habillé", il peut voir et observer des objets auparavant "invisibles"...

En biologie, la microscopie permet tout simplement de prouver l'existence de microorganismes. En astronomie, les corps célestes dévoilent leurs premiers secrets. Mais les optiques de la lunette de Galilée sont encore de qualité très moyenne, bien que patiemment polies par l'intéressé... La naissance d'une industrie européenne du verre, menée d'abord par les verriers vénitiens de Murano puis par les opticiens de la Tamise intro-



FIGURE 1.2 – *L'incrédulité de saint Thomas*, par le Caravage. S'il faut voir pour croire, faut-il détecter pour comprendre ?

duisent le verre flint au milieu du XVIIème siècle : son nombre d'Abbe ridiculement bas va permettre de compenser les aberrations chromatiques des instruments, aberration très facile à observer.

Mais il a fallu attendre Newton et Huygens notamment pour que des savants s'intéressent en profondeur à la nature de la lumière en elle-même : Huygens élabore les premières théories ondulatoires de la lumière, Newton ébauche une approche corpusculaire et grâce à la dispersion du prisme, décompose la lumière naturelle selon son spectre visible.

Ces approches de l'étude de la lumière en tant que phénomène vont connaître plusieurs avancées majeures : Lambert construit les premières expériences de photométrie, avec l'idée de mesurer scientifiquement la quantité de lumière. Herschel découvre pour le moins fortuitement le rayonnement IR en 1800, le rayonnement UV est observé par Ritter l'année suivante : pour la première fois, on comprend que le spectre de la lumière comprend un pan "invisible" et que la notion de lumière visible est indépendante de la nature physique de la lumière. La diffraction est expliquée par un processus d'interférences, mettant en avant une description ondulatoire de la lumière, alors que Maxwell pose les bases quasiment inamovibles de l'électromagnétisme.

Une dernière étape s'opère sur la route de la détection. Les inventeurs du XIXème siècle mettent au point des instruments d'optique performants : la photographie et le cinéma apparaissent et sont capables de "stocker" de l'information lumineuse et de la restituer à l'observateur. D'autre part, la résolution du problème du rayonnement du corps noir permet d'établir les bases d'une description quantique de la lumière, introduisant la notion de quantification par Planck [Planck 59]. Le formalisme quantique permet d'expliquer enfin les premiers mécanismes d'interaction de la lumière avec la matière.

L'explication de l'effet photoélectrique, observé à la fin du XIXème siècle par Hertz



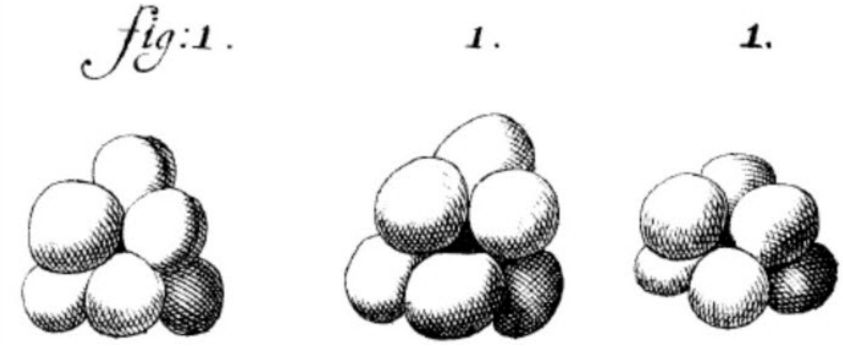


FIGURE 1.3 – Antoni van Leeuwenhoek réalise de nombreuses observations à l'aide de son microscope, et peut décrire précisément de très petites structures, comme des grains de levure, à droite.

[Hertz 87], et l'introduction de la notion de photons par Einstein [Einstein 05] portent les germes du chaînon manquant à la détection : la possibilité de convertir la lumière en une autre grandeur dont la métrologie est plus évoluée, et l'électricité en est le parfait candidat. Des décennies se sont écoulées depuis les premières balances de Coulomb et de nombreuses villes sont éclairées par l'électricité. La possibilité de relier la lumière à l'électricité signe la naissance d'un champ technique, **l'optoélectronique**.

Les premiers composants de l'optoélectronique sont des tubes à vides. La grande aventure de la détection va profiter d'une révolution, celle des semi-conducteurs. L'invention du transistor en 1948 apporte la brique élémentaire nécessaire à la conception de capteurs très performants : les charges électriques issues de la conversion des photons peuvent être manipulées avec rapidité et précision. C'est à la même époque que sont conçus les premiers phototransistors qui rapidement s'appeleront photodiodes : en somme l'aboutissement de siècles d'avancées sur la connaissance de la nature de la lumière et de ses interactions avec la matière, matière qui peut maintenant être suffisamment manipulée pour réagir de manière contrôlée et contrôlable à une stimulation lumineuse.

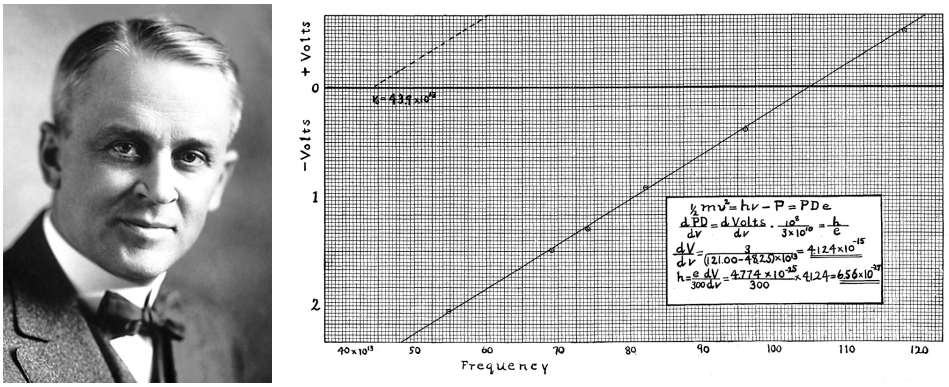


FIGURE 1.4 – Millikan vérifie expérimentalement les développements théoriques d'Einstein sur l'effet photoélectrique. Il en déduit une première mesure expérimentale de la constante de Planck[Millikan 16].

Nous arrêterons notre rétrospective en 1969 dans les laboratoires Bell, avec l'invention du capteur CCD par Smith et Boyle : l'optoélectronique venait de basculer dans l'imagerie, fournissant le premier capteur photosensible à usage de masse.

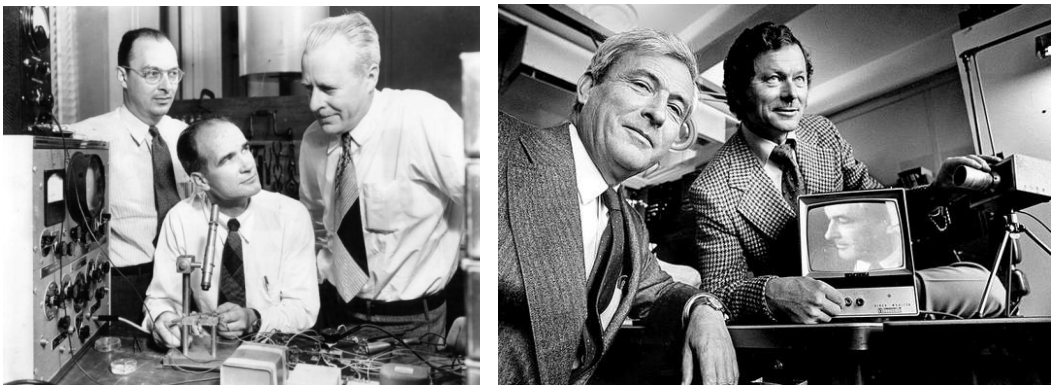


FIGURE 1.5 – Le transistor est inventé en 1948 : c'est le début des détecteurs quantiques à base de semi-conducteurs. Tout s'accélère : le CCD est développé en 1969 par Smith et Boyle.

Ce bref retour en arrière permet d'illustrer que la possibilité de faire interagir la lumière avec la matière a toujours été au cœur des progrès de la détection : c'est encore le cas aujourd'hui, les progrès des différentes filières technologiques se jouant au niveau de la maîtrise de la fabrication de certains composants, certains matériaux, selon des procédés toujours plus complexes, mais permettant de maîtriser toujours plus finement les interactions entre photons et électrons.

1.2 Ce que la lumière donne à voir

1.2.1 Rayonnement du corps noir

Newton a été un des premiers à démontrer que la lumière naturelle se décompose en ses différentes composantes spectrales, à l'aide de la dispersion d'un prisme. L'expérience d'Herschel a ensuite mis en évidence que la lumière ne s'arrête pas au champ du visible en détectant des "rayons caloriques", toujours grâce à un prisme. Le lien unissant rayon visible est calorique et rayon visible est apporté par **la loi de Planck**. Cette loi décrit l'émission thermique idéale d'un objet porté à une température T : c'est le modèle du corps noir, dont la loi de Planck donne la luminance énergétique spectrale (en $[W.m^{-2}.sr^{-1}.Hz^{-1}]$) :

$$L(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{\exp(\frac{hc}{\lambda kT}) - 1} \tag{1.1}$$

Bien qu'objet fictif, le modèle du corps noir décrit de façon très correcte le rayonnement thermique de la plupart des objets réels. On trace sur la figure 1.6 cette luminance en échelle logarithmique pour plusieurs températures. Chaque courbe possède un maximum à une longueur d'onde $\lambda_{max}(T)$ qui suit **la loi de Wien** :

$$\lambda_{max}(T) \approx \frac{3000}{T} \tag{1.2}$$

où le résultat est donné en μm si la température est donnée en K.

En vertu de cette loi, nous voyons que tout objet au dessus du zéro absolu émet un rayonnement thermique dans une large bande spectrale, dont le maximum se situe à des longueurs d'onde d'autant plus courtes que l'objet est chaud.

Un astre comme le soleil a une température de surface de $5777K$, la loi de Wien place $\lambda_{max}(T = 5777K)$ aux alentours de 550 nm, soit dans le vert du spectre visible, au pic de sensibilité de notre œil.

Cependant, un corps à température ambiante, aux alentours de 300K, présente un λ_{max} vers 10 μm, hors du spectre de la vision humaine compris dans l'intervalle [400 nm ; 700 nm]. Ce rayonnement se situe dans **l'infrarouge (IR)**.

1.2.2 Le rayonnement infrarouge

L'infrarouge est la partie du spectre électromagnétique se situant entre le visible (quelques centaines de THz) et leTHz, soit des longueurs d'onde dans un intervalle [800 nm, 300 μm].

Le rayonnement infrarouge ambiant est partiellement tronqué par l'absorption de notre atmosphère, constituée de nombreux gaz dont beaucoup présentent une absorption dans l'IR. Ainsi, il est généralement fait distinction de trois domaines de transparence

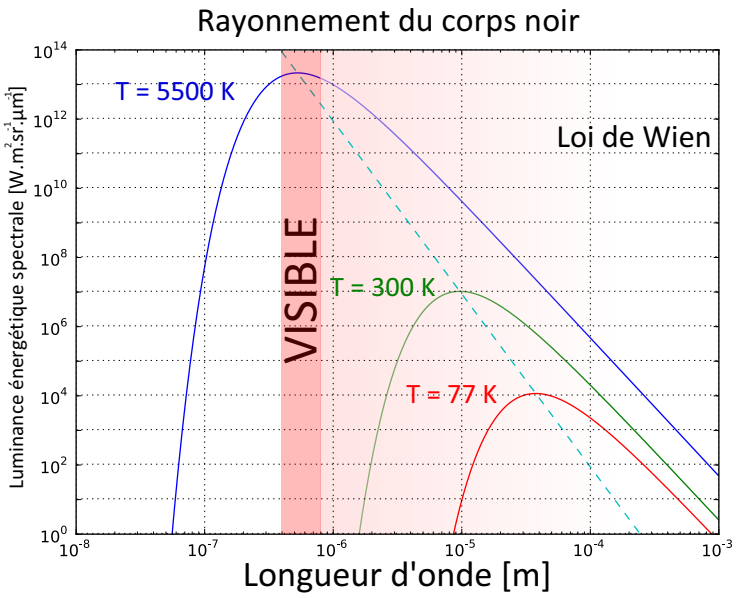


FIGURE 1.6 – Rayonnement du corps noir à différentes températures.

de l'atmosphère dans les longueurs d'ondes IR :

1. **La bande I (ou SWIR)**, entre 1 et 3 μm (température de corps noir autour de 1500K)

2. **La bande II (ou MWIR)**, entre 3 et 5 μm (température de corps noir autour de 750K)

3. **La bande III (ou SWIR)**, entre 8 et 14 μm (température de corps noir autour de 300K)

Pour différentes températures d'émission, les spectres de rayonnement de la figure ne se croisent pas : il y a une relation explicite entre spectre, puissance du rayonnement d'un corps et sa température. Les trois bandes de l'IR vont donc s'intéresser à des corps noirs de températures sensiblement différentes. A l'inverse, des corps noirs de température similaire auront un comportement émissif semblable et seront difficiles à distinguer dans l'IR.

1.3 Applications

Presque tous les objets qui nous entourent sont sources primaires de lumière infrarouge, grâce à leur rayonnement thermique à température "ambiante". Toutefois, leur rayonnement ne peut pas être systématiquement assimilé à celui d'un corps noir. Chaque matériau a sa propre émissivité et peut réfléchir une partie de la lumière : on parle alors de corps gris.

Les applications de la détection infrarouge peuvent être comprises vis-à-vis de leur bande spectrale de fonctionnement et des caractéristiques optiques des scènes observées. En voici quelques exemples :

— **SWIR** : le SWIR est émis par le soleil : les objets qui nous entourent sont donc des sources secondaires de SWIR dont l'imagerie s'interprète de manière analogue au visible, comme une "couleur" supplémentaire. Certains objets opaques dans le visible (brouillard) peuvent être transparents en SWIR. Il est aussi exploité pour la vision nocturne.

— **MWIR** : Le MWIR est émis par des objets "anormalement" chauds, généralement bien plus que le fond ambiant : c'est le cas des systèmes de propulsion des avions ou des missiles, ou alors des équipements industriels.

— **LWIR** : Le rayonnement est peu différencié du fond : c'est le domaine de la détection de personne, de la thermographie médicale, des diagnostics énergétiques.

Le rayonnement IR et son imagerie sont donc à la source d'un domaine scientifique et technique aux applications très vastes et aux problématiques et contraintes très spécifiques.

1.4 Les détecteurs

Dans le domaine de la détection, plus particulièrment IR, on classe deux grandes catégories :

Les thermodétecteurs

L'absorption de rayonnement infrarouge induit un changement de température du capteur, et une modification de ses propriétés. C'est le cas du thermomètre d'Herschel, mais on exploite aujourd'hui plus aisément les modifications des propriétés électriques du capteur : résistance pour les bolomètres, la capacité pour les pyromètres... Ces détecteurs sont sensibles au flux d'énergie reçue.
Ainsi, un bolomètre est constitué d'un matériau absorbant isolé thermiquement du reste du détecteur (par exemple en étant suspendu). Échauffé, sa résistance varie, ce qui est

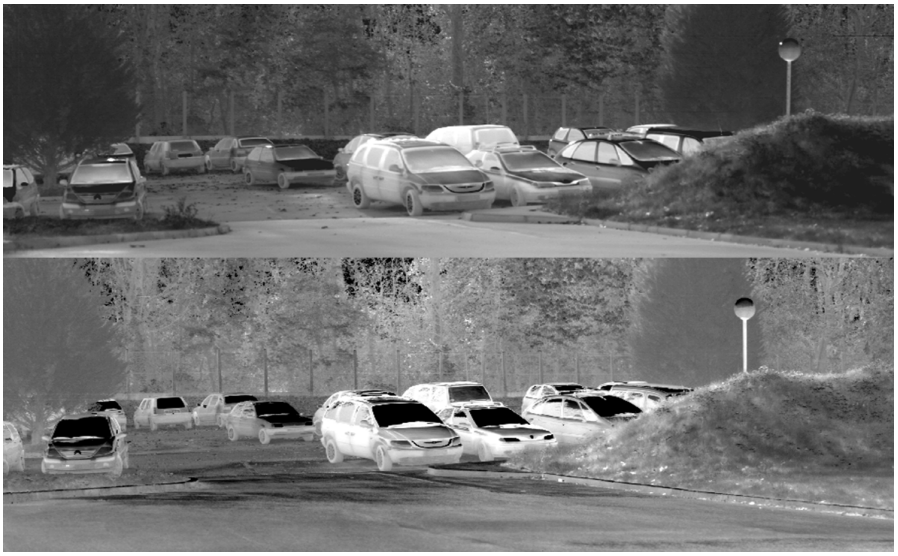


FIGURE 1.7 – Deux images d'une même scène, l'image supérieure étant acquise en bande III, et l'image inférieure en bande II. De multiples informations peuvent être tirées de ces deux images. Le pare-brise d'une voiture réfléchit le rayonnement IR du ciel : il apparaît noir en bande II (pour laquelle le rayonnement provenant du ciel est très faible), mais plus clair en bande III.

observable par une simple mesure du rapport tension/courant, et qu'il est possible de relier à la puissance lumineuse incidente.

Les photodétecteurs

L'absorption d'un photon est susceptible de générer des porteurs de charge dans un matériau généralement semi-conducteur par effet photoélectrique, exploitant les transitions électroniques proposées par le matériau actif. Selon le mode de fonctionnement du capteur, on mesure ensuite une tension (photovoltaïque), une conductivité (photoconducteur) ou un photocourant (photodiode) liée à ces charges. La nature de cette interaction procure de nombreux avantages : ces détecteurs sont sensibles au nombre de photons, leur sensibilité peut donc être extrêmement élevée, théoriquement jusqu'au photon près.

Atteindre ces niveaux ultimes de précision nécessite le recours à des technologies dites "refroidies", c'est à dire intégrant un cryostat dont l'action permet de limiter le niveau de bruit parasitant le signal de détection. Si le résultat est au rendez-vous, l'intégration d'un tel dispositif au sein du capteur n'est pas sans coût et sans introduire des contraintes fortes sur le plan technique.

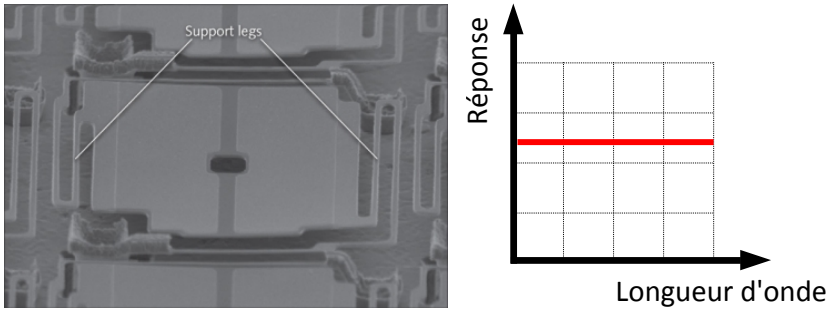


FIGURE 1.8 – Microbolomètre. La surface sensible est montée sur des pattes qui l'isolent thermiquement du reste de la structure. La réponse d'un microbolomètre ne dépend pas de la longueur d'onde : c'est un détecteur d'énergie.

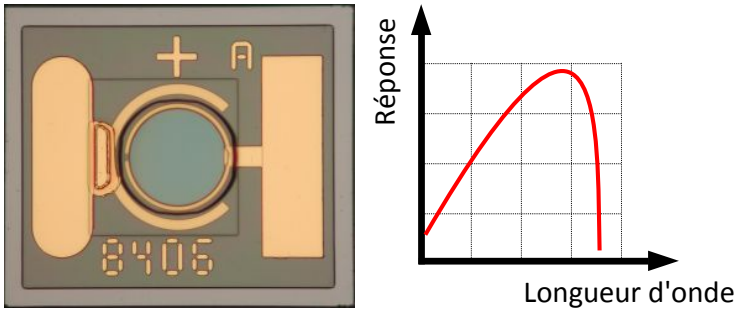


FIGURE 1.9 – Photodiode PIN en GaAs. La jonction se présente comme un empilement de couches dopées ou intrinsèques. La réponse spectrale dépend de la longueur d'onde : un détecteur quantique est un compteur de photons.

Conclusion

La détection infrarouge est centrée sur la détection d'un rayonnement invisible à nos yeux, mais grande source d'informations : à température ambiante, les objets qui nous entourent sont des sources primaires de rayonnement infrarouge, tout comme nous. La détection infrarouge est donc d'un enjeu particulièrement intéressant, eu égard aux nombreuses applications qui tirent parti des informations divulguées par les propriétés de l'émission thermique : imagerie médicale, surveillance, diagnostic énergétique, maintenance. Le champ d'applications de l'optique IR a de plus tendance à s'élargir, les technologies successives basculant du domaine militaire vers le domaine civil. Parmi ces technologies, nous avons évoqué les détecteurs thermiques, qui sont sensibles à la moyenne de l'énergie reçue par le détecteur. Mais, dans la suite, nous ne reviendrons que très ponctuellement dessus, la suite du propos s'orientant quasi exclusivement vers les mécanismes quantiques de détection, qui ont eu le premier rôle au cours de cette thèse.

Gentleman, you had my curiosity.
But now you have my attention.

Leonardo Di Caprio
Django Unchained
de Quentin Tarantino

Chapitre 2

Aperçu de la détection quantique infrarouge

Ma thèse porte sur la détection quantique : un ensemble de techniques et de technologies qui permettent de convertir le signal photonique en signal électronique. Elles concernent aussi bien le domaine visible du rayonnement que l'infrarouge. Ce chapitre porte sur les principes généraux de ces techniques, leurs performances et leurs coûts comparativement dans ces deux domaines, à la lumière notamment des contraintes de refroidissement de la détection IR.

2.1 Description

Les processus physiques exploités aujourd'hui en photodétection ont été observés dès la fin du XIXème siècle, comme la photoconductivité par Smith en 1873, l'effet photovoltaïque en 1876 par Adams et Day, et la photoémission par Hertz en 1887. Il faut attendre l'explication de l'effet photoélectrique par Einstein lors de l'Annus Mirabilis 1905, et des premiers développements d'une théorie quantique de la lumière pour voir émerger des détecteurs exploitant ces effets.

Durant l'entre-deux-guerres, les premières jonctions de semiconducteurs sont connues pour leurs propriétés sur le signal électrique (redressement...). Les prémisses des DELs voient le jour avec les travaux de Losev [Zheludev 07]. Mais les détecteurs sont essentiellement des phototubes, basés sur la photoémission d'électrons dans le vide. Les propriétés des jonctions pour l'interaction lumière-matière sont explorées dans les années 1940. Lorsque le transistor est inventé en 1948, on attribue à Shive l'idée de remplacer le signal électrique en entrée du transistor par un signal lumineux : cette idée est à l'origine du premier "phototransistor" la même année, et révélée en 1950.

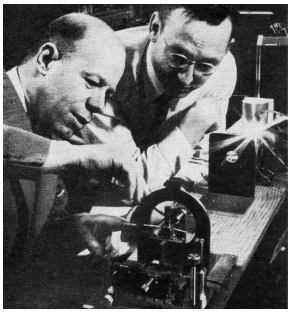
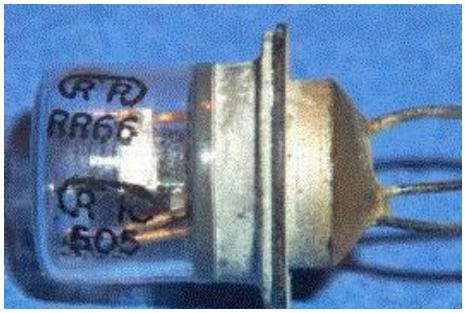



FIGURE 2.1 – John Shive travaille sur un banc de caractérisation de phototransistors (à gauche). A droite, un des premiers phototransistors commercialisés (1954).

2.1.1 Principe général

Dans les photodétecteurs à semiconducteurs, les photons incidents sont absorbés par interaction avec les électrons du matériau, qui peuvent être liés aux atomes du cristal, liés à des impuretés dopantes, ou libres. Cette interaction donne lieu à une transition des électrons vers un niveau où ils sont libérés au sein ou à l'extérieur du matériau. Les photodétecteurs délivrent un signal électrique, conséquence de la modification de la distribution d'énergie électronique, qu'il est possible de relier au rayonnement incident. Cette définition est volontairement très générale, et pour cause : un nombre impressionnant de stratégies, de mécanismes de transition et de conséquences sur le signal électrique sont exploités aujourd'hui pour détecter la lumière.

La Règle d'Or de Fermi synthétise ceci avec élégance, et laisse toute place à notre imagination...

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle f|\hat{W}|i\rangle|^2\rho_{if}^{j} \tag{2.1}$$

où Γ est le taux de transition électronique (auquel le signal électrique attendu est proportionnel), qui est non nul s'il est possible de coupler des états i et f par une interaction lumineuse : l'élément de matrice $\langle f|W|i\rangle$ doit donc être différente de 0. De plus, la densité d'états optiquement joints ρ_{if}^{j} doit également être non nulle. Il s'agit du nombre d'états disponibles pour effectuer la transition, un électron devant occuper l'état initial pour rejoindre un état final vide et disponible.

« All physical phenomena in the range of about 0.1–1 eV will be proposed for IR detectors ! »

Place donc à l'imagination... pour reprendre Norton [Norton 99] sur la détection IR.

2.1.2 Quelques technologies et mécanismes d'absorption

Détecteurs intrinsèques

Considérons qu'un photon pénètre le semi-conducteur. Si son énergie est supérieure à l'énergie de gap du matériau, il peut être absorbé et susciter une transition électronique entre la bande de valence et la bande de conduction, libérant une paire électron trou. Sous l'effet d'un champ polarisant, les charges sont séparées, générant un courant. C'est le principe exploité dans les photoconducteurs, les photodiodes, à base de jonctions PN ou PIN.

Détecteurs extrinsèques

Des impuretés dopantes ont été introduites dans le cristal semi-conducteur, qui présente alors un niveau d'énergie dans son gap, proche des bandes. L'absorption de photons d'énergie suffisante provoque des transitions entre ce niveau et la bande de conduction. Les charges majoritaires apportées par le niveau dopant créent le signal électrique.

Détecteurs photoémissifs, photocathode

L'interaction avec la lumière libère les électrons dans le vide. Ils peuvent ensuite être accélérés et propulsés contre des dynodes pour être multipliés par avalanche.

Puits quantiques

La transition a lieu entre le niveau fondamental du puits quantique et son premier niveau excité. la structure quantique du puits est réalisée grâce à une hétérostructure, alternance périodiques d'alliages semiconducteurs de nature différente.

Tous ces détecteurs procèdent d'une même démarche : une ingénierie du matériau actif au sens large, permettant de proposer un schéma efficace de transition électronique pour une conversion photon/électron. La différence fondamentale de ces transitions est leur largeur : elle est égale à l'énergie des photons qui seront détectés. Aujourd'hui, il existe donc un vaste éventail de matériaux permettant de travailler dans toutes les gammes spectrales.

2.2 Performances d'une photodiode

La photodiode est le composant optoélectronique de référence. Elle convertit un signal photonique en signal électrique. Dans cette section, nous dresserons une rapide description de ce détecteur.

2.2.1 Architecture à jonction PN

Une photodiode est une jonction de deux semiconducteurs, l'un dopé p, l'autre dopé n. L'influence relative de ces deux matériaux en contact donne naissance à une zone

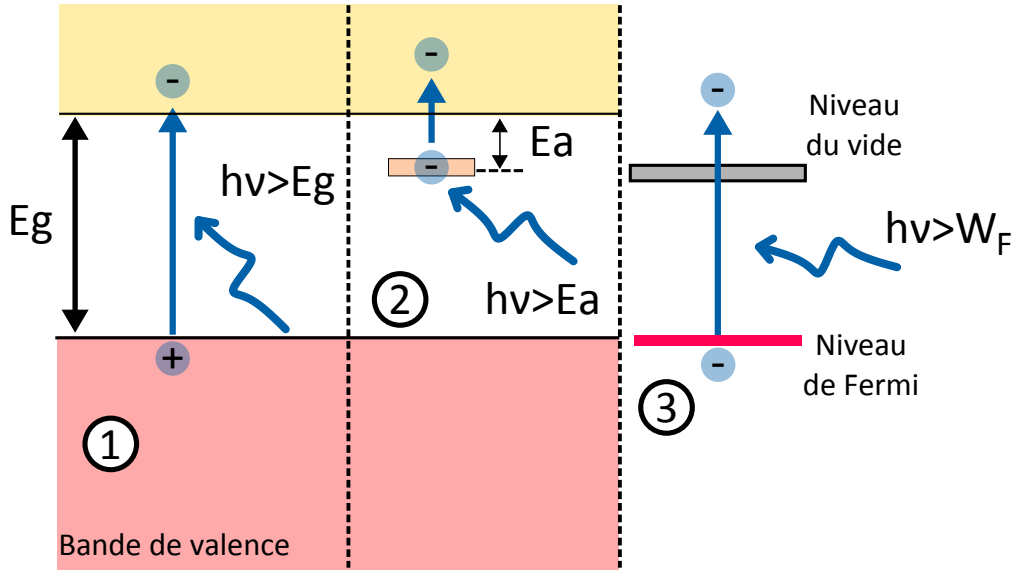


FIGURE 2.2 – La détection de photons peut exploiter de nombreux mécanismes physiques. 1 : Transition interbande dans un détecteur intrinsèque. 2 : Transition depuis un niveau dopant dans un détecteur extrinsèque. 3 : Détecteur photoémissif, W_F représente le travail de sortie du matériau.

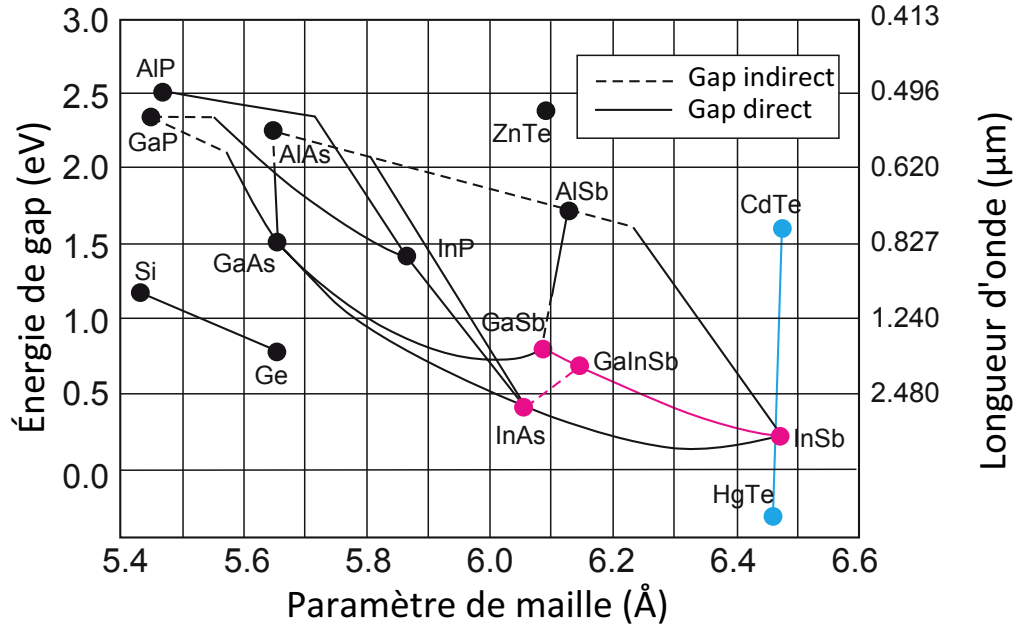


FIGURE 2.3 – Un aperçu des matériaux semiconducteurs utilisés pour la détection quantique, d'après [Rogalski 09]

de charge d'espace (ZCE), désertée par les porteurs majoritaires (trous ou électrons). Restent alors les porteurs minoritaires fixes dans chaque milieu, donnant naissance à une zone dite de charge d'espace, où règne un fort champ électrique. L'application d'une polarisation en inverse renforce le gradient de potentiel de cette zone de charge d'espace.

2.2.2 Signal

Sauf mention contraire, on s'intéressera au signal électrique fourni par une photodiode à jonction PN.

Une photodiode est avant tout... une diode. Elle présente donc une caractéristique courant-tension exponentielle qui, en l'absence d'éclairement, correspond au courant d'obscurité :

$$J_{obs} = J_{sat}(\exp(\frac{qV}{kT}) - 1) \tag{2.2}$$

J_{sat} est le courant de saturation de la diode, V le potentiel de polarisation de la jonction.

A cette première source de signal électrique s'ajoute le signal lié à l'absorption de photons, possible dans le cas où $h\nu > E_g$. On parle alors de photocourant, que l'on peut décrire comme la somme de deux contributions, en fonction du lieu d'absorption des photons :

— Dans la ZCE : la paire électron-trou est immédiatement séparée par le fort champ électrique : c'est le photocourant de génération J_G.

— Dans les zones neutres, hors de la ZCE : un porteur minoritaire est généré, et peut, si la longueur de diffusion le permet, diffuser jusqu'à la ZCE où il sera propulsé vers la zone où ce type de porteurs est majoritaire. C'est le courant de diffusion J_{diff}.

Une photodiode présente donc une densité de courant totale pouvant s'exprimer :

$$J = J_{obs} - J_{phot} = J_{sat}(\exp(\frac{qV}{kT}) - 1) - J_{phot} \tag{2.3}$$

2.2.3 Réponse

Les mécanismes de la détection quantique sont fondés sur la conversion d'un signal photonique en signal électronique. Il faut pour cela que les photons soient absorbés, alors qu'ils peuvent être réfléchis ou transmis. De plus, un certain nombre de charges peut s'égarer en chemin ou disparaître entre leur lieu de création et les électrodes de mesure.

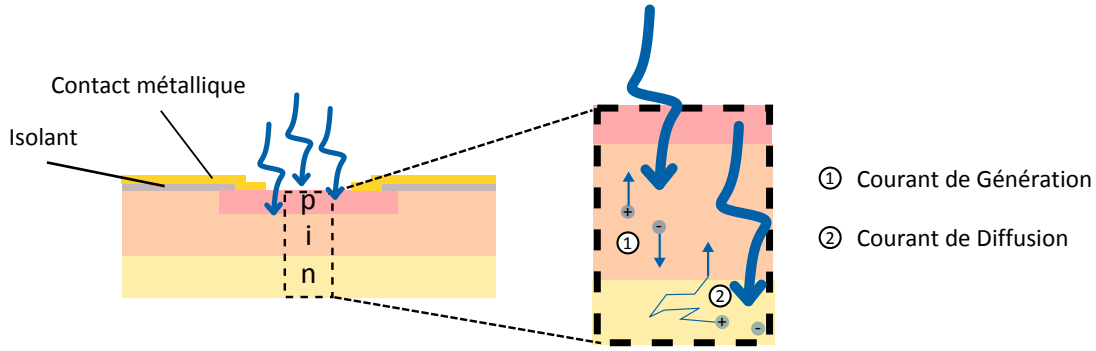


FIGURE 2.4 – Architecture d'une photodiode PIN, intégrant une zone intrinsèque I entre les couches P et N. La lumière incidente peut générer des charges dans les différentes couches de la jonction. Le photocourant est alors la somme du courant de génération et du courant de diffusion

Le rendement quantique externe η_{ext} est la quantité qui décrit l'efficacité de la conversion du photon incident en électron collecté. Il prend en compte l'efficacité de collection des porteurs comme la part de l'absorption du flux photonique incident.

η_{ext} dialogue avec des grandeurs macroscopiques d'utilisation courante : la puissance optique incidente P_{inc}(en Watts), et l'intensité du photocourant électrique J_{phot} (en Ampère). On définit alors la réponse linéaire du détecteur comme :

$$\mathcal{R} = \frac{J_{phot}}{P_{inc}} = \frac{\lambda q}{hc}\eta_{ext}[\mathrm{A.W^{-1}}] \tag{2.4}$$

Cette réponse est fonction de λ, d'une part à cause du passage du flux photonique au flux énergétique, mais également par l'intermédiaire de η_{ext} : représentant l'absorption, il en contient la dépendance spectrale et en particulier, s'écroule pour des photons d'énergie sub-gap.

2.2.4 Bruit

Le but du jeu de la détection, c'est d'arriver à faire émerger le signal (l'information) de toutes les fluctuations qui peuvent le parasiter. Dans le cas d'une photodiode, l'information est le signal de photocourant J_{phot}. Le courant J_{obs} ne représente qu'un décalage du niveau de signal, mais cet offset est cependant entaché de bruit.

Bruit de grenaille Le courant traversant la jonction s'accompagne de bruit de grenaille (shot noise). Ce bruit trouve son origine physique dans la nature des porteurs : des électrons ou des trous, soit des charges discrètes, dont la génération (ainsi que celles des trous) est un processus aléatoire. Si l'on suppose une probabilité de génération qui suit

une loi poissonienne (ce qui est généralement le cas pour les sources visibles et infrarouges) et que les électrons générés dans le matériau ne se recombinent pas (notamment en diffusant), la variance de ce bruit de grenaille s'écrit :

$$\sigma_g^2 = 2q(J_{phot} + J_{obs})\Delta\nu \text{ en } A^2 \text{ rms.} \tag{2.5}$$

$\Delta\nu$ est la bande passante associée au détecteur par le biais de son temps d'intégration : $\tau = \frac{1}{2\Delta\nu}$.

En l'absence de lumière incidente, le bruit de grenaille se limite à celui associé au courant d'obscurité :

$$\sigma_{obs}^2 = 2qJ_{sat}\left(1 + \exp(\frac{qV}{kT})\Delta\nu\right) \tag{2.6}$$

Bruit thermique La photodiode est reliée à un circuit qui va dissiper une partie de l'énergie qui le parcourt. Cette dissipation dans la résistance du circuit s'accompagne de bruit, le bruit de Johnson. Sa variance est donnée par :

$$\sigma_{th}^2 = \frac{4kT}{R}\Delta\nu \text{ en } A^2 \text{ rms.} \tag{2.7}$$

Où R est la résistance de la jonction. Si la photodiode est polarisée en inverse, sa résistance dynamique peut être très grande, de l'ordre du MégaOhm, et le bruit de Johnson associé est alors négligeable.

Bruit de scintillation C'est un bruit d'origine technologique créé par les fluctuations lentes des porteurs dans le matériau : il est très présent à basse fréquence, on parle de bruit en "1/f". Au delà de quelques centaines de Hz, il est souvent négligeable, nous n'en parlerons pas plus ici.

2.2.5 Performance et détectivité

Dans le cas d'une photodiode, le bruit dû au détecteur est essentiellement lié au bruit de grenaille du courant d'obscurité. On peut donc définir plusieurs grandeurs intrinsèques au système. Si l'on considère uniquement les sources de bruits de grenaille, le rapport signal à bruit s'écrit :

$$RSB = \frac{J_{phot}}{\sigma_{tot}} = \frac{\mathcal{R}P_{inc}}{\sqrt{2q(J_{phot} + J_{obs})\Delta\nu}} \tag{2.8}$$

Avec P_inc la puissance optique reçue par le détecteur, en Watts. Lorsque le RSB est égal à 1, on définit la puissance incidente comme la puissance incidente équivalente au niveau de bruit (ou NEP pour Noise Equivalent Power) :

$$NEP = \frac{\sqrt{2q(J_{phot} + J_{obs})\Delta\nu}}{\mathcal{R}} \tag{2.9}$$

On peut en tirer une autre grandeur qui va supprimer les dernières grandeurs qui sont propres au détecteur : la surface active de détection A et sa bande passante $\Delta\nu$. On obtient la détectivité spécifique, grandeur standard qui permet de comparer les performances des détecteurs, exprimée lorsque le bruit est dominé par le bruit de grenaille de J_{obs} :

$$D^* = \frac{\sqrt{A\Delta\nu}}{NEP} = \frac{\lambda}{hc}\sqrt{\frac{e}{2\sqrt{2qI_{sat}(1+\exp(\frac{qV}{kT})}}\eta} \tag{2.10}$$

Dans ce cas, améliorer la détectivité revient donc à réduire le bruit associé au courant d'obscurité, bruit directement relié au niveau de courant d'obscurité.

2.2.6 Courant d'obscurité dans les photodiodes

Le courant d'obscurité trouve son origine dans plusieurs processus obéissant à des dynamiques très différentes, comme les mécanismes Shockley-Read-Hall (où les défauts du semi-conducteur donnent naissance à des niveaux réels dans le gap éligibles pour des transitions électroniques) ou l'effet Auger. Les charges générées de cette manière sont ensuite balayées par le champ régnant dans la ZCE, ou diffusent. On peut montrer d'une part, que dans les photodiodes PIN, le courant de génération domine largement le courant de diffusion, et d'autre part, que ce courant suit une dépendance en $\exp(\frac{-E_g}{2kT})$.

D'après 2.10, la détectivité d'une jonction PIN est ainsi activée en $\exp(\frac{-E_g}{4kT})$. Il est donc théoriquement possible d'atteindre une détectivité ultime en refroidissant le capteur à des températures cryogéniques.

En pratique, il existe un niveau de performance limite, mais optimal : lorsque les bruits extrinsèques sont bien moins importants que les bruits intrinsèques. En effet, le détecteur, lorsqu'il est en fonctionnement, observe une scène qui a minima, fournira un niveau de flux et donc de signal $J_{phot,fond}$, qui s'accompagnera d'un bruit de grenaille. C'est ce signal détecté, dit « de fond », qui limite la performance du détecteur. On parle de régime BLIP : *Background Limited Infrared Photodetector*. Cette détectivité BLIP peut s'écrire en fonction de la température de la scène observée, qui, considérée comme un corps noir, distribue un flux de photons dont une fraction atteindra la surface active du détecteur, selon l'angle solide observé par le détecteur.

2.2.7 Comment améliorer la détectivité ?

Obtenir le détecteur le plus performant possible revient à réduire autant que possible le facteur $\exp\frac{-E_g}{4kT}$ afin d'atteindre la détectivité BLIP. Ce facteur contient deux paramètres, qui sont autant de pistes pour y parvenir.

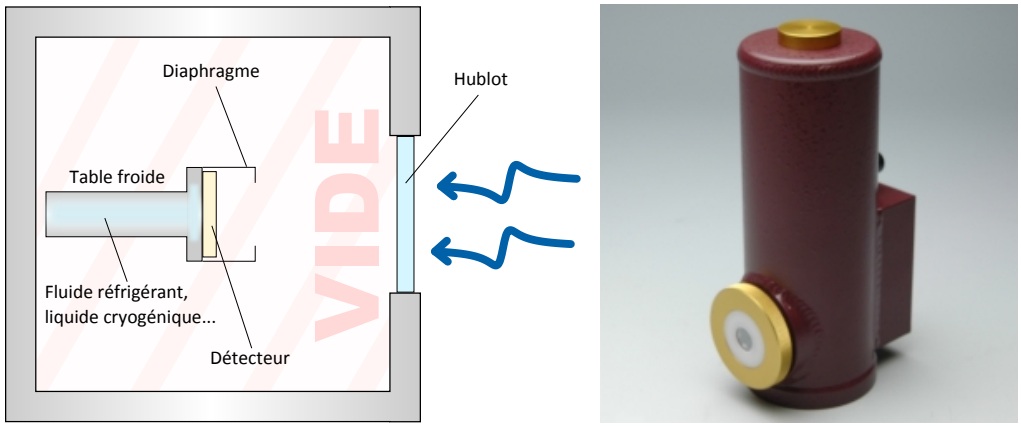


FIGURE 2.5 – Principe d'un détecteur refroidi. Le détecteur est posé sur une table froide, et voit sa température baisser à son contact. Le vide est fait à l'intérieur de l'enceinte pour éliminer les transferts thermiques par convection.

Refroidissement du détecteur C'est la piste généralement utilisée. Pour obtenir un détecteur sensible à des photons de petite énergie (photons infrarouges de bande II ou III), il est nécessaire d'utiliser des matériaux de gap très faible, proche de l'énergie kT à température ambiante ($kT \approx 30meV$ à 300 K). En conséquence, les impuretés à l'origine d'effets Shockley-Read Hall peuvent être activées thermiquement est d'autant plus facile, et le niveau de courant d'obscurité augmente généralement, conséquence de plus nombreuses générations de charges. Cette augmentation de courant signifie une augmentation du bruit, ce qui dégrade sensiblement la détectivité du système.

Les détecteurs IR sont donc généralement refroidis à des températures cryogéniques dans un cryostat, une enceinte fermée, sous vide afin d'éviter les échauffements par convection, et équipée d'un hublot laissant pénétrer la lumière. Certains cryostats opérationnels sont couplés à une machine à froid qui utilise le principe d'une compression-détente d'un gaz, selon le principe de Stirling. D'autres sont alimentés par un liquide cryogénique, généralement de l'azote liquide (80 K), voire de l'hélium liquide (4K).

Bien que les capacités d'intégration de cryostats au sein de détecteurs ont considérablement évolué ces dernières années et sont tout à fait communes dans la filière de détection IR, il n'en reste pas moins que la cryogénie reste une contrainte forte sur le plan technologique, avec des répercussions évidentes et sensibles en termes de coût.

Mais à ce prix, les gains en termes de détectivité sont considérables : les technologies actuelles de détection MWIR et LWIR refroidies peuvent atteindre les niveaux théoriques de performance idéales.

Énergie de gap En augmentant la largeur de la transition interbande, on limite la densité d'états pièges occupés. De plus, les quanta d'activation thermique sont dès lors bien plus petits que le gap du matériau : le courant d'obscurité chute drastiquement, et les niveaux de bruit deviennent bien plus supportables, même sans utilisation de la cryogénie. La détectivité d'une photodiode en GaAs est ainsi bien supérieure à celle d'une diode en InSb, même refroidie. Bien entendu, l'augmentation du gap a une répercussion monumentale : la réponse spectrale est complètement différente, et en particulier nulle dans l'IR, les photons ayant une énergie insuffisante pour provoquer des transitions interbandes.

2.3 Perspectives

Ces deux pistes ont donc quelque chose d'antinomique. Néanmoins, l'un des objectifs de mon travail est de tenter une conciliation. entre ces deux pistes d'amélioration de la détectivité.

Nous proposons de nous affranchir du refroidissement en permettant la détection de photons IR dans des matériaux de grand gap, comme ceux utilisés pour ladétection dans le visible ou le SWIR (Si, Ge, GaAs...)

Cette piste a de plus vocation à suivre les évolutions du marché mondial dans le domaine de l'imagerie IR : les applications des technologies IR se transfèrent progressivement des domaines exclusivement militaires à de nombreuses activités civiles, qui requièrent des performances moins importantes et qui ne peuvent supporter le coût imposé par les technologies quantiques refroidies les plus performantes. Ceci explique pourquoi les microbolomètres, non refroidis et moins performants, sont produits dans des volumes plus importants que toutes les filières quantiques réunies, et cette tendance devrait se poursuivre, les volumes de production associés aux applications civiles suivant une évolution exponentielle à la différence des volumes destinés au militaire, relativement stables.

Conclusion

Ce chapitre a dressé un panorama de la détection quantique, plus particulièrement IR. Son principe a donné naissance à de nombreuses technologies de détection. Nous avons constaté que la performance d'un tel détecteur est généralement associée à son niveau de bruit d'obscurité, et donc à son niveau de courant d'obscurité. Les détecteurs visibles absorbent des photons d'énergie supérieure à 1 eV, et présentent des niveaux de détectivité très intéressants, bien au-delà des niveaux atteints par les détecteurs thermiques. Les détecteurs quantiques IR sont sensibles à des photons dont l'énergie se rapproche du quantum d'activation thermique à température ambiante. Pour conserver des niveaux de détectivité élevés, ces détecteurs sont intégrés en cryostat, source de fortes contraintes technologiques et économiques.

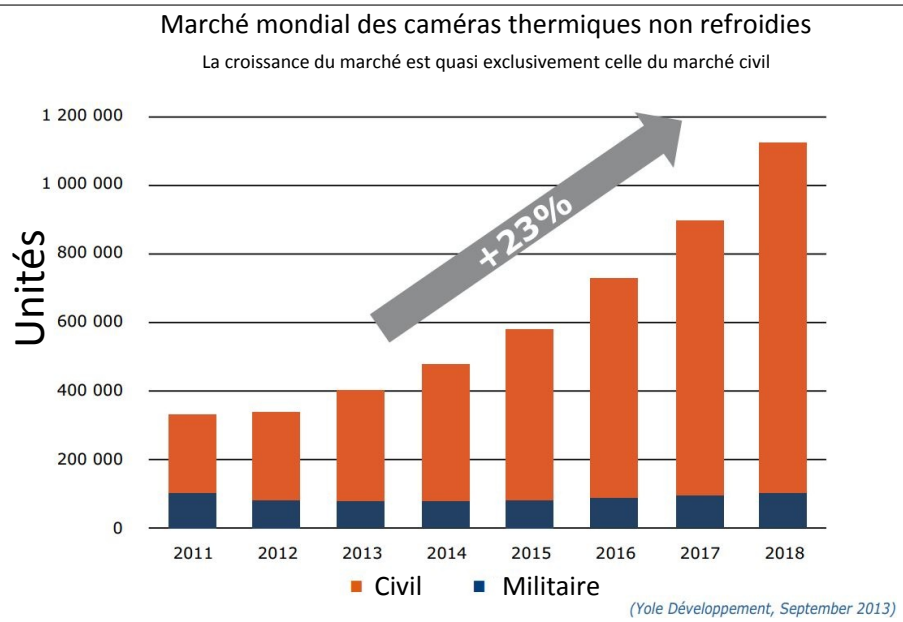


FIGURE 2.6 – Étude menée par Yole sur l'évolution du marché mondial des détecteurs non refroidis. La croissance manifeste de la demande viendra avant tout du domaine civil.

Si les détecteurs ainsi produits sont extrêmement performants, ils ne proposent pas de solution adaptée à l'évolution d'un marché orienté vers des technologies non refroidies, mais qui requièrent des besoins en détectivité ou en résolution spatiale et temporelle élevés, plus importants que ceux proposés par les microbolomètres actuels.

Le travail engagé dans cette thèse vise à jeter les bases d'une solution alternative, explorant un processus de détection quantique pour la détection infrarouge à température ambiante : **l'absorption à deux photons**.

Deuxième partie

Fondements théoriques de la détection non-dégénérée

Le public demande sans cesse du nouveau, de la nouveauté, à quoi ça ressemble ? C'est vieux comme le monde, ça, la nouveauté !

Jean-Louis Barrault
Les Enfants du Paradis,
de Marcel Carné

Chapitre 3

Absorption à deux photons : développements théoriques

Je présente ici quelques aspects théoriques qui permettent de comprendre l'absorption à deux photons, en développant notamment une approche semi-classique. Nous n'aurons pas besoin dans le cas général de quantifier le champ électrique pour décrire le processus. L'approche semi-classique est suffisante dans cette configuration de détection où le nombre de photons incidents est important mais où l'efficacité d'absorption est très faible et perturbe très peu le flux incident. Elle nous permettra d'aborder le cas plus spécifique des semiconducteurs, et de définir les coefficients d'absorption associés à l'absorption non-linéaire.

3.1 Un peu d'histoire

L'existence du processus d'absorption à deux photons est décrite pour la première fois par Maria Göppert-Mayer en 1931 en tant que processus élémentaires à "deux sauts quantiques", aux côtés des transitions Raman Stokes et anti-Stokes, ainsi que de l'émission de deux photons, en utilisant un modèle perturbatif au deuxième ordre de l'hamiltonien d'interaction entre lumière et matière [Göppert-Mayer 31].Il faut attendre une vingtaine d'années avant de voir des expériences mettre en évidence souvent fortuitement des transitions à deux photons, tout d'abord dans le spectre radiofréquence d'une molécule de Rb86 F [Hughes 50b, Hughes 50a], trouvées par la méthode de Rabi [Kusch 54, Kusch 56], mais également grâce aux méthodes optiques développées par Brossel et Kastler [Brossel 54].

Mais c'est véritablement grâce à l'avènement du laser, "maser optique" [Maiman 60], source de haute intensité optique que l'observation de transitions à deux photons devient facile d'accès. Le monde de l'optique entre dans un univers non-linéaire d'abord avec la première expérience de génération de second harmonique dans un cristal de quartz par

Franken [Franken 61]. La même année, Kaiser et Garrett suivent le rythme pour l'absorption à deux photons [Kaiser 61]. Ils éclairent un cristal de fluorure de calcium dopé à l'europium CaF_2 Eu^{2+} à l'aide d'un tout nouveau laser à rubis, de longueur d'onde 694.3 nm. Leur cristal, centrosymétrique, ne peut intrinsèquement pas générer de second harmonique. En 1964, on rapporte les premières observations d'un effet photoélectrique à deux photons [Sonnenberg 64].

Aperçu grâce à des expériences de spectroscopie, l'absorption à deux photons va trouver rapidement son utilité dès les premières ébauches de la spectroscopie non-linéaire : indépendamment, Vasilenko en URSS et une équipe de l'École Normale Supérieure montrent qu'il est possible de supprimer l'élargissement Doppler des raies spectrales à l'aide de transitions multiphotoniques et de faisceaux contrapropageant [Vasilenko L.S. 70, Cagnac, B. 73, Grynberg 76].

Très rapidement, on note aussi les premières mesures de durée et de forme d'impulsion en régime picoseconde grâce à des processus de fluorescence [Giordmaine 67, Weber 68, Glenn 70]. C'est Patel qui, le premier, propose d'utiliser l'absorption à deux photons dans les semi-conducteurs pour mesurer des durées très courtes d'impulsion à $10.6\mu m$ [Patel 71], concept étendu et généralisé 3 ans plus tard par Lee [Lee 74]. Cette idée a permis la conception d'autocorrélateur basé sur la photoconductivité à deux photons dans les semi-conducteurs [Takagi 92].

3.2 Approche perturbative de l'absorption à deux photons

Le modèle le plus accessible pour rendre compte de la 2PA est une approche semi-classique, où les systèmes quantiques que nous étudions ont des niveaux discrets, et interagissent avec la lumière comme onde électromagnétique de fréquence ω et d'amplitude E. Le champ électromagnétique n'est pas quantifié.

L'approche historique de Maria Göppert-Mayer privilégie un développement perturbatif de l'hamiltonien d'un système quantique à plusieurs niveaux, en interaction avec un champ électromagnétique. Nous reprenons dans les lignes suivantes les résultats principaux de cette approche. Nous commencerons d'abord le calcul des interactions au premier ordre pour introduire la règle d'Or de Fermi. Puis nous étendrons les résultats au second ordre pour traiter de l'absorption à deux photons.

3.2.1 Calcul au premier ordre

Nous commençons par définir la base des états stationnaires de l'hamiltonien non perturbé de notre système à n niveaux, H_0.

$$H_0|\phi_k\rangle = E_k|\phi_k\rangle$$

Nous écrivons l'hamiltonien perturbé comme :

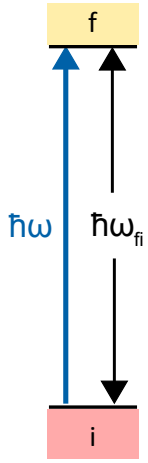


FIGURE 3.1 – Notations utilisées pour le calcul à l'ordre 1.

$$H(t) = H_0 + \lambda \hat{W}(t)$$

avec $\lambda \ll 1$ et $H_0 \sim \hat{W}$.

Nous supposons en effet que les effets de la perturbation seront faibles. Le traitement est ici général, mais on rappelle d'emblée que nous allons étudier un phénomène d'Optique Non Linéaire : les effets du champ électromagnétique, s'ils sont mesurables, resteront faibles.

Notre système initial est dans l'état propre $|\phi_i\rangle$ de l'hamiltonien H_0. En toute généralité, nous écrivons le vecteur d'état de notre système à la date t en le décomposant sur la base des états stationnaires :

$$|\psi(t)\rangle = \sum_k c_k(t)|\phi_k\rangle$$

$|\psi(t)\rangle$ est solution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i\hbar \frac{d}{dt}|\psi(t)\rangle = (H_0 + \lambda \hat{W}(t))|\psi(t)\rangle \tag{3.1}$$

$$i\hbar \sum_k \dot{c}_k(t)|\phi_k\rangle = \sum_k c_k(t)E_k|\phi_k\rangle + \lambda \sum_k c_k(t)\hat{W}(t)|\phi_k\rangle$$

Nous changeons de base en nous plaçant dans le *référentiel tournant* : $c_n(t) = b_n(t)e^{-i\frac{E_n}{\hbar}t}$.
On montre que l'équation de Schrödinger prend alors la forme :

$$i\hbar \dot{b}_n(t) = \lambda \sum_k e^{i\omega_{nk}t} W_{nk}(t) b_k(t)$$

On a introduit les notations suivantes : $\omega_{nk} = \frac{E_n - E_k}{\hbar}$ et $W_{nk}(t) = \langle \phi_n | \hat{W}(t) | \phi_k \rangle$. Le principe de la méthode perturbative est d'écrire le développement limité en λ des coefficients $b_n(t)$:

$$b_n(t) = b_n^{(0)}(t) + \lambda b_n^{(1)}(t) + \lambda^2 b_n^{(2)}(t) + ...$$

On injecte cette décomposition dans l'équation précédente et on identifie terme à terme en λ. L'amplitude probabilité de transition vers l'état $|\phi_n\rangle$ est alors donnée à l'ordre 1 par l'expression suivante [1] :

$$\boxed{b_n^{(1)}(t) = \frac{1}{i\hbar} \int_0^t e^{i\omega_{ni}t'} W_{ni}(t') dt'} \tag{3.2}$$

Interaction avec un champ électromagnétique. Première Règle d'Or de Fermi Prenons le cas d'une perturbation sinusoïdale, correspondant à un champ électromagnétique :

$$W_{fi}(t) = W_{fi} \sin(\omega t) = W_{fi} \frac{e^{i\omega t} - e^{-i\omega t}}{2i}$$

On effectue alors *l'approximation de l'onde tournante* (Rotating Wave Approximation, RWA) qui consiste à ne garder que le terme perturbatif en $\omega_{fi} - \omega$, de fréquence d'oscillation beaucoup plus faible que le terme $\omega_{fi} + \omega$. [2] Finalement :

$$b_f^{(1)}(t) = -\frac{W_{fi}}{2\hbar} \frac{e^{i(\omega_{fi} - \omega)t} - 1}{i(\omega_{fi} - \omega)}$$

Le carré de l'amplitude précédente peut être interprété comme la probabilité que notre système initialement dans l'état $|\phi_i\rangle$ soit dans l'état $|\phi_f\rangle$ après un temps d'interaction t avec notre perturbation [3] :

1. L'intégrale de cette équation peut se réécrire $\int_{-\infty}^{+\infty} e^{\omega_{ni}t'} W_{ni}(t') \Pi_t(t' - \frac{t}{2})$ où l'on a fait apparaître une fonction "porte", de hauteur 1, de largeur t centrée en $\frac{t}{2}$. Cette intégrale s'identifie alors comme la transformée de Fourier de la fonction de perturbation "fenêtrée" de 0 à t, prise en ω_{ni}.

2. Une autre manière de justifier cette approximation est de considérer que seul le terme conservé est susceptible de générer une résonance. D'où l'autre nom usuel de cette approximation, dite *quasi-résonnante.*

3. On retrouve ici la transformée de Fourier de la fonction de perturbation - une exponentielle complexe de fréquence ω - "fenêtrée" par une fonction porte de largeur t. Le résultat est un sinus cardinal centré sur la fréquence ω. C'est bien ω_{fi} qui est la variable conjuguée du temps. Ce résultat montre que les états qui pourront être appréciablement peuplés par la transition $i \to f$ sont ceux dont l'énergie correspond à des amplitudes appréciables de cette Transformée de Fourier.

$$\begin{aligned} P_{fi}^{(1)}(t) &= |b_f^{(1)}(t)|^2 \\ &= \frac{|W_{fi}|^2}{\hbar^2}\left|\frac{\sin((\omega_{fi}-\omega)\frac{t}{2})}{(\omega_{fi}-\omega)}\right|^2 \\ &= \frac{|W_{fi}|^2}{4\hbar^2}t^2 sinc^2((\omega_{fi}-\omega)\frac{t}{2}) \end{aligned} \tag{3.3}$$

Dans le cadre que nous nous fixons, nous supposons que le niveau final fait partie d'un continuum. Ce qui nous intéresse dans ce problème est la probabilité de départ de notre état initial vers n'importe quel état du continuum. Cette probabilité, que nous noterons $P_{Fi}^{(1)}(t)$ est donc la somme de $P_{fi}^{(1)}(t)$ sur tous les états finaux indexés par f du continuum :

$$P_{Fi}^{(1)}(t) = \sum_f t^2 \frac{|W_{fi}|^2}{4\hbar^2}\left|sinc\left((\omega_{fi}-\omega)\frac{t}{2}\right)\right|^2$$

Le sinus cardinal dans l'expression précédente introduit, à t fixé, une largeur en énergie de la résonance. Nous allons supposer que les différents W_{fi} liés aux états du continnum varient lentement sur cette largeur. Ceci nous permet de transformer la somme précédente en intégrale sur la densité d'états du continuum. On note cette densité ρ, qui est fonction de la variable continue $E_{fi} = \hbar\omega_{fi}$.

$$P_{Fi}^{(1)}(t) = \int \frac{|W_{fi}|^2}{4\hbar^2}t^2\left|sinc\left((\omega_{fi}-\omega)\frac{t}{2}\right)\right|^2 \rho(\omega_{fi})d\omega_{fi}$$

Dans la limite des temps longs, on peut montrer que le terme en $t|sinc((\omega_{fi}-\omega)\frac{t}{2})|^2$ voit sa largeur se réduire jusqu'à tendre vers une distribution de Dirac δ_t [4].

L'expression de la probabilité de transition devient alors simplement :

$$\boxed{P_{Fi}^{(1)}(t) = \pi t \frac{|W_{fi}|^2}{2\hbar^2}\rho(\omega_{fi}=\omega)} \tag{3.4}$$

4. Déterminer la probabilité de transition vers le continuum à la date t correspond en fait à deux situations physiques bien différentes :

— On peut supposer n'avoir appliqué la perturbation que de 0 à t et mesurer immédiatement l'état du système.

— Ou on peut supposer la laisser en continu et mesurer l'état du système à une date t pendant la perturbation.

Les deux visions se rejoignent dans le fait que dans les deux cas, le système voit exactement la même chose entre 0 et t.

dont on tire le taux de transition entre le continuum des niveaux f et le niveau i :

$$\boxed{G_{Fi}^{(1)} = \frac{dP_{Fi}^{(1)}}{dt} = \frac{\pi}{2\hbar^2}|W_{fi}|^2\rho(E_{fi} = \hbar\omega)} \tag{3.5}$$

Ce résultat constitue l'une des expressions de la première règle d'or de Fermi.

Validité du calcul et Approximations Tout d'abord, nous remarquons que la probabilité de quitter l'état initial i vers le continuum final a un comportement monotone : elle est croissante.

Notre probabilité de transition ne peut évidemment excéder 1, on se souviendra alors que dans le cas de l'approche perturbative, nous supposons dès le début que la contribution à l'ordre 1 est faible :

$$P_{Fi}^{(1)}(t) \ll 1$$

Le domaine temporel de validité des résultats est donc en toute rigueur :

$$t \ll \frac{1}{G_{Fi}^{(1)}}$$

3.2.2 Calcul au deuxième ordre. Transitions à deux photons. Deuxième Règle d'Or de Fermi

Passons maintenant au calcul au deuxième ordre. Nous avons cette fois :

$$i\hbar\dot{b}_f^{(2)}(t) = \sum_n e^{i\omega_{fn}t}W_{fn}(t)b_n^{(1)}(t)$$

qui s'intègre formellement en :

$$b_f^{(2)}(t) = \frac{1}{i\hbar}\sum_n \int_0^t e^{i\omega_{fn}t'}W_{fn}(t')b_n^{(1)}(t')dt'$$

Nous décrivons notre perturbation comme la somme de deux hamiltoniens perturbatifs - qui représenteront l'interaction avec deux champs électromagnétiques -, ce qui s'écrit de la manière suivante :

$$W_{ni}(t') = \sum_{I=1}^{2} W_{ni}^I sin(\omega_I t')$$

On note maintenant $\omega_{fi} = \omega_{fn} + \omega_{ni}$.

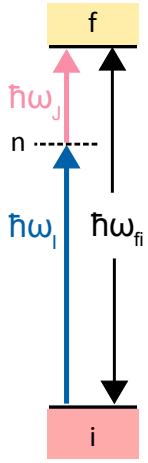


FIGURE 3.2 – Notations utilisées pour la calcul à l'ordre 2.

$$b_f^{(2)}(t) = \frac{1}{4\hbar^2}\sum_n \sum_{J=1}^{2}\sum_{I=1}^{2} \frac{W_{fn}^J W_{ni}^I}{i(\omega_{ni}-\omega_I)}\left[\frac{e^{i(\omega_{fi}-\omega_I-\omega_J)t}-1}{i(\omega_{fi}-\omega_I-\omega_J)} - \frac{e^{i(\omega_{fn}-\omega_J)t}}{i(\omega_{fn}-\omega_J)}\right]$$

Nous considérons alors que les transitions à un photon ne sont PAS résonantes, alors que les transitions à deux photons sont proches de la résonance ($\forall n \omega_{fn} \neq \omega_J$, $\omega_{ni} \neq \omega_I$), ce qui signifie que nous conservons seulement le premier terme de l'expression entre crochets précédente.

De plus, nous supposons que chaque perturbation n'interagit qu'une seule fois avec le système.

$$b_f^{(2)}(t) = \frac{1}{4\hbar^2}\sum_n \sum_{J=1}^{2}\sum_{I\neq 1} \left[\frac{W_{fn}^J W_{ni}^I}{i(\omega_{ni}-\omega_I)} \frac{\sin((\omega_{fi}-\omega_I-\omega_J)\frac{t}{2})}{\frac{(\omega_{fi}-\omega_I-\omega_J)}{2}}\right] e^{i(\omega_{fi}-\omega_I-\omega_J)\frac{t}{2}}$$

La probabilité de transition au deuxième ordre s'écrit :

$$|b_f^{(2)}(t)|^2 = \frac{1}{16\hbar^4}\left|\sum_n \sum_{I\not/} \left[\frac{W_{fn}^J W_{ni}^I}{i(\omega_{ni}-\omega_I)} tsinc((\omega_{fi}-\omega_I-\omega_J)\frac{t}{2})\right]\right|^2$$

Notons les énergies des différentes transitions $\hbar\omega_I = E_I$, etc... Utilisons également les résultats obtenus sur la fonction $tsinc$ (le passage à la limite des « temps longs »fait apparaître la condition de résonance, comme pour le calcul au premier ordre) ainsi que la densité d'états liée au continuum entourant l'état final.

$$P_{fi}^{(2)}(t) = |b_f^{(2)}(t)|^2 = \frac{1}{8\hbar^2}|\sum_n \sum_{I\neq J} \frac{W_{fn}^J W_{ni}^I}{(E_{ni} - E_I)}|^2 \pi t \rho(\omega_{fi} = \omega_I + \omega_J) \tag{3.6}$$

Finalement, le taux de transition entre les niveaux i et f au deuxième ordre s'écrit :

$$G_{fi}^{(2)} = \frac{dP_{fi}^{(2)}(t)}{dt} = \frac{\pi}{8\hbar^2}|\sum_n \frac{\langle f|W^1|n\rangle\langle n|W^2|i\rangle}{(E_{ni} - E_2)} + \frac{\langle f|W^2|n\rangle\langle n|W^1|i\rangle}{(E_{ni} - E_1)}|^2 \rho(E_{fi} = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2) \tag{3.7}$$

Ce taux s'exprime en $[s^{-1}]$

Notons que l'obtention de ce résultat présuppose l'absence de termes dominants au premier ordre et est valide pour des temps $t \ll \frac{1}{G_{fi}^{(2)}}$.

Réalité des transitions

Nous sommes restés jusqu'ici dans le cadre d'un système quantique le plus général possible. Les états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ sont donc des états réels du système quantique, de même que $|n\rangle$, qu'on appelle un *état relais*. Sa participation à la transition optique permet de valider les règles de sélection. Mais l'expression précédente ne tire aucun a priori sur la position de ce niveau. Il peut donc être situé au-dessus ou en-dessous des niveaux $|i\rangle$ et $|f\rangle$, entre eux, ou même sur $|i\rangle$ ou $|f\rangle$. L'influence du choix de $|n\rangle$ joue sur chacun des dénominateurs $E_{ni} - E_1$ et $E_{ni} - E_2$: nous avons supposé que les transitions à un photon ne sont pas résonantes ; rigoureusement, aucun des termes précédents n'est nul. Toutefois, un des deux termes peut être significativement plus petit que l'autre, compte tenu de la différence potentielle entre les énergies des deux photons en jeu, E_1 et E_2.

Absorption à deux photons dégénérée et non-dégénérée

Il faut donc désormais faire la distinction entre deux situations :

— Lorsque $E_1 = E_2$, un seul champ est impliqué dans la transition : cette configuration est celle de l'**absorption à deux photons dégénérée (D-2PA)**. Le taux de transition se simplifie.

— Lorsque $E_1 \neq E_2$, deux champs distincts sont à l'œuvre, on parle d'**absorption à deux photons non-dégénérée (ND-2PA)**. Le taux de transition ne peut se simplifier que sous certaines conditions.

3.3 Application au cas des semi-conducteurs.

Les expériences que nous allons mener par la suite sont effectuées dans des semiconducteurs. Dans la section qui suit, nous allons adapter la formulation de la seconde règle d'Or de Fermi au cas de ces matériaux.

3.3.1 Position du problème et notations

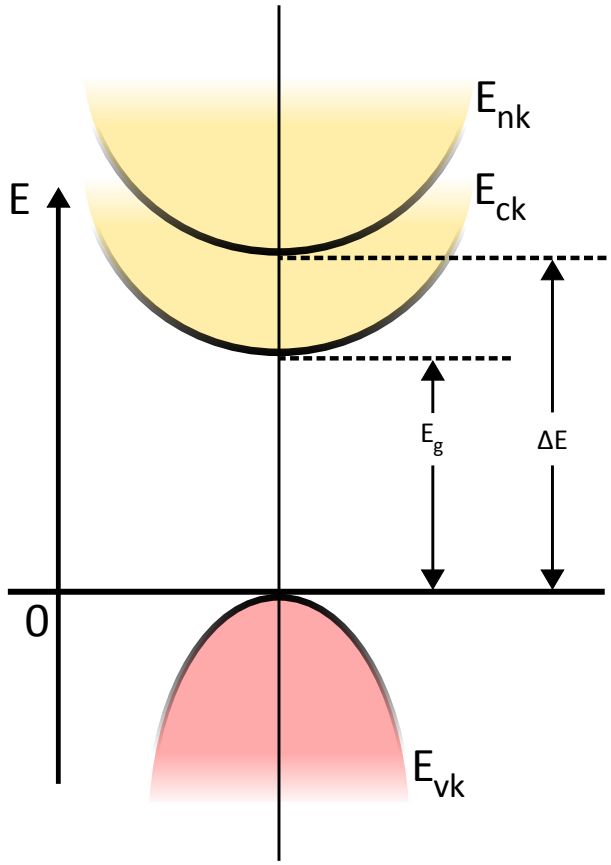


FIGURE 3.3 – Schéma récapitulant les notations utilisées

Les états initiaux de notre système font partie de la bande de valence du matériau, les états finaux font partie de la bande de conduction. Les états "intermédiaires" peuvent être situés dans les deux bandes ou dans aucune des deux. L'origine des énergies est prise au sommet de la bande de valence. La structure de bande est supposée parabolique. Le tableau suivant résume les notations utilisées dans la suite.

Etats	Energies
$\|f\rangle = \|ck\rangle$	$E_f = E_g + E_{ck}$
$\|i\rangle = \|vk\rangle$	$E_i = -E_{vk}$
$\|k\rangle = \|nk\rangle$	$E_n = \Delta E + E_{nk}$

Notons que les énergies peuvent s'écrire de la manière suivante :

$$E_{nk} = \alpha_n \frac{\hbar^2 k^2}{2m_o} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n}$$

$$E_{ck} = \alpha_c \frac{\hbar^2 k^2}{2m_o} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c}$$

$$E_{vk} = \alpha_v \frac{\hbar^2 k^2}{2m_o} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_v}$$

Nous réécrivons le taux de transition de la manière suivante :

$$G_{vc}^{(2)}(k) = \frac{\pi}{8\hbar} \Big| \sum_n \frac{\langle ck|W^1|nk\rangle\langle nk|W^2|vk\rangle}{(E_{nk} - E_{vk} - E_2)} + \frac{\langle ck|W^2|nk\rangle\langle nk|W^1|vk\rangle}{(E_{nk} - E_{vk} - E_1)} \Big|^2 \delta(E_{vk} + E_g + E_c k = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2) \tag{3.8}$$

Nous effectuerons *a posteriori* l'intégration sur la densité d'états.

L'hamiltonien d'interaction lumière-matière peut prendre plusieurs formes dont il est possible de montrer qu'elles traduisent la même physique. Certaines circonstances peuvent amener à choisir un formalisme"$\vec{A}\cdot\vec{p}$". En utilisant une transformation de jauge dans les équations de Maxwell, dite de Göppert-Mayer, on peut utiliser plutôt le formalisme "$\vec{d}\cdot\ \vec{F}$", qui s'identifie à l'énergie d'un dipôle $\vec{d}$ placé dans un champ électrique extérieur $\vec{F}$. La perturbation s'écrit alors :

$$W = -\vec{d}\cdot\ \vec{F} = -eFr \tag{3.9}$$

On désigne par $\hat{r}$ l'opérateur position et par r_{ij} les éléments de matrice correspondant à cet opérateur :

$$r_{ij} = \langle i|r|j\rangle$$

La transformation de jauge liant les opérateurs position et impulsion pour les transitions dipolaires est donnée par :

$$r_{vc} = \frac{i}{m_o\omega_i} p_{vc}$$

Ce qui permet d'obtenir en représentation $\vec{d}\cdot\ \vec{F}$:

$$G_{vc}^{(2)} = \frac{\pi}{8\hbar} e^4 F_1^2 F_2^2 |\sum_n \frac{r_{cn} r_{vn}}{\Delta E + E_{nk} + E_{vk} - \hbar\omega_2} + \frac{r_{cn} r_{vn}}{\Delta E + E_{nk} + E_{vk} - \hbar\omega_1}|^2 \delta(E_{vk} + E_g + E_c k = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2) \tag{3.10}$$

et en représentation$\vec{A}\cdot\ \vec{p}$

$$G_{vc}^{(2)} = \frac{\pi}{8\hbar} \frac{e^4}{m_o^4} \frac{F_1^2 F_2^2}{\omega_1^2 \omega_2^2} |\sum_n p_{cn} p_{nv} (\frac{1}{(\Delta E + E_{nk} + Evk - \hbar\omega_2)} + \frac{1}{\Delta E + E_{nk} + Evk - \hbar\omega_1})|^2 \delta(E_{vk} + E_g + E_c k = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2) \tag{3.11}$$

Dans les deux cas, le reste du calcul doit permettre de déterminer deux valeurs : d'une part, la densité des états liés par la transition, et d'autre part, l'amplitude de ces transitions, représentée par les éléments de matrice r_{ij} ou p_{ij}.

3.3.2 États joints. Résonance

Dans un semi-conducteur, les transitions optiques sont dites « verticales »dans le plan $(E, \vec{k})$, c'est-à-dire qu'elles s'effectuent entre états de même $\vec{k}$. Cette condition définit des états joints optiquement, c'est à dire les états qui sont effectivement reliés par les transitions que nous cherchons à étudier (ici une transition en deux temps à l'aide de deux photons).

Nous allons maintenant sommer l'expression de $G_{vc}^{(2)}$ sur toutes les transitions possibles, $G_{vc}^{(2)}$ étant une fonction de ω_1 , ω_2 , et $\vec{k}$. Cela revient à sommer les taux de transitions pour chaque vecteur d'onde $\vec{k}$, afin de faire disparaître la dépendance en $\vec{k}$. Nous effectuons cette somme en la pondérant par la densité d'états joints par la transition verticale, $\rho(\vec{k})$. Le nombre d'états se trouvant dans un volume élémentaire $d\vec{k}$ autour du vecteur $\vec{k}$ est alors $\rho(\vec{k})d\vec{k}$.

$$G_{vc}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \iiint d\vec{k}\rho(\vec{k}) G_{vc}^{(2)}(\vec{k}, \omega_1, \omega_2)$$

Il va maintenant être nécessaire de dénombrer les états possibles dans l'espace du réseau réciproque.

L'intégrale sur $\vec{k}$ fait intervenir de manière dissimulée le delta de Dirac en fin d'équation. En effet, $\vec{k}$ est relié aux énergies des états finaux dans la bande de valence et de conduction. La fonction de Dirac impose alors la condition de résonance reliant énergéti-

quement l'état initial et l'état final , ce qui va nous permettre d'exprimer k_r, le module de $\vec{k}$ à la résonance :

$$\delta(E_{vk} + E_{ck} + E_g = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2) \Longrightarrow (\alpha_c + \alpha_v)\frac{\hbar^2 k^2}{2m_o} = (\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g) \tag{3.12}$$

et :

$$k_r = \frac{1}{\hbar}\frac{(\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g)^{\frac{1}{2}}}{(\alpha_c + \alpha_v)^{\frac{1}{2}}}(2m_o)^{\frac{1}{2}} \tag{3.13}$$

La densité d'états joints représente la quantité d'états du système électrons-trous pouvant interagir avec nos deux photons, *compte tenu des conditions de résonance de la transition*. Nous allons établir son expression. Gardons en tête que cette densité dépend de la somme des énergies des deux photons.

L'état initial est un état de la bande de valence :

$$E_i = E_v = -E_{vk} = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_v}$$

L'état final est un état de la bande de conduction.

$$E_f = E_c = E_g + E_{ck} = E_g + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_c}$$

Par définition, la densité d'états joints vérifie :

$$\rho(\omega_1, \omega_2)d(\omega_1 + \omega_2) = \rho_c(E_f)dE_f = \rho_c(E_f)\frac{dE_f}{d(\omega_1 + \omega_2)}d(\omega_1 + \omega_2)$$

où $\rho_c(E_f)$ est la densité d'états dans la bande de conduction à l'énergie E_f. On peut la calculer rapidement. Pour une structure de bande isotrope, chaque état $\vec{k}$ occupe un volume $\frac{V}{(2\pi)^3}$ dans l'espace réciproque. Connaissant la relation entre E_c et k et en tenant compte de l'état de spin, on obtient aisément :

$$\rho_c(E_f) = \frac{V}{2\pi^2}(\frac{2m_c}{\hbar^2})^{\frac{3}{2}}E_{ck}^{\frac{1}{2}}$$

A résonance $|\vec{k}| = k_r$, on peut écrire :

$$E_f = E_g + E_{ck_r} = E_g + \frac{m_r}{m_c}(\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g)$$

Tout calcul fait, la densité d'états joints est donc :

$$\rho(E_f) = \frac{V}{2\pi^2}(\frac{2m_r}{\hbar^2})^{\frac{3}{2}}E_{c_{k_r}}^{\frac{1}{2}} = \frac{V}{2\pi^2}(\frac{2m_r}{\hbar^2})^{\frac{3}{2}}(\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g)^{\frac{1}{2}}$$

3.3.3 Application au cas des semi-conducteurs. Hamiltonien $\vec{A}.\vec{p}$

Nous avons maintenant les moyens de faire aboutir le calcul :

$$G_{vc}^{(2)}(\vec{k},\omega_1,\omega_2) = \frac{\pi}{8\hbar^2}\frac{e^4}{m_o^4}\frac{F_1^2F_2^2}{\omega_1^2\omega_2^2}|\sum_n p_{cn}p_{nv}(\frac{1}{(\Delta E + E_{nk} + Evk - \hbar\omega_2)} + \frac{1}{\Delta E + E_{nk} + Evk - \hbar\omega_1})|^2$$
$$\delta(E_{vk} + E_g + E_c k = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2)$$

On introduit les intensités I_i associés aux champs électriques E_i :

$$F_i^2 = \frac{2\pi I_i}{n_i c}$$

On mène désormais le calcul :

$$G_{vc}^{(2)}(\omega_1,\omega_2) = \iiint \frac{d\vec{k}}{(2\pi)^3}\rho(k)G_{vc}^{(2)}(\vec{k},\omega_1,\omega_2)$$

avec :

$$\rho(k_r) = \frac{V}{2\pi^2}(\frac{2m_r}{\hbar^2})^{\frac{3}{2}}(\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g)^{\frac{1}{2}}$$

L'intégrale sur le volume de l'espace réciproque fait apparaître une partie radiale et une partie angulaire. Désormais, nous « oublierons »la partie angulaire qui, dans le cadre de nos approximations, n'a pas d'influence déterminante à part l'introduction d'un facteur multiplicatif au taux de transition :

$$G_{vc}^{(2)}(\omega_1,\omega_2) = \frac{e^4}{m_o^4}\frac{I_1I_2}{16\hbar n_1n_2c^2\omega_1^2\omega_2^2}\frac{V}{2\pi^2}(\frac{2m_r}{\hbar^2})^{\frac{3}{2}}(\hbar\omega_1+\hbar\omega_2-E_g)^{\frac{1}{2}}|p_{cv}|^2|p_{cc}-p_{vv}|^2[\frac{1}{\hbar\omega_1}+\frac{1}{\hbar\omega_2}]^2$$

Il est possible d'exprimer les éléments de matrice de l'opérateur impulsion associés aux transitions étudiées en fonction des paramètres de la résonance et de ceux du matériau [Wherrett 84] :

$$p_{ii} = \frac{m_o\hbar k_r}{m_i} \Longrightarrow |p_{cc} - p_{vv}|^2 = \frac{m_o^2\hbar^2k_r^2}{m_r^2}$$

$$|p_{cv}|^2 = \frac{m_oE_K}{2}$$

où E_K est l'énergie de Kane, à peu près constante parmi les semiconducteurs III-V et qui est reliée à la courbure de la bande de conduction, et donc aux masses effectives des porteurs. Nous avons de plus :

$$m_r = \frac{m_o^2 E_g}{4|p_{cv}|^2}$$

$$k_r = \frac{(2m_o^2 E_g)^{\frac{1}{2}}}{(4\hbar^2|p_{cv}|^2)^{\frac{1}{2}}}(\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g)^{\frac{1}{2}}$$

En notant $x_i = \frac{\hbar\omega_i}{E_g}$, tous calculs faits, nous obtenons [Sheik-Bahae 91, Stryland 85] :

$$\begin{aligned} G_{vc}^{(2)}(\omega_1,\omega_2) &= \frac{e^4 I_1 I_2 \hbar^3}{2\pi^2\sqrt{m_o}n_1 n_2 c^2}\frac{\sqrt{E_K}}{E_g^4}\frac{1}{x_1^2 x_2^2}(x_1+x_2-1)^{\frac{3}{2}}[\frac{1}{x_1}+\frac{1}{x_2}]^2 \\ &\propto \frac{\sqrt{E_K}}{E_g^4}\frac{1}{x_1^2 x_2^2}(x_1+x_2-1)^{\frac{3}{2}}\left(\frac{1}{x_1}+\frac{1}{x_2}\right)^2 \end{aligned} \tag{3.14}$$

Nous avons ici divisé l'expression par le volume V du cristal pour obtenir un taux volumique d'absorption. Nous avons donc abouti à une expression mettant en évidence la dépendance du taux d'absorption à deux photons avec le gap d'une part, et d'autre part avec le rapport des énergies de pompe et signal au gap, dont la contribution est d'ailleurs symétrique. Ainsi $G_{vc}^{(2)}(\omega_1,\omega_2) = G_{vc}^{(2)}(\omega_2,\omega_1)$.

3.3.4 Absorption à deux photons dégénérée (D2PA). Absorption à 2 photons non dégénérée (ND-2PA)

Désormais nous allons nous placer dans la situation suivante : nos deux champs électriques sont composés :

1. D'un faisceau pompe, dont les photons ont une énergie E_p fixée.
2. Et d'un faisceau signal, dont l'énergie de photon E_s peut varier sur une large plage.

La figure 3.4 met en évidence le phénomène qui va désormais nous intéresser : on voit qu'en situation de grande dissymétrie vis-à-vis des énergies des photons incidents (par exemple, $\frac{\hbar\omega_p}{E_g} = 0.9$ et autour de $\frac{\hbar\omega_s}{E_g} = 0.2$), le taux d'absorption à deux photons prend des valeurs sensiblement plus élevées par rapport au cas de l'absorption de deux photons de même énergie, ou absorption à deux photons dégénérée (en anglais, *Degenerate Two-Photon Absorption*, D-2PA) : on peut gagner un, voire plusieurs ordres de grandeur. On parle alors en configuration de grande dissymétried'*Extremely Non-Degenerate Two-Photon Absorption* (END-2PA) [Fishman 11]. Une grande partie de nos futurs raisonnements porteront donc sur une situation où l'énergie de pompe, fixée, est proche du gap, et où l'énergie des photons de signal est bien plus faible.

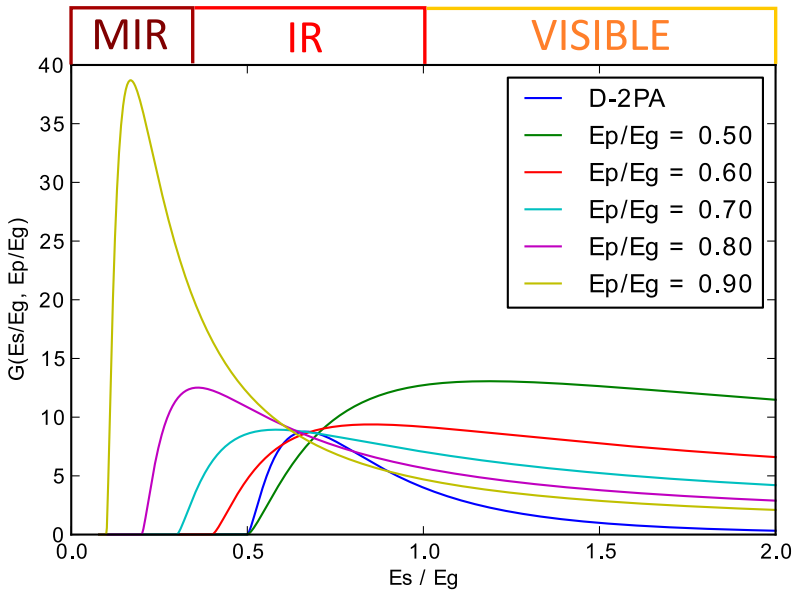


FIGURE 3.4 – Taux d'absorption à 2 photons pour plusieurs énergies de pompe en fonction de l'énergie d'un photon signal (E_g est l'énergie de gap). D-2PA désigne l'absorption dégénérée.

Tentons une interprétation de ce phénomène. L'efficacité de la transition peut-être reliée au caractère résonnant des transitions au sein du système. Reprenons la forme générale de la seconde règle d'or de Fermi :

$$G_{vc}^{(2)} = \frac{\pi}{8\hbar}\left|\sum_n \frac{\langle ck|W^1|nk\rangle\langle nk|W^2|vk\rangle}{(E_n - E_i - E_2)} + \frac{\langle ck|W^2|nk\rangle\langle nk|W^1|vk\rangle}{(E_n - E_i - E_1)}\right|^2 \delta(E_{vk}+E_g+E_c k = \hbar\omega_1+\hbar\omega_2)$$

L'expression précédente fait apparaître un certain nombre de conditions qu'il est important d'avoir en tête au moment de comprendre pourquoi la situation non dégénérée possède un rendement bien plus élevé que la situation symétrique :

— D'une part, la fonction de Dirac impose une condition de résonance en énergie entre l'état initial et l'état final de la transition. Cette condition est indépendante de l'état intermédiaire considéré.

— D'autre part, comme évoqué plus haut, il existe une condition de résonance de type Dirac en $\vec{k}$ entre état initial et état final. Les transitions s'effectuent verticalement entre états optiquement joints.

— Et pour terminer, on voit que le dénominateur des deux fractions apparaissant

dans l'expression est susceptible de s'annuler en cas de résonance entre l'état initial et l'état intermédiaire par le biais d'un des deux photons.

Ainsi, les deux premières conditions fixent rigoureusement l'état final et l'état initial qui peuvent être liés par la transition à deux photons. Cependant, la dernière condition démontre l'importance de la nature résonnante ou non de la transition à un photon depuis l'état initial. Cependant, cette résonance n'apparaît pas mathématiquement comme imposée par une fonction de Dirac. *Il est donc possible de violer la conservation de l'énergie lors de cette première transition, et ceci pendant une durée de l'ordre de* $\Delta t = \frac{h}{\Delta E}$ *où* ΔE *est le désaccord en énergie.* Cette durée est communément appelée le temps de Heisenberg. Nous verrons qu'il est possible de quantifier l'efficacité de la transition en utilisant cette notion. La conservation de l'énergie est ensuite rétablie soit par désexcitation de l'électron vers son état initial à l'issue du temps de Heisenberg, soit par l'arrivée d'un deuxième photon dans l'intervalle Δt qui va alors compléter la transition à deux photons.

La question de l'efficacité de la transition à deux photons peut donc se résumer ainsi : **sachant que les transitions ne s'effectuent qu'entre états optiquement joints, dans quelle mesure notre situation expérimentale exploite-t-elle la résonance en énergie de la transition de l'état initial vers l'état intermédiaire ?**

Les deux transitions successives s'effectuent entre états réels. Ces états, dans notre formalisme, appartiennent à la bande de valence ou de conduction, y compris l'état intermédiaire de la transition à deux photons. Positionnons cet état dans la bande de conduction par exemple. En situation dégénérée, la première transition $v \rightarrow c$ rate la résonance d'une quantité à peu près égale à la moitié du gap, c'est à dire le chemin parcouru par le deuxième photon.

Mais en situation END, cette première transition ne rate la résonance en énergie que d'une toute petite quantité, toujours celle apportée par le deuxième photon... mais qui est cette fois un photon MWIR ! Le taux de transition associé est donc bien plus important. La figure 3.5 permet de visualiser la différence entre les deux situations.

Nous pouvons compléter l'interprétation précédente à l'aide des temps d'Heisenberg. La transition à deux photons peut se produire si pendant un temps Δt suivant l'absorption d'un premier photon, un second photon est absorbé et permet de terminer la transition. On peut donc considérer que l'absorption du premier photon place le système dans un état "virtuel" de durée de vie $\Delta t = \frac{h}{\Delta E}$. Plus cet état virtuel sera proche des bandes, plus le désaccord en énergie sera faible, et plus la durée de vie de ce niveau sera grande. La probabilité d'absorber un photon étant reliée au produit du flux de photon par la durée de vie du niveau, l'efficacité de la transition est considérablement augmentée pour la END-2PA.

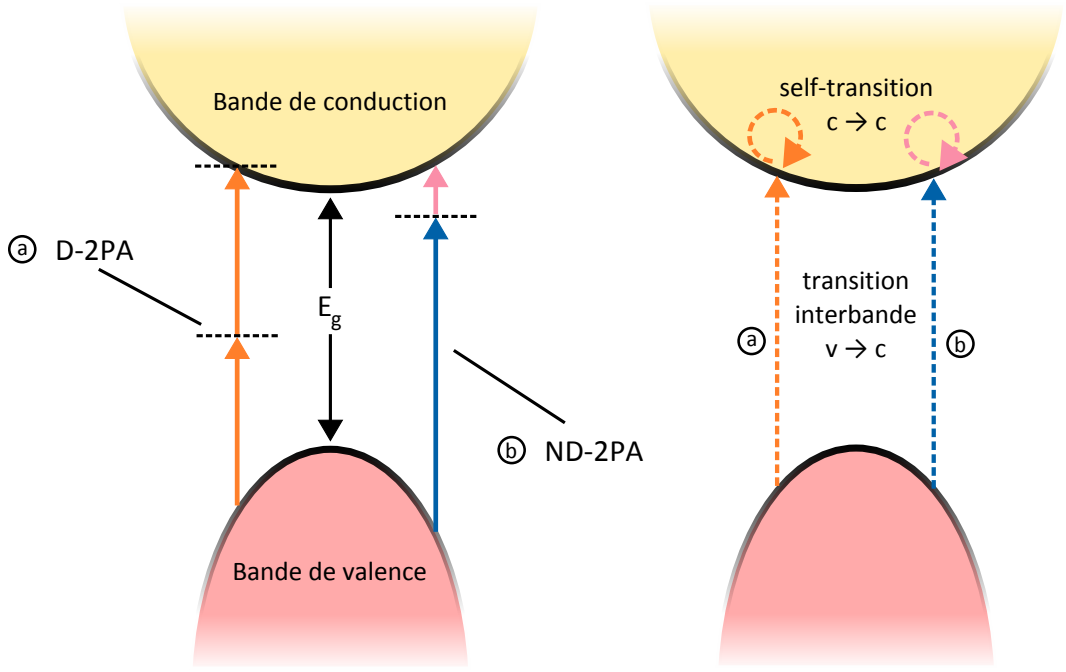


FIGURE 3.5 – Représentations des processus D-2PA et ND-2PA. A gauche, la représentation faisant appel au diagramme d'énergie : les flèches représentent l'énergie apportée par les photons. Les porteurs transitent par des « niveaux virtuels », représentés en pointillés. A droite, représentation des transitions entre états effectivement décrites par la méthode perturbative. Seuls les états réels de la bande de conduction et de la bande de valence sont sollicités. Les largeurs en énergie des transitions ne correspondent pas à l'énergie des photons individuels : les transitions à un photon ne sont pas résonnantes.

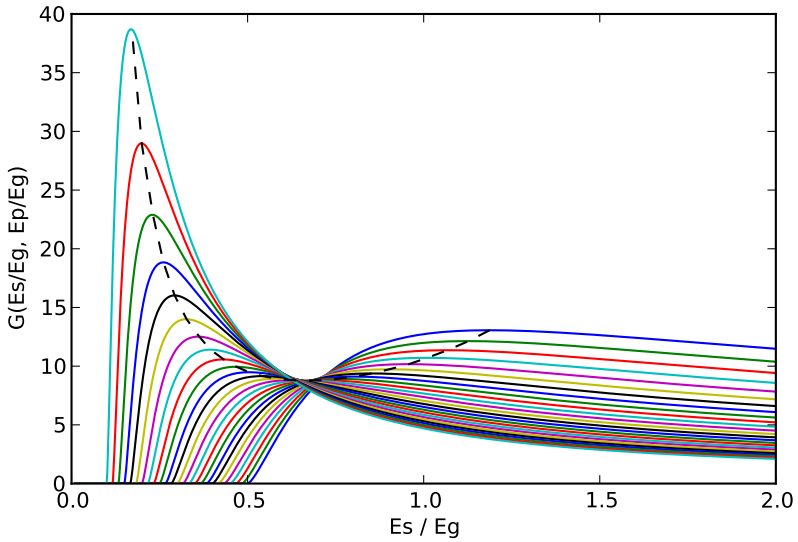


FIGURE 3.6 – Faisceau de courbes pour le tracé du taux de transition G à plusieurs énergies de pompe. La ligne pointillée joint les maximas des différentes courbes.

3.3.5 Coefficient d'absorption à deux photons

Reprenons l'expression 3.14. Ce taux de création de paires électrons-trous dépend bien sûr de l'intensité respective des faisceaux incidents,

$$I_1$$

et I_2. Nous allons normaliser $G_{vc}^{(2)}$ par rapport à ces grandeurs pour en tirer β, le coefficient d'absorption à deux photons, exprimé en [cm/GW], qui est la grandeur standard pour caractériser l'absorption de l'un ou l'autre des faisceaux incidents sur le matériau actif. On écrit donc :

$$\beta(\omega_1, \omega_2) = \hbar\omega_1 \frac{G_{vc}^{(2)}}{I_1 I_2} \tag{3.15}$$

$$= K \frac{\sqrt{E_K}}{n_1 n_2 E_g^3} \frac{(x_1 + x_2 - 1)^{3/2}}{2^7 x_1 x_2^2} \left(\frac{1}{x_1} + \frac{1}{x_2}\right)^2 \tag{3.16}$$

$$\tag{3.17}$$

en reprenant les notations de l'expression 3.14 et avec $K = \frac{2^9}{5} \frac{q^4}{\sqrt{m_0 c^2}}$ une constante indépendante du matériau [Sheik-Bahae 91]. On obtient $K = 1940$ pour obtenir β en

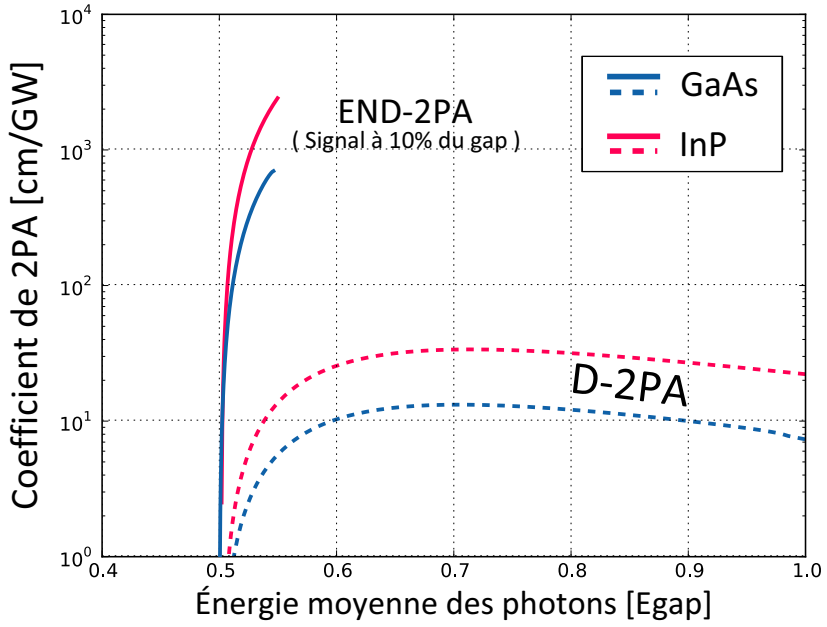


FIGURE 3.7 – Coefficient d'absorption à deux photons en fonction de l'énergie moyenne des photons de la paire, soit $\frac{\hbar\omega_s+\hbar\omega_p}{2E_g}$. Les résultats sont présentés pour deux matériaux : GaAs (E_g = 1.42eV) et InP (E_g = 1.34 eV). Les courbes en pointillés correspondent à l'absorption dégénérée (D-2PA, $\hbar\omega_s = \hbar\omega_p$)), les courbes en pointillés à l'absorption extrêmement non-dégénérée (END-2PA, avec $\hbar\omega_s$ = 0.1 E_g et $\hbar\omega_p$ entre 0.9 E_g et 1.1 E_g.).

cm/GW si les énergies sont exprimées en eV dans 3.17. Les différentes séries d'expériences présentes dans la littérature, si elles ont bien vérifié le comportement attendu an fonction du gap et des énergies de photons, ont régulièrement réévalué l'amplitude de ce coefficient de proportionnalité en accord avec leurs mesures [Van Stryland 85].

La figure 3.7 présente l'évolution du coefficient d'absorption de la pompe pour InP et GaAs en configuration dégénérée et extrêmement non-dégénérée pour $K = 1940$. On observe l'importance de la dissymétrie des énergies des deux photons, qui peut ici représenter un gain de deux ordres de grandeurs sur l'absorption non-linéaire de la pompe. De plus, on constate l'influence du terme en $\frac{1}{E_g^3}$ qui confère un plus grand coefficient d'absorption à InP, de gap plus petit que GaAs.

Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons approché les origines physiques de l'absorption à deux photons par une approche semi-classique, permettant de comprendre la 2PA comme phénomène faisant intervenir deux quanta de lumière. Les transitions opérées par ces quanta sont à l'origine d'une résonance spécifique au cas de la ND-2PA : lorsque la dissymétrie des énergies des deux photons est telle que la transition à deux photons est proche d'une transition à un photon, le processus d'absorption est sensiblement plus efficace. Cette propriété confère à la ND-2PA un intérêt certain dans la détection quantique de photons IR, de faible énergie, assistés par une pompe. Plusieurs architectures de détection en régime de comptage ont été proposées à partir de l'application de ce principe à des détecteurs quantiques utilisés habituellement pour détecter un rayonnement visible comme le silicium [Hayat 08], ou le GaAs [Boitier 09], avant d'être étendues à des régimes de fort flux dans des photodiodes conventionnelles [Fishman 11].

You see, in this world there's two kinds of people, my friend : those with loaded guns, and those who dig. You dig.

Clint Eastwood
Le Bon, La Brute et Le Truand
de Sergio Leone

Chapitre 4

Détection à deux photons

A travers deux formalismes différents, nous avons décrit l'absorption à deux photons, dégénérée et non-dégénérée, et souligné la compétition que peuvent entretenir ces deux processus. Le chapitre suivant se penche sur les conditions de la détection à deux photons, et des premières approches pour en améliorer l'efficacité. Nous allons donc étudier d'une part quelques aspects du signal de détection à deux photons, et d'autre part du bruit qui l'accompagne, afin de proposer des pistes d'optimisation du rapport signal à bruit (RSB), maître étalon de la détection de signal.

4.1 De l'absorption à deux photons comme phénomène non-linéaire d'ordre trois

L'absorption à deux photons peut être décrite selon plusieurs formalismes. Comme nous l'avons vu précédemment, la deuxième règle d'Or de Fermi s'interprète comme un taux de transition entre deux niveaux par l'intermédiaire de deux interactions successives avec le champ électromagnétique. La notion de "photon absorbé" apparaît naturellement au cours du calcul comme quantum élémentaire d'interaction entre la matière et le champ. Le taux de transition, et par suite le coefficient d'absorption à deux photons, est proportionnel au produit de l'intensité des deux champs. La réponse du milieu à l'excitation est donc non-linéaire.

Une autre possibilité est de considérer le formalisme de l'Optique non linéaire pour retrouver les mêmes résultats et interprétations [Aversa 94]. Ici, l'interaction lumière-matière n'est pas décrite par l'intermédiaire d'éléments de matrice mais par les susceptibilités non linéaires, qui relient le champ électromagnétique à la polarisation induite dans le milieu, ce qui permet in fine de déterminer l'énergie transférée du champ au milieu, c'est-à-dire les phénomènes d'absorption non linéaire. C'est ce formalisme qu'on utilisera en pratique pour caractériser les phénomènes d'absorption dans les détecteurs : ce chapitre en est une présentation.

4.1.1 Énergie cédée au milieu par le champ

L'absorption est le phénomène par lequel l'énergie transportée par le champ électromagnétique est transférée à une autre entité. Dans notre cas, c'est bien évidemment le cristal semi-conducteur qui va recevoir cette énergie. Nous allons donc exprimer dans les lignes qui vont suivre la densité d'énergie moyenne donnée par le champ électromagnétique et reçue par le milieu.

Nous introduisons le vecteur de Poynting :

$$\vec{S} = \langle \vec{E} \times \vec{H} \rangle$$

où $\langle \bullet \rangle$ représente la moyenne temporelle. Les équations de Maxwell-Faraday et Maxwell-Ampère s'écrivent :

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{j} + \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \tag{4.1}$$

Le bilan d'énergie s'effectue en écrivant le flux du vecteur de Poynting à travers une surface fermée Σ. En utilisant le théorème de Green-Ostrogradski :

$$\int_\Sigma \vec{S} \cdot \vec{n} d\Sigma = \int_V \vec{\nabla} \cdot \vec{S} dV \tag{4.2}$$

Nous calculons donc la divergence du vecteur de Poynting.

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{S} = \langle \vec{\nabla} \cdot (\vec{E} \times \vec{H}) \rangle = \vec{E} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{H}) - \vec{H} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{E})$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{S} = \langle \vec{E} \cdot \vec{j} \rangle + \langle \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \rangle + \frac{\epsilon_0}{2} \frac{\partial \langle E^2 \rangle}{\partial t} + \frac{\mu_0}{2} \frac{\langle \partial H^2 \rangle}{\partial t}$$

Le premier terme de l'expression correspond à la loi d'Ohm, c'est-à-dire la dissipation de l'énergie apportée par le milieu sous forme thermique. Nous supposerons par la suite $\vec{j} = \vec{0}$ dans le milieu. Le dernier terme s'identifie à la dérivée temporelle de l'énergie électromagnétique U transportée en moyenne par l'onde :

$$U = \frac{\epsilon_0}{2} \langle E^2 \rangle + \frac{\mu_0}{2} \langle H^2 \rangle$$

Finalement, nous pouvons écrire :

$$\int_V \vec{\nabla} \cdot \vec{S} dV = \int_V \langle \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \rangle dV + \int_V \frac{\partial U}{\partial t} dV$$

En régime stationnaire, le deuxième terme s'annule et le bilan se réduit à :

$$\int_V \vec{\nabla}\cdot\vec{S}dV = \int_V \langle\vec{E}\cdot\frac{\partial\vec{P}}{\partial t}\rangle dV = \int_\Sigma \vec{S}\cdot\vec{n}d\Sigma$$

L'équation d'évolution de l'intensité I s'obtient aisément :

$$(I_0 - I)d\Sigma = \langle\vec{E}\cdot\frac{\partial\vec{P}}{\partial t}\rangle d\Sigma dz \Rightarrow \frac{\partial I}{\partial z} = -\langle\vec{E}\cdot\frac{\partial\vec{P}}{\partial t}\rangle = -\mathcal{W} \tag{4.3}$$

Le transfert d'énergie lumière-matière se fait par l'intermédiaire du terme $\mathcal{W}$, qui s'exprime en $[W.m^{-3}]$: c'est une densité volumique de puissance. Ce terme décrit l'absorption, l'énergie n'est ici pas dissipée par effet Joule dans le matériau.

L'expression précédente introduit une moyenne temporelle. On comprend facilement que les seuls termes qui ne seront pas supprimés par cette opération sont les termes pour lesquels la polarisation oscille à la même fréquence que le champ électrique : par produit, un terme à fréquence nulle apparaît alors.**Il ne peut y avoir absorption de lumière que si le champ incident génère dans le matériau une polarisation oscillant à la même fréquence.**

Par souci de simplicité, à partir de ce point, nous "oublierons" le caractère tensoriel des relations liant le champ électrique à la polarisation. Et par commodité, nous ne réécrirons pas systématiquement la dépendance en fréquence des susceptibilités. Dans ce cadre, nous écrivons le champ électrique et la polarisation de la manière suivante :

$$\vec{F} = \vec{u}A(\exp(-i\omega t) + C.C.) \tag{4.4}$$

$$\vec{P} = \vec{u}P(\exp(-i\omega t) + C.C.) \tag{4.5}$$

où $C.C.$ désigne le complexe conjugué et $\vec{u}$ le vecteur unitaire dans la direction de polarisation de l'onde. Nous obtenons alors la densité d'énergie absorbée par le milieu :

$$\mathcal{W} = \langle\frac{\partial\vec{P}}{\partial t}\cdot\vec{F}\rangle = \vec{u}\cdot\vec{u}\langle(Ae^{-i\omega t} + A^*e^{i\omega t})(-i\omega Pe^{-i\omega t} + i\omega P^*e^{i\omega t})\rangle \tag{4.6}$$

$$\mathcal{W} = \langle\frac{\partial\vec{P}}{\partial t}\cdot\vec{F}\rangle = \langle(i\omega AP^* - i\omega A^*P)\rangle = -2\omega\langle\mathfrak{Im}(AP^*)\rangle$$

où $\mathfrak{Im}(X)$ désigne la partie imaginaire de X.

4.1.2 Cas de l'Optique Linéaire

La polarisation induite dans le milieu s'écrit $P = \epsilon_0\chi^{(1)}A$. Notons bien que la susceptibilité électrique linéaire est dans le cas général un nombre complexe, que nous écrirons $\chi^{(1)} = \chi^{'(1)} + i\chi^{''(1)}$.

$$\mathcal{W}^{(1)}(\omega) = -2\omega\mathfrak{Im}(\chi^{(1)})|A|^2 = \omega\frac{I}{2nc}\chi^{''(1)} \tag{4.7}$$

l'intensité du faisceau étant reliée à l'amplitude du champ par $I = 2\epsilon_0 cn|A|^2$.

L'absorption linéaire dans le matériau n'est possible que si la partie imaginaire de la susceptibilité électrique est non-nulle.

4.1.3 Cas de l'Optique non-linéaire

Calcul au 2ème ordre

Nous étudions le processus $\omega_1+\omega_2 = \omega_3$. La polarisation induite s'écrit alors $P^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0\chi^{(2)})A(\omega_1)A(\omega_2)$. L'énergie absorbée par le milieu ne peut être prélevée que d'un champ oscillant à la fréquence ω_3 :

$$\mathcal{W}^{(2)}(\omega_3) = 2\omega_3\langle \mathrm{Im}(\epsilon_0\chi^{(2)}A^*(\omega_1)A^*(\omega_2)(A(\omega_)\rangle$$

Plusieurs remarques :

— Cette quantité peut être non nulle même si $\chi^{''2} = 0$. C'est alors la partie réelle de la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 qui contribue à l'absorption.

— Dans les milieux centro-symétriques, on rappelle que $\chi^{(2)} = 0$.

Pour un faisceau incident monochromatique à ω, la polarisation générée oscille soit à 2ω.

Au deuxième ordre, il ne peut donc pas y avoir d'absorption directe des photons du ou des faisceaux incidents. Il faut pousser le calcul à l'ordre suivant pour retrouver un processus d'absorption analogue à celui du premier ordre.

Calcul au 3ème ordre. Absorption à Deux Photons dégénérée

Le processus étudié est $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_4$, la polarisation s'écrit :

$$P^{(3)}(\omega_4) = \epsilon_0\chi^{(3)}A(\omega_1)A(\omega_2)A_(\omega_3)$$

$$\mathcal{W}^{(3)}(\omega_4) = 2\omega_4 \mathrm{Im}(\epsilon_0\chi^{(3)}A_1^*A_2^*A_3^*A_4)$$

Nous allons nous placer dans le cas d'un faisceau incident monochromatique à ω. Nous étudions alors l'effet Kerr optique, en écrivant $\omega = \omega - \omega + \omega$. La polarisation s'écrit :

$$P^{(3)}(\omega) = \epsilon_0\chi^{(3)}|A|^2A^*$$

Il est donc possible, grâce à l'effet Kerr, de générer au troisième ordre une polarisation oscillant à la même fréquence que le champ incident. Il va donc pouvoir y avoir échange d'énergie entre lumière et matière à cette fréquence, et donc potentiellement absorption. Nous réécrivons alors la densité de puissance optique absorbée :

$$\mathcal{W}^{(3)}(\omega) = 2\omega \mathrm{Im}(\epsilon_0 \chi^{(3)} |A|^4) = \omega \chi^{''(3)} \frac{I^2}{2\epsilon_0 c^2 n^2}$$

Elle n'est non nulle que si la partie imaginaire de $\chi^{(3)}$ est non-nulle.

Modification de l'indice complexe du milieu

Dans le milieu matériel, la polarisation $P(\omega)$ est la somme d'une polarisation linéaire $P^{(1)}(\omega)$ et d'une polarisation non-linéaire $P^{(3)}(\omega)$. Ceci peut se modéliser concrètement par l'introduction d'une susceptibilité linéaire effective, et la modification de l'indice optique à ω.

$$P(\omega) = \epsilon_0[\chi^{(1)}A + 3\chi^{(3)}|A|^2 A] = \epsilon_0[\chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|A|^2]A = \epsilon_0 \chi_{eff} A$$

L'indice complexe du milieu à ω s'écrit alors :

$$n^2 = 1 + \chi_{eff} = 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|A|^2 = n_0^2(1 + \frac{3\chi^{(3)}}{n_0^2})|A|^2)$$

$$n = n_0(1 + \frac{3\chi^{(3)}}{2n_0^2})|A|^2) = n_0 + n_2 I$$

où $n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$ est l'indice complexe linéaire du milieu et $n_2 = \frac{3\chi^{(3)}_{Kerr}}{4\epsilon_0 n_0^2 c}$ est la modification de l'indice due à l'Effet Kerr Optique. La partie réelle de $\chi^{(3)}$ est liée au phénomène d'auto-modulation de phase (modification de l'indice de réfraction du milieu), tandis que sa partie imaginaire, comme nous l'avons vu, est reliée à l'absorption à deux photons. L'indice linéaire peut très bien être purement réel (pas d'absorption linéaire) et l'indice non-linéaire être complexe (autorisant l'absorption non-linéaire).

Absorption à deux photons non-dégénérée

Dans les lignes qui vont suivre, nous considérons que le champ incident contient deux fréquences, ω_p et ω_s, et nous allons considérer un effet Kerr croisé. Deux processus sont étudiés : $\omega_p = \omega_s - \omega_s + \omega_p$ et le phénomène symétrique $\omega_s = \omega_p - \omega_p + \omega_s$. Il est possible de générer une polarisation oscillant à chacune des fréquences du rayonnement incident.

$$P^{(3)}(\omega_p) = 2\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_p)|A_s|^2 A_p$$

$$P^{(3)}(\omega_s) = 2\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_s)|A_p|^2 A_s$$

Il est donc possible d'observer de l'absorption aux deux fréquences ω_p et ω_s. Un photon de chaque faisceau est absorbé par processus réalisé. Ceci n'empêche bien sûr pas chacun des deux faisceaux de subir de l'absorption à deux photons dégénérée indépendamment de l'autre faisceau.

4.2 Coefficient d'absorption à deux photons

L'absorption peut également s'apprécier en analysant la perte d'énergie du faisceau incident au fur et à mesure de sa propagation.

On rappelle pour cela la forme de l'équation de propagation non linéaire dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$\frac{dA}{dz} = \frac{i\omega}{2\epsilon_0 cn}\vec{e}\cdot\overrightarrow{P^{NL}}\exp(i\Delta kz)$$

On a noté $\overrightarrow{P^{NL}}$ la Polarisation Non Linéaire Source associée à la génération de l'enveloppe notée A. L'exponentielle représente le désaccord de phase.

4.2.1 Absorption à deux photons dégénérée

Nous écrivons une seule équation qui correspond à l'enveloppe à ω_p. Comme nous étudions un effet Kerr, l'accord de phase est automatiquement vérifié ($\Delta k = (k-k+k)-k = 0$).

$$\frac{dA(\omega_p)}{dz} = \frac{i\omega_p}{2\epsilon_0 cn}\epsilon_0\chi^{(3)}|A|^2A$$

$$\frac{dI}{dz} = 2\epsilon_0 cn(A^*\frac{dA}{dz} + A\frac{dA^*}{dz})$$

Tous calculs faits nous obtenons :

$$\frac{dI_p}{dz} = -\frac{\omega_p}{2\epsilon_0 c^2 n^2}\chi^{''(3)}I^2$$

que nous réécrivons plus simplement :

$$\frac{dI_p}{dz} = -\beta I_p^2 \tag{4.8}$$

où β est le coefficient d'absorption à deux photons, que l'on exprime généralement en cm/GW. Cette grandeur est l'analogue du coefficient d'absorption linéaire α.

A partir de cette grandeur β, on peut déterminer $\chi^{''(3)}$, caractéristique du comportement au troisième ordre du milieu. Mais l'absorption est bien sûr directement reliée au taux de création de paires électron-trou dans le milieu. On peut donc écrire

$$\beta = \frac{\omega}{2\epsilon_0 c^2 n^2}\chi^{''(3)} = -2h\nu\frac{G_{vc}^{(2)}}{I^2} \tag{4.9}$$

Le coefficient d'absorption β est donc une grandeur préférentielle de travail, car elle permet de normaliser le taux de création de paires par l'intensité optique incidente.

4.2.2 Absorption à deux photons non dégénérée

Cette fois-ci, deux équations sont nécessaires, pour décrire le comportement de l'enveloppe à ω_p et celle à ω_s.

$$\frac{dA_p}{dz} = \frac{2i\omega_p}{2\epsilon_0 cn}\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_p)|A_s|^2 A_p$$

$$\frac{dA_s}{dz} = \frac{2i\omega_s}{2\epsilon_0 cn}\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_s)|A_p|^2 A_s$$

Et nous passons aux intensités pour obtenir :

$$\frac{dI_p}{dz} = -\frac{\omega_p}{\epsilon_0 c^2 n_p n_s}\chi''^{(3)}(\omega_p) I_p I_s$$

$$\frac{dI_s}{dz} = -\frac{\omega_s}{\epsilon_0 c^2 n_p n_s}\chi''^{(3)}(\omega_s) I_s I_p$$

Le raisonnement déjà utilisé au paragraphe précédent peut être prolongé. Mais la différence des deux tenseurs de susceptibilité non-linéaire va logiquement donner naissance à deux coefficients d'absorption différents.

$$\frac{dI_p}{dz} = -\beta(\omega_p, \omega_s) I_p I_s$$

$$\frac{dI_s}{dz} = -\beta(\omega_s, \omega_p) I_s I_p$$

Toutefois, le nombre d'événements d'absorption est unique, et affecte de manière identique les deux faisceaux : un photon est prélevé à chacun d'entre eux. Plutôt que de travailler avec deux grandeurs, on préfèrera utiliser un coefficient d'absorption symétrisé, qui effectuera un lien direct avec le taux de création de charges :

$$\beta^{sym}(\omega_p, \omega_s) = \frac{\beta(\omega_p, \omega_s)}{\hbar\omega_p} = \frac{\beta(\omega_s, \omega_p)}{\hbar\omega_s} \tag{4.10}$$

Et nous réécrivons les deux équations précédentes

$$\frac{dI_p}{dz} = -\hbar\omega_p \beta^{sym}(\omega_p, \omega_s) I_p I_s$$

$$\frac{dI_s}{dz} = -\hbar\omega_s \beta^{sym}(\omega_p, \omega_s) I_s I_p$$

4.2.3 Compétition avec la génération de second harmonique

La génération de second harmonique (SHG) est un processus non-linéaire du deuxième ordre. La SHG est un processus également utilisé dans des dispositifs de détection : elle

vise à générer des photons d'énergie $2\hbar\omega$ par somme de deux photons d'énergie $\hbar\omega$. L'énergie des photons créés est alors suffisante pour que ces derniers soient absorbés par le milieu actif, donc détectés.

Si la détection suit dans le cas de la SHG un processus en deux temps (génération, puis absorption), elle implique la destruction d'une paire de photons incidents, comme dans le cas de la 2PA. Ces deux techniques sont donc bien souvent comparées. Si la 2PA a l'avantage de la simplicité (aucun accord de phase n'est requis), on lui oppose son faible rendement : la SHG est un processus non-linéaire d'un ordre inférieur à la 2PA, donc plus efficace.

Je me propose ici de comparer l'efficacité de ces deux processus dans un cristal d'arséniure de gallium : c'est un matériau très apprécié pour la valeur de son coefficient $\chi^{(2)}$. On considère le cas d'une source de pompe autour de 1.55 μm.

On peut montrer que l'intensité générée de second harmonique peut prendre la forme [Rosencher 02] :

$$I_{SHG} \approx 2\left(\frac{Z_0}{n_{2\omega_p} n_{\omega_p}^2}\right)^3 (\omega_p \epsilon_0 d_{eff} L_{int})^2 \mathrm{sinc}^2 \frac{\Delta k L_{int}}{2} \left(\frac{I_{\omega_p}}{2}\right)^2 \tag{4.11}$$

où Z_0 est l'impédance du vide, d_{eff} est le coefficient non-linéaire effectif associé au processus, $n_{2\omega_p}$ l'indice de réfraction du cristal à la fréquence de pompe, L_{int} est la longueur d'interaction de l'onde avec le cristal, Δk le désaccord de phase.

Nous allons considérer que l'accord de phase est obtenu, et que tous les photons générés par somme de fréquence sont absorbés par le détecteur. Le taux d'événements d'absorption est donné par :

$$G^{(2)}_{SHG} \approx \frac{1}{4\hbar\omega_p}\left(\frac{Z_0}{n_{2\omega_p} n_{\omega_p}^2}\right)^3 (\omega_p \epsilon_0 d_{eff} L_{int})^2 \frac{P^2}{S} = \beta_{SHG} P^2 \frac{L}{S} \tag{4.12}$$

où l'on retrouve une dépendance quadratique en puissance incidente analogue à celle de la 2PA. Pour un coefficient d_{eff} autour de 100 pm/V et une longueur d'interaction de l'ordre du micron, le calcul aboutit à :

$$\beta_{SHG} \approx 10^9 \text{ cm.W}^{-2}\text{.s}^{-1} \tag{4.13}$$

Ce qui est inférieur à presque deux ordres de grandeur à l'efficacité associée à la TPA, $\alpha_{TPA} = 1.717 \times 10^{11}$ cm.W^{-2}.s^{-1}, à $\lambda = 1.55$ μm et $L_{int} = 1$ μm.

La clé de la compétition entre les deux processus se joue sur la contrainte de l'accord de phase pour la SHG. Même réalisé, cet accord nécessite une grande longueur d'interaction pour une onde doublée en fréquence puisse émerger. Or, dans les dispositifs de

détection que nous utiliserons, cette longueur d'interaction ne dépassera pas quelques λ de dimension. Seules d'autres techniques, comme le retournement périodique de cristaux, sont à même de maintenir la cohérence entre onde génératrice et onde générée sur des distances suffisamment grandes. Nous négligerons donc l'absorption par SHG dans le reste de ce travail.

Si la SHG n'a qu'une influence faible dans notre situation, les processus de conversion d'un signal infrarouge vers des fréquences optiques plus élevées, dits processus d'upconversion, à des fins d'absorption et de détection est une des autres stratégies basées sur l'optique non-linéaire et permettant d'exploiter des matériaux à gap visible pour la détection IR. Ainsi, il est possible d'utiliser une matrice CCD standard pour imager un rayonnement converti issu d'une source thermique à l'aide d'un cristal de KTP périodiquement retourné et d'une source de pompe bien choisie [Dam 10]. Pour conclure, la compétition entre SHG et absorption à deux photons a été le sujet d'un débat concernant la bande spectrale de détection de l'œil humain. Alors qu'elle est généralement comprise entre 400 nm et 720 nm, il a été démontré que l'œil humain peut percevoir le proche infrarouge, au moins jusqu'à 1200 nm. Le processus à l'origine de cette performance présentait une dépendance quadratique en intensité, comme la SHG ou l'absorption à deux photons. Une étude a pu démontrer que le mécanisme impliqué est l'isomérisation par des paires de photons de pigments visuels, écartant la SHG comme potentielle contribution à cette perception [Palczewska 14].

4.3 Anisotropie

Le calcul du taux de création de charges mené entre deux bandes paraboliques a l'avantage de la simplicité mais possède un inconvénient : il fait disparaître toute influence de la direction de polarisation vis-à-vis de l'amplitude de la 2PA. Il faudrait en effet prendre en compte de manière plus détaillée les différents éléments de matrice décrivant les transitions entre les différentes sous-bandes respectives de la bande de valence et de conduction pour mettre en lumière ce point.

L'optique non-linéaire permet de retrouver ces résultats de manière sensiblement plus directe, en basant son approche sur la symétrie du cristal étudié et sur la forme du tenseur de susceptibilité non-linéaire qui en découle.

4.3.1 Expression de la polarisation non-linéaire

Nous pouvons écrire de manière la plus générale possible la polarisation non-linéaire d'ordre 3 :

$$P_i^{(3)}(\omega) = \sum_{jkl} \sum_{pqr} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega; \omega_p, \omega_q, \omega_r) E_j(\omega_p) E_k(\omega_q) E_l(\omega_r) \tag{4.14}$$

Dans cette équation, les indices i,j,k,l peuvent prendre les valeurs x,y,z qui sont associées aux axes principaux du cristal. Malheureusement, cette écriture ne permet pas de tenir compte facilement de la polarisation incidente sur le cristal (il faudrait décomposer les vecteurs décrivant la polarisation sur la base des axes principaux). Dvorak (voir la référence [Dvorak 94]) propose alors de basculer dans un repère lié aux polarisations incidentes et de sortie :

$$P_a^{(3)}(\omega) = \sum_{ijkl}\sum_{pqr} \chi^{(3)}_{ijkl}(\omega;\omega_p,\omega_q,\omega_r) a_i^* b_j c_k d_l E_b(\omega_p) E_c(\omega_q) E_d(\omega_r) \tag{4.15}$$

où les u_v représentent les produits scalaires $\vec{u}\cdot\vec{v}$ des polarisations des champs sur les axes principaux du cristal.

Pour des matériaux isotropes (Si) ou de classe $\bar{4}3m$ (GaAs) (symétries cubiques en général), il n'y a que 4 éléments indépendants sur les 21 non-nuls qui composent le tenseur d'ordre 3. Ces éléments sont de la forme χ_{iiii}, χ_{ijji}, χ_{ijij} et χ_{iijj}.

On définit alors un coefficient d'anisotropie :

$$\sigma = \frac{\chi_{xxxx} - (\chi_{xxyy} + \chi_{xyxy} + \chi_{xyyx})}{\chi_{xxxx}}$$

Pour un matériau isotrope, le coefficient diagonal est égal à la somme des éléments non-diagonaux et ce coefficient est par conséquent égal à 0.

$$P_a^{(3)}(\omega) = \sum_{ij}[\chi_{iijj} a_i^* b_i c_j d_j + \chi_{ijji} a_i^* b_j c_j d_i + \chi_{ijij} a_i^* b_j c_i d_j + \chi_{iiii} a_i^* b_i c_i d_i] \sum_{pqr} E_b(\omega_p) E_c(\omega_q) E_d(\omega_r) \tag{4.16}$$

En regroupant les coefficients u_v deux à deux et en tenant compte des symétries, on écrit :

$$\chi^{eff} = \chi_{xxyy}(\vec{a^*}\cdot\vec{b})(\vec{c}\cdot\vec{d}) + \chi_{xyyx}(\vec{a^*}\cdot\vec{d})(\vec{b}\cdot\vec{c}) + \chi_{xyxy}(\vec{a^*}\cdot\vec{c})(\vec{b}\cdot\vec{d}) + \sigma\chi_{xxxx}\sum_i a_i^* b_i c_i d_i \tag{4.17}$$

$$P_a^{(3)} = \epsilon_0 \sum_{pqr} \chi^{eff}(\omega;\omega_p,\omega_q,\omega_r) E_b(\omega_p) E_c(\omega_q) E_d(\omega_r) \tag{4.18}$$

Ces résultats sont valides pour les symétries cubiques ou isotropes, avec ou sans dégénérescence.

4.3.2 Quelques résultats

Absorption à deux photons dégénérée

Il n'existe qu'une seule fréquence ω et qu'une seule polarisation, $\vec{p}$. Le processus étudié est de la forme : $\omega = -\omega + \omega + \omega$.

Matériaux	Polarisation	Coefficient 2PA β
Isotrope : $\sigma = 0$	Linéaire : $\|\vec{p}\|$	$\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}$
	Circulaire	$\frac{3\omega}{n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}$
Cubique anisotrope : $\sigma \neq 0$		
Axe du cristal : [001] ; $\vec{d} = [100]$	Linéaire	$\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}(1 - \frac{\sigma}{2}\sin^2(2\theta))$
Axe du cristal : [110] ; $\vec{d} = [001]$	Linéaire	$\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}(1 - \frac{\sigma}{2}\sin^2(\theta)(1 + 3\cos^2(\theta)))$
Axe du cristal : [111]	Linéaire	$\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}(1 - \frac{\sigma}{2})$

En tenant compte des différentes simplifications par permutation, la polarisation non linéaire d'ordre 3 s'écrit :

$$\vec{P^{(3)}} = 3\epsilon_0\chi^{eff}(\omega; -\omega, \omega, \omega)|E(\omega)|^2E(\omega)$$

Dans notre configuration : $\vec{b} = \vec{p^*}$, $\vec{c} = \vec{p}$ et $\vec{d} = \vec{p}$.

$$\chi^{eff} = \chi_{xxyy}|\vec{p}\cdot\vec{p}|^2 + 2\chi_{xyyx} + \sigma\chi_{xxxx}\sum_i |p_i|^4$$

En réutilisant les résultats de la section précédente, nous obtenons le coefficient d'absorption à deux photons dégénérée dans le cas général :

$$\beta = -\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}(\mathrm{Im}\,\chi_{xxyy}|\vec{p}\cdot\vec{p}|^2 + 2\,\mathrm{Im}\,\chi_{xyyx} + \sigma\,\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}\sum_i |p_i|^4)$$

On gardera en tête que $\vec{p}$ est un vecteur complexe de norme unité ($\vec{p}\cdot\vec{p^*} = 1$).

Suppression de la SHG

L'Arséniure de Gallium est un cristal anisotrope de symétrie cubique, de classe $\overline{4}3m$.

Nous supposons que le cristal est coupé selon le plan [100]. La normale à ce plan est donc la direction (100), direction de propagation de notre onde incidente (en première approximation). En ce sens, nous pouvons écrire la forme de polarisation incidente (en la supposant linéaire :

$$\vec{p} = (0, cos\theta, sin\theta)$$

On s'intéresse à un processus d'ordre 2 :

$$\vec{P}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2)\vec{E}(\omega_1)\vec{E}(\omega_2)$$

On a fait apparaître le tenseur de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2, dont on notera les coefficients χ_{ijk}. Dans le cas de la génération de second harmonique, les deux champs électriques mises en jeu par le processus non-linéaire sont bien sûr identiques. Le processus étudié s'écrit :

$$\vec{P}(2\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(-2\omega;\omega,\omega)\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)$$

Ceci autorise la permutation des deux derniers indices des susceptibilités non linéaires d'ordre 2 : $\chi_{ijk} = \chi_{ikj}$. On peut alors utiliser une notation contractée du tenseur de susceptibilité non-linéaire.

Les matériaux de la classe $\overline{4}3m$ ont un tenseur de susceptibilité non linéaire d'ordre 2 contracté à trois coefficients non-nuls, tous égaux entre eux :

$$\begin{pmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{pmatrix}$$

La notation E_x désigne par exemple la projection du vecteur champ électrique $\vec{E}(\omega)$ sur l'axe x du cristal (direction (100)). La polarisation incidente $\vec{p}$ n'a pas de composante selon x. En conséquence, $E_x(\omega)$ est nul. Le seul terme potentiellement non nul est donné par :

$$P_x(2\omega) = 2d_{14}E_y(\omega)E_z(\omega) = 2d_{14}E^2(\omega)(\cos\theta\sin\theta) = d_{14}E^2(\omega)\sin(2\theta)$$

On note maintenant $E(\omega,z) = A_\omega(z)e^{-ikz}$. Dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable, et en supposant l'accord de phase vérifié, l'équation d'onde s'écrit :

$$\frac{dA_{2\omega}(z)}{dz} = \frac{i\omega d_{14}\sin(2\theta)}{n_{2\omega}c}A_\omega^2(z)$$

En négligeant la déplétion de la pompe, on intègre la relation précédente sur une longueur d'interaction l. A l'entrée du matériau, il n'y a pas de signal SHG : $A_{2\omega}(0) = 0$.

$$A_{2\omega}(l) = \frac{i\omega d_{14}\sin(2\theta)}{n_{2\omega}c}lA_\omega^2$$

Et l'intensité $I = 2nc|A|^2$ s'écrit alors :

$$I_{2\omega}(l) = \frac{\omega^2 d_{14}^2\sin^2(2\theta)}{n_{2\omega}n_\omega^2 c^3\epsilon_0}l^2 I_\omega^2$$

Pour un angle θ variant de 0 à π, on atteint deux minima, correspondant aux directions de polarisation y et z. De même, deux maxima sont atteints, pour les directions

situées à 45 degrés entre ces deux mêmes axes. D'autre part, le coefficient d'absorption à deux photons s'écrit :

$$\beta = -\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}(1-\sigma+\sigma-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\theta)) = -\frac{3\omega}{2n^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\theta))$$

En choisissant $\theta = 0$ (polarisation selon l'axe y), on annule la SHG et le coefficient d'absorption à deux photons devient :

$$\beta_{pp} = -\frac{3\omega}{2n_p^2c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}\,\chi_{xxxx}$$

qui est également le coefficient maximal que l'on puisse espérer pour la D-2PA.

Absorption à deux photons non-dégénérée

Dans cette partie, on considère deux faisceaux : un faisceau pompe (dont toutes les caractéristiques seront indexées par la lettre p), et un faisceau sonde (respectivement la lettre s). Le phénomène étudié est $\omega_s = -\omega_p + \omega_p + \omega_s$.

Les symétries de permutation intrinsèques amènent à l'introduction d'un facteur de dégénérescence de valeur 6 (on étudie ici 3 champs distincts). Pas de problème d'accord de phase, puisque nous avons affaire à un effet Kerr croisé.

$$\chi^{eff} = \chi_{xxyy}|\vec{s}\cdot\vec{p}|^2 + \chi_{xyyx} + \chi_{xyxy}|\vec{s}\cdot\vec{p^*}|^2 + \sigma\chi_{xxxx}\sum_i |p_i s_i|^2 \tag{4.19}$$

$$\overrightarrow{P^{(3)}}(\omega_s) = 6\epsilon_0\chi^{eff}(\omega_s;-\omega_p,\omega_p,\omega_s)|E(\omega_p)|^2E(\omega_s)$$

On obtient le coefficient d'absorption de manière analogue au cas dégénéré :

$$\beta_{sp} = \frac{3\omega_s}{n_s n_p c^2\epsilon_0}\mathrm{Im}[\chi_{xxyy}|\vec{s}\cdot\vec{p}|^2 + \chi_{xyyx} + \chi_{xyxy}|\vec{s}\cdot\vec{p^*}|^2 + \sigma\chi_{xxxx}\sum_i |p_i s_i|^2]$$

En considérant la pompe polarisée selon l'axe y, on présente dans le tableau suivant les coefficients attendus en situation non-dégénérée :

Matériaux	Polarisation	Coefficient 2PA β
Isotrope : $\sigma = 0$	Linéaires $\parallel$	$\frac{3\omega_s}{n_s n_p c^2 \epsilon_0} \mathrm{Im}\chi_{xxxx}$
	Linéaires $\perp$	$\frac{3\omega_s}{n_s n_p c^2 \epsilon_0} \mathrm{Im}\chi_{xyyx}$
Cubique anisotrope : $\sigma \neq 0$		
Axe du cristal : $[001]$; $\vec{d} = [100]$	Linéaires $\parallel$	$\frac{3\omega_s}{2n_s n_p c^2 \epsilon_0} \mathrm{Im}\chi_{xxxx}$
Axe du cristal : $[001]$; $\vec{d} = [100]$	Linéaires $\perp$	$\frac{3\omega_s}{2n_s n_p c^2 \epsilon_0} \mathrm{Im}\chi_{xyyx}$

4.4 Bruit de détection à deux photons

Les sections précédentes ont présenté quelques propriétés du signal de détection à deux photons, au sens de sa dépendance en puissance incidente et en polarisation. Nous nous intéressons désormais à l'autre composante de la problématique de détection : le bruit et les fluctuations associées à la génération d'un photocourant à deux photons.

4.4.1 Bruit et statistique

Le bruit se superposant au signal de détection peut avoir plusieurs origines, qu'on a déjà évoquées dans un chapitre précédent de cette thèse : bruit de résistance, bruit technologique, bruit de grenaille... Nous nous intéresserons ici exclusivement à cette dernière contribution, qui est la seule directement liée à l'interaction entre la lumière et le détecteur.

Dans le cas linéaire, la statistique d'arrivée des photons n'a pas vraiment d'influence sur le niveau de signal : les photons sont à considérer individuellement, et possèdent une certaine probabilité d'être absorbés indépendamment de tous les autres. Dans la configuration à deux photons, le problème est tout autre : en effet, le signal est particulièrement sensible au confinement temporel des photons. Plus ces derniers forment de paires rapprochées, plus le signal est important. Ceci se visualise par la proportionnalité du taux d'absorption à deux photons au carré de la puissance optique incidente.

Cette remarque fait donc émerger que dans le cas non-linéaire, la statistique des photons a une influence à la fois sur le signal et sur le bruit qui s'y superpose. Le but des prochains paragraphes est d'explorer ces effets.

4.4.2 Une approche corpusculaire

Absorption dégénérée

En premier lieu, nous pouvons essayer de décrire l'absorption à deux photons de la manière suivante : un flux de photons ϕ [s^{-1}] arrive aléatoirement sur le détecteur, selon

une statistique poissonienne $N_p(t)$. Il y a décompte d'une paire de photons si au moins deux photons atteignent le détecteur dans un délai inférieur à une durée τ associée à la durée de vie de la transition virtuelle.

Soient $T_1 < ... < T_i < ...$ les temps successifs d'arrivée des photons sur le détecteur. Les T_i sont des variables aléatoires. Nous introduisons les variables aléatoires $D_i = T_i - T_{i-1}$, qui représentent la suite des durées entre deux événements consécutifs. Ce sont des variables indépendantes, elles ont pour distribution une loi exponentielle de moyenne $\frac{1}{\phi}$: c'est en effet la loi décrivant un processus "sans mémoire", traduisant l'arrivée aléatoire des photons.

On considère l'événement $D_i < \tau$, soit celui désignant l'arrivée de deux photons successifs dans un délai inférieur à τ. On construit la variable X_i, qui vaut 1 si cet événement est réalisé. Comme les D_i suivent une loi exponentielle, on connaît la moyenne de cette variable aléatoire :

$$\langle X_i \rangle = 1 - \exp(-\phi\tau) \tag{4.20}$$

On s'intéresse désormais au nombre moyen d'occurrences de ces événements dans un intervalle de temps plus grand, $[0, T]$. On construit donc une nouvelle variable :

$$X_T = \sum_{i=1}^{N_p(T)} X_i \tag{4.21}$$

dont on calcule la moyenne. On calcule donc la moyenne de la somme des X_i pour chaque réalisation du processus sur l'intervalle $[0, T]$, chaque réalisation apportant un nombre aléatoire k de photons susceptibles de former des paires.

$$\bar{X_T} = \sum_{i=1}^{N(T)} X_i = \sum_{k>0} (\bar{(\sum_{i=1}^{k} X_i | N(T) = k)}) P(N(T) = k) \tag{4.22}$$

Comme le processus $N_p(t)$ est poissonien,

$$\bar{X_T} = \sum_{k>0} k\bar{X_i} \frac{(\phi T)^k}{k!} e^{-\phi T} = e^{-\phi T}(1 - e^{-\phi T}) \sum_{k>0} k \frac{(\phi T)^k}{k!} \tag{4.23}$$

$$\bar{X_T} = \phi T e^{-\phi T}(1 - e^{-\phi T}) \sum_{k>1} \frac{(\phi T)^{k-1}}{(k-1)!} = \phi T(1 - e^{-\phi T}) \approx (\phi T)^2 \tag{4.24}$$

La dépendance quadratique en flux n'est vérifiée ici que pour $\phi T \ll 1$, soit lorsque le nombre de paires formées dans un intervalle τ est soit 0, soit 1. Pour généraliser le résultat, il faut tenir compte des situations où plus de 2 photons arrivent sur le détecteur dans un intervalle τ.

Il faut donc comparer un photon non pas seulement avec son précédent, mais avec

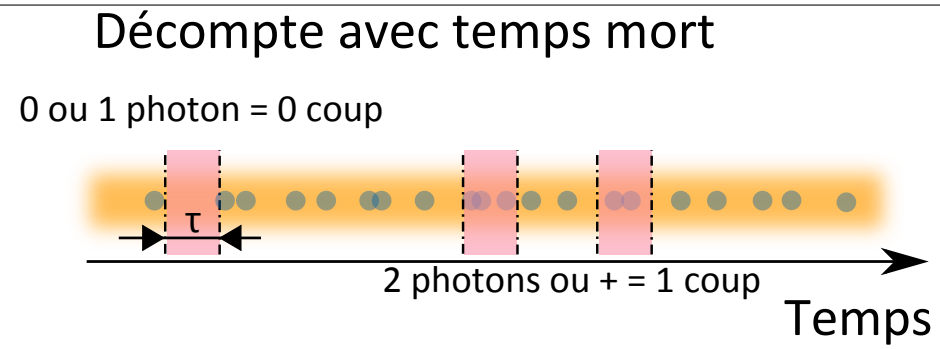


FIGURE 4.1 – Une première approche corpusculaire de décompte. On compte un coup si au moins deux photons arrivent dans un délai τ. Le délai τ représente le temps mort du détecteur : si trois photons (deux paires possibles) arrivent sur le détecteur, seul un coup est compté.

tous les autres, et dénombrer effectivement le nombre de situations où $t_i - t_j < \tau$. On considère donc cette fois une nouvelle variable $C_i(\tau)$ qui compte le nombre de photons précédant le photon i d'un délai inférieur à τ. Le nombre total de paires recherchées est donc :

$$C(\tau) = \sum_{i=1}^{N_p(T)} C_i(\tau) \tag{4.25}$$

dont nous recherchons l'espérance :

$$\langle C(\tau)\rangle = \langle \sum_{i=1}^{N_p(T)} C_i(\tau)\rangle = \sum_{k>0} P(N_p(T)=k) \sum_{i=1}^{k} \langle C_i(\tau)\rangle \tag{4.26}$$

Les variables C_i sont indépendantes et identiques : elles comptent le nombre de photons présents dans un délai τ précédant la date t_i. Comme l'arrivée des photons suit un flux poissonien (les dates d'arrivée suivent un processus sans mémoire), ces différentes variables suivent également une loi poissonienne. Ainsi :

$$\langle \sum_{i=1}^{k} M_i(\tau)\rangle = k\langle M_i(\tau)\rangle = k \sum_{j>0} j \frac{(\phi\tau)^j}{j!} e^{-\phi\tau} \tag{4.27}$$

En poursuivant le calcul initial :

$$\langle C(\tau)\rangle = \sum_{k>0} P(N_p(T)=k) k \sum_{j>0} j \frac{(\phi\tau)^j}{j!} e^{-\phi\tau} = \phi^2 \tau T \tag{4.28}$$

le processus $N_p(T)$ étant également poissonien. On retrouve donc bien la loi quadratique en flux attendue pour l'absorption à deux photons, mais également la dépendance

linéaire en temps d'intégration et en durée de vie de l'état virtuel. On remarquera que le résultat est le produit de la moyenne de deux processus poissoniens, le premier de paramètre ϕT, s'intéressant à la distribution des photons dans l'intervalle $[0, T]$, le second de paramètre $\phi\tau$, permettant de relever les photons contenus dans un délai τ.

On peut donc déduire très rapidement le résultat concernant les fluctuations : la variance ΔC de la variable $C(\tau)$ est le produit des variances des processus poissoniens identifiés précédemment, variances qui sont par définition égales à leurs moyennes :

$$\Delta C = \phi^2 \tau T \tag{4.29}$$

On trouve alors en toute simplicité que le rapport signal à bruit, quotient de la moyenne du processus sur son écart type, est égal à :

$$RSB_{corp.} = \frac{\phi^2 \tau T}{\phi\sqrt{\tau T}} = \phi\sqrt{\tau T} \tag{4.30}$$

Le terme T représente le temps d'intégration du détecteur. On peut le relier à la bande passante du détecteur Δf par la relation $T = \frac{1}{2\Delta f}$. Au sein de notre calcul, il représente une variable « externe »aux considérations de statistique de photons. Nous « renormaliserons »donc les expressions du rapport signal à bruit en éliminant les termes en T, ce qui revient à multiplier le rapport précédemment obtenu par la bande passante du système, à un terme multiplicatif près :

$$RSB_{corp}^{norm} = \phi\sqrt{\tau} \tag{4.31}$$

Ce premier modèle simpliste permet de mettre en avant des informations intéressantes : le RSB associé à la détection dégénérée évolue linéairement avec le flux incident, et augmente également avec le temps de vie du niveau virtuel.

Absorption non-dégénérée

Le modèle précédent peut être facilement étendu au cas de l'absorption non-dégénérée. On considère donc cette fois deux sources de photons, dont l'émission est régie par des processus poissoniens. Ces sources délivrent un flux moyen de photons ϕ_p pour la pompe et ϕ_s pour le signal.

Les variables $C_i(\tau)$ comptent cette fois le nombre de photons signal qui précèdent un photon pompe d'un délai inférieur à τ_{sp} caractéristique du niveau de vie virtuel. On recherche le nombre moyen de paires formées ainsi. Comme les sources sont indépendantes, et les processus respectifs $N_p(T)$ et $N_s(\tau_{sp})$ sont poissoniens, on arrive rapidement à :

$$\langle C(\tau) \rangle = \phi_s \phi_p \tau_{sp} T \tag{4.32}$$

Le signal dépend linéairement des flux pompe et signal. A noter que le rôle des deux

sources est parfaitement symétrique, et l'on aurait pu considérer de manière absolument identique les processus $N_p(\tau)$ et $N_s(T)$. Pour étendre le résultat au RSB, nous devons tenir compte cette fois du fait que l'absorption non-dégénérée ne peut se faire sans l'absorption dégénérée. Si le niveau d'absorption dégénérée ne représente qu'un signal d'offset, le bruit associé à cette contribution peut être considéré comme indépendant, mais doit être ajouté aux fluctuations du signal d'absorption non-dégénérée :

$$\Delta C_{sp} = \phi_p^2 \tau_{pp} T + \phi_s \phi_p \tau_{sp} T \tag{4.33}$$

où τ_{pp} représente la durée de vie caractéristique du niveau virtuel pour la D-2PA. On note $\tau_{pp} = \frac{\omega_s^2}{\omega_p^2}\tau_{sp}$: une manière raisonnable de faire intervenir la relation d'Heisenberg entre la durée de vie de l'état virtuel et les énergies misent en jeu lors de la transition. On en déduit le RSB, normalisé par rapport à la bande passante :

$$RSB_{sp}^{norm} = \frac{\frac{\omega_p^2}{\omega_s^2}\phi_s\sqrt{\phi_p \tau_{pp}}}{\sqrt{\phi_p + \frac{\omega_p^2}{\omega_s^2}\phi_s}} \tag{4.34}$$

Limites du pompage

Faisons varier l'intensité de pompage : quand elle croît, le RSB croît également. Cependant, on remarque que pour des niveaux de pompe très intenses ($\phi_p >> \frac{\omega_p^2}{\omega_s^2}\phi_s$), le RSB atteint un maximum :

$$RSB_{sp}^{max} = \frac{\omega_p^2}{\omega_s^2}\phi_s\sqrt{\tau_{pp}} \tag{4.35}$$

Le RSB évolue alors linéairement avec la puissance du signal tant que l'approximation est valable. Le bruit est alors dominé par les fluctuations de l'absorption dégénérée. A caractéristiques du signal fixées, il n'est plus intéressant de pomper davantage. A noter que ce modèle ne prend pas en compte l'apparition de processus autres que les transitions à deux photons, et qui seraient susceptibles de perturber la détection à haut niveau de pompe.

4.4.3 Une approche semi-classique

Nous avons déjà développé quelques aspects de l'approche semi-classique pour l'absorption à deux photons : si elle nous a permis d'en tirer un taux de générations de charges, c'est à dire un niveau de signal, il n'a pas encore été question des fluctuations des champs incidents, qui sont la source d'un bruit de détection. Jusqu'ici, les transitions électroniques ont été de fait considérées comme purement aléatoires. Nous allons reprendre cette approche en introduisant la dépendance temporelle aux champs excita-

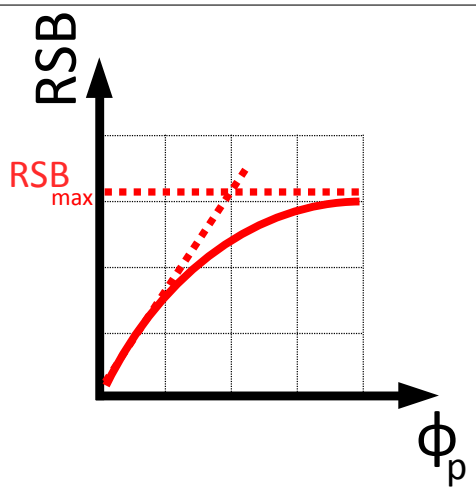


FIGURE 4.2 – Comportement du RSB en fonction du flux de pompe. Le RSB sature lorsque le bruit de l'absorption dégénérée domine.

teurs afin de répondre à cette interrogation.

Le problème a été traité en grande partie par Teich et Diament [Teich 69], dont nous présentons ici les principaux résultats, et les adaptons à la configuration non-dégénérée.

Absorption dégénérée

On considère un faisceau de lumière monochromatique, polarisé linéairement, réparti uniformément sur un détecteur à deux photons. Nous savons que la probabilité par unité de temps de générer une charge par absorption d'une paire de photons est reliée à la quantité $\beta\phi_p^2(t)$ où $\phi_p(t)$ est le flux « instantané »du faisceau, soit le produit du champ électrique par son complexe conjugué à la date t : il s'agit d'une conséquence de la seconde règle d'or de Fermi.

Nous allons considérer que l'émission des photoélectrons dans un intervalle infinitésimal de temps est indépendant de ce qu'il se passe à d'autres dates, ce qui caractérise un processus poissonien. On peut donc écrire la probabilité d'émission de n photoélectrons dans l'intervalle $[t, t+T]$ comme :

$$p(n,t,T) = \langle \frac{\phi_e^n}{n!} e^{-n} \rangle \tag{4.36}$$

où ϕ_e, paramètre du processus poissonien précédent, est le nombre moyen de photoélectrons émis pendant le délai T, soit :

$$\phi_e = \int_t^{t+T} \beta\phi_p^2(t')dt' \tag{4.37}$$

On note que ϕ_p est une grandeur aléatoire : les crochets représentent la moyenne d'ensemble qui va intégrer les fluctuations de l'intensité de la source. Ceci fait apparaître que dans le cas de la détection à deux photons, la variance des fluctuations d'intensité (terme en $\langle\phi_p^2\rangle$) contribue effectivement au niveau de détection, alors que seule la moyenne intervient dans les calculs à un photon (terme en $\langle\phi_p\rangle$).

Nous allons faire plusieurs hypothèses pour simplifier le problème :

— Tout d'abord nous allons supposer que l'intensité est représentée par un processus stationnaire et ergodique. Ainsi, $p(n,t,T)$ est indépendant de t, et on écrira désormais $p(n,T)$.

— Ensuite, nous allons considérer que le temps d'intégration T de notre détecteur est très grand devant le temps caractéristique des fluctuations d'intensité de la source. C'est tout à fait vérifié en pratique, ces fluctuations ayant des temps de corrélation de l'ordre de la picoseconde et en-deçà, à comparer avec les temps de réponse du détecteur souvent supérieurs à la nanoseconde, et les temps d'intégration supérieurs à la microseconde.

L'expression de ϕ_e fait apparaître alors la moyenne $\langle\phi_p^2\rangle$ de l'intensité au carré de la source, moyenne au sens temporel comme d'ensemble en vertu de l'hyptohèse d'ergodicité. Il reste à sommer sur la distribution d'intensité de la source, ce qui se traduit par l'expression :

$$p(n,T) = \frac{(\beta T)^n}{n!}\int_0^\infty \langle\phi_p^2\rangle^n \exp(-\beta T\langle\phi_p^2\rangle)P(\phi_p)d\phi_p \tag{4.38}$$

où $P(\phi_p)$ est la densité de la probabilité associée à l'intensité ϕ_p de la lumière. L'expression précédente montre que dans le cas des grands T, la distribution des intensités n'a aucune importance ! Quelle que soit la source, nous aboutissons à un processus de détection poissonien de paramètre $\beta\langle\phi_p^2\rangle T$:

$$p(n,T) = e^{-\beta\langle\phi_p^2\rangle T}\frac{(\beta\langle\phi_p^2\rangle T)^n}{n!} \tag{4.39}$$

dont nous connaissons la moyenne et la variance :

$$\langle n\rangle = \Delta n^2 = \beta\langle\phi_p^2\rangle T \tag{4.40}$$

On en déduit sans mal un rapport signal à bruit normalisé :

$$RSB_{pp}^{s.c.} = \sqrt{\beta\langle\phi_p^2\rangle} \tag{4.41}$$

Nous retrouvons bien les résultats de la première approche corpusculaire, qui avait aussi abouti à une distribution poissonienne des événements de comptage. Le terme $\sqrt{\beta}$ est à rapprocher du temps τ utilisé précédemment : il représente l'efficacité quantique du processus à deux photons.

Toutefois, une information intéressante émerge du second terme. Alors que le terme $\langle \phi_p^2 \rangle$ ne pouvait être compris que comme le carré de la moyenne du flux de photons dans le premier cas, il faut le comprendre différemment dans l'approche semi-classique. En effet :

$$\langle \phi_p^2 \rangle = \Delta\phi_p^2 + \langle \phi_p \rangle^2 \tag{4.42}$$

L'efficacité de la détection à deux photons est donc la somme de deux contributions : l'une est purement liée au niveau moyen de l'intensité de la source, la seconde est liée à la variance de la source : plus cette dernière est élevée, plus le niveau de signal augmente.

Cependant, si la statistique de détection des paires est poisonnienne, il n'y a aucune raison que la statistique d'émission des photons par la source le soit, et à niveau moyen d'intensité donné, les fluctuations en intensité peuvent être différentes d'une source à l'autre.

Absorption non-dégénérée

Nous appliquons le formalisme précédent au cas de deux sources de photons, dont les intensités ϕ_p et ϕ_s permettent d'écrire que le taux d'absorption de paires de photons par unité de temps est $\beta_{sp}\phi_s(t)\phi_p(t)$.

En nous plaçant dans les mêmes approximations (ergodicité, stationnarité, indépendance des événements de détection), on conviendra que le comptage des paires suit une distribution poissonienne dont le paramètre est donné par $\beta_{sp}\langle \phi_s\phi_p \rangle T$. Les deux sources étant indépendantes :

$$\langle \phi_s\phi_p \rangle = \langle \phi_s \rangle \langle \phi_p \rangle \tag{4.43}$$

On en déduit la moyenne de paires non-dégénérées détectées, ainsi que la variance de cette statistique :

$$\langle n_{sp} \rangle = \Delta n_{sp}^2 = \beta \langle \phi_s \rangle \langle \phi_p \rangle T \tag{4.44}$$

Seule la moyenne des deux flux incidents est importante ici, et en aucun cas leurs fluctuations respectives. Ceci peut se comprendre simplement en considérant que le regroupement temporel de photons d'une source n'a aucune influence si un photon de l'autre source n'est pas présent pour participer à la transition à deux photons. Pour exprimer un rapport signal sur bruit, il faut tenir compte de l'influence des fluctuations du décompte des paires dégénérées :

$$RSB_{sp} = \frac{\langle n_{sp} \rangle}{\sqrt{\Delta n_{pp}^2 + \Delta n_{sp}^2}} \tag{4.45}$$

$$RSB_{sp} = \frac{\beta_{sp}\langle\phi_s\rangle\langle\phi_p\rangle}{\sqrt{\beta_{pp}\langle\phi_p^2\rangle} + \beta_{sp}\langle\phi_s\rangle\langle\phi_p\rangle} \tag{4.46}$$

En se plaçant dans l'hypothèse d'un pompage fort, on obtient :

$$RSB_{sp} = \frac{\beta_{sp}\langle\phi_s\rangle\langle\phi_p\rangle}{\sqrt{\beta_{pp}\langle\phi_p^2\rangle}} \tag{4.47}$$

que l'on peut réécrire :

$$RSB_{sp} = \langle\phi_s\rangle\frac{\beta_{sp}}{\beta_{pp}}\sqrt{\frac{\langle\phi_p\rangle^2}{\langle\phi_p^2\rangle}} \tag{4.48}$$

Le signal n'influe sur le RSB que par le biais de sa valeur moyenne $\langle\phi_s\rangle$: la statistique d'émission des photons de la source est sans importance. A niveau de signal fixé, on cherchera donc à maximiser le terme $\sqrt{\frac{\langle\phi_p\rangle^2}{\langle\phi_p^2\rangle}}$, en remarquant que son dénominateur $\langle\phi_p^2\rangle$ est lié aux fluctuations de la pompe.

Le problème de la maximisation du RSB associé à l'absorption non-dégénérée est donc intimement lié au problème de la statistique d'émission des photons de la pompe : l'idée est de limiter le signal dégénéré (en réduisant $\langle\phi_p^2\rangle$) sans toucher au niveau d'intensité de pompe $\langle\phi_p\rangle$, qu'il est nécessaire de maintenir haut pour maximiser le signal non-dégénéré.

4.4.4 Quelques considérations sur la statistique de pompe

Cas du corps noir

Un corps noir est une source incohérente : l'émission de photons est due à la somme des contributions d'émetteurs individuels - des atomes -, qui, à une fréquence commune, fournissent un champ électromagnétique dont la phase est aléatoire et indépendante de celle des autres émetteurs.

Le champ électrique est donc la somme des contributions de ces m atomes indépendants :

$$\begin{aligned} F(t) &= F_1(t) + F_2(t) + ... + F_m(t) \\ &= F_0 e^{-i\omega_p t}\left(e^{i\phi_1(t)} + e^{i\phi_2(t)} + ... + e^{i\phi_m(t)}\right) \\ &= F_0 e^{-i\omega_p t}\left(\sum_{k=1}^{m} e^{i\phi_k(t)}\right) \end{aligned} \tag{4.49}$$

où les $\phi_k(t)$ sont des phases aléatoires et indépendantes. Calculons la valeur moyenne

du carré de l'intensité :

$$\langle I^2(t)\rangle = \langle F^{*2}(t)F^2(t)\rangle = F_0^4\langle\left|\sum_{k=1}^{m} e^{i\phi_k(t)}\right|^4\rangle \tag{4.50}$$

Dans l'expression précédente, les seuls termes ne s'annulant pas sont les termes conjugués. Ils se décomposent en deux sommes :

$$\langle I^2(t)\rangle = F_0^4\left(\sum_{k=1}^{m}\langle\left|e^{i\phi_k(t)}\right|^4\rangle + \sum_{k>l}\langle\left|2e^{i\phi_k(t)}e^{i\phi_l(t)}\right|^2\rangle\right) \tag{4.51}$$

$$= F_0^4(m + 2m(m-1)) \tag{4.52}$$

En notant que :

$$\langle I(t)\rangle^2 = (mF_0^2)^2 = m^2F_0^4 \tag{4.53}$$

on en déduit :

$$\langle I^2(t)\rangle = \left(2 - \frac{1}{m}\right)\langle I(t)\rangle^2 \tag{4.54}$$

et pour un grand nombre d'atomes ($m \gg 1$) :

$$\frac{\langle I(t)\rangle^2}{\langle I^2(t)\rangle} = \frac{1}{2} \tag{4.55}$$

Il faut remarquer que l'origine physique du caractère aléatoires des phases n'entre pas en ligne de compte ici. On sait toutefois que selon le processus mis en jeu (collisions, élargissement Doppler...), la fonction d'autocorrélation de la source aura une allure différente. Ici, nous nous limitons à sa valeur à déphasage nul.

Cas d'un laser

Le laser est une source cohérente : la relation de phase entre les champs rayonnés par émission stimulée est parfaitement définie, tout du moins dans le cas idéal.

Le champ généré par la contribution de m atomes s'écrit :

$$F(t) = F_1(t) + F_2(t) + ... + F_m(t) \tag{4.56}$$

$$= mF_0e^{-i\omega_p t}(e^{i\phi_0(t)}) \tag{4.57}$$

On en déduit immédiatement $\langle I^2(t)\rangle = \langle I(t)\rangle^2 = m^2F_0^4$, soit :

$$\frac{\langle I(t)\rangle}{\langle I^2(t)\rangle} = 1 \tag{4.58}$$

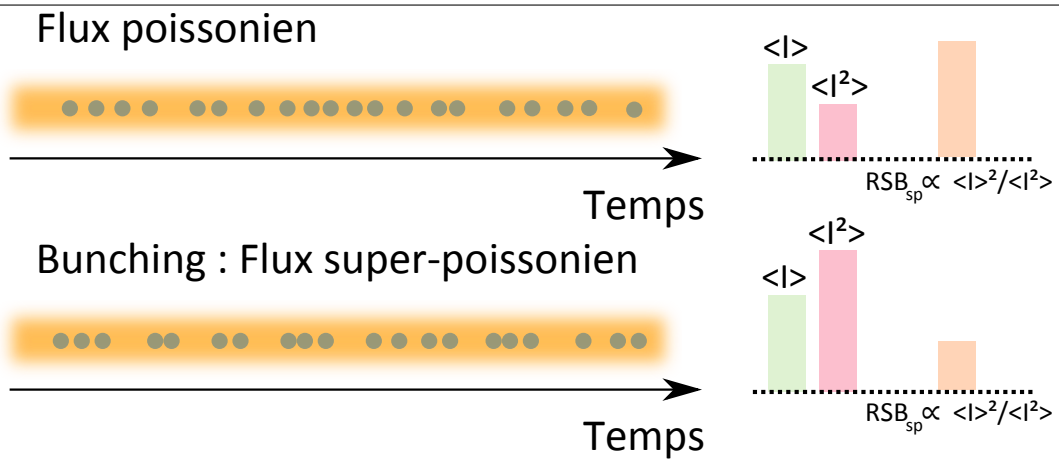


FIGURE 4.3 – Principe du bunching de photons, issu par exemple de l'émission d'un corps noir. L'absorption à deux photons est favorisé par le regroupement temporel des corpuscules.

On obtient donc qu'à intensité moyenne de pompe identique, les fluctuations de l'intensité entraînent la création de deux fois plus de paires dans le cas du pompage par un corps noir que dans le cas d'un pompage par un laser. Le signal d'absorption dégénérée augmente donc, mais le niveau de bruit qui lui est propre également. dégradant le RSB associé à la détection non-dégénérée du signal.

Ce résultat est l'illustration du phénomène de groupement de photons (ou « photon bunching »en anglais) observé dans le cadre de l'émission de lumière par un corps noir. La compréhension du groupement de photons fait intervenir la notion de cohérence de la lumière, c'est à dire de ses fluctuations d'intensité. Mais ce phénomène intimement lié à la statistique d'émission des photons peut être compris par une approche corpusculaire.

Dans le cas du laser, l'émission des photons se fait de manière complètement aléatoire : il n'y a aucune corrélation entre la date d'émission d'un photon et celle du suivant : nous suivons une statistique poissonienne d'émission des corpuscules.

Dans le cas du corps noir, les photons ont tendance à sortir regroupés par paquets. L'existence de ces paquets favorise le confinement temporel de photons à des échelles de temps très courtes et donc leur absorption par paires. Des photons émis à des dates très similaires ne sont pas rigoureusement indépendants. L'intensité instantanée présente des fluctuations plus importantes, conséquence de l'alternance entre paquets de photons (intensité instantanée élevée) et vide (intensité nulle), plus marquée que dans le cas poissonien : nous suivons ici une statistique super-poissonienne d'émission des photons[Simaan 75b].

Les calculs réalisés juste plus haut sont des illustrations de calcul du degré de cohérence de la source lumineuse, qui souligne la compréhension première que l'on peut avoir de cette notion : le caractère aléatoire ou non du mélange statistique des phases des champs rayonnés par nos différentes sources. La cohérence de la lumière a donc une influence sur l'absorption à deux photons. Cette relation a été théorisée dès les années 1960 et les travaux de Glauber [Glauber 64, Lambropoulos 66], et observée expérimentalement dans la même décennie [Shiga 67].

La question de la cohérence est un problème très vaste de la physique de la lumière. La notion de groupement de photons de certaines sources a été évoquée dès l'expérience Hanbury-Brown-Twiss [Brown 56, Brown 57], qui permet la mesure de fonctions d'autocorrélation d'ordre deux par le biais d'un interféromètre. La description plus large du comportement statistique des sources de photons a par la suite fait l'objet de nombreux développements nécessitant parfois la quantification du champ (par exemple pour comprendre les phénomènes de « dégroupement », ou « antibunching »en anglais) [Paul 82]. La relation entre phénomènes de groupement ou de dégroupement d'une part, et statistiques du flux de photon est un problème également complexe [Zou 90], que nous n'aurons pas vocation à traiter ici.

Compression de la pompe

La maximisation du RSB de détection non-dégénérée va de pair avec la réduction du bruit de détection dégénérée, qui est directement lié aux fluctuations statistiques de l'intensité de la source de pompe. Le laser comme source de pompe présente un avantage comparatif certain par rapport à un corps noir dans notre cas. Pour conclure ce chapitre, j'aborde brièvement la possibilité de réduire encore le bruit de pompe grâce à la statistique d'émission des photons, en s'orientant vers une source sub-poissonienne [Teich 89, Teich 90, Fabre 92].

Considérons une diode électro-luminescente (DEL) de haut rendement quantique. La statistique des photons émis va alors suivre la statistique des électrons passant dans la DEL. En utilisant un courant d'alimentation présentant des fluctuations faibles (sub-poissoniennes) [Davidovich 96], la statistique des photons émis conservera cette propriété de réduction du bruit [Tapster 87].

On considère donc que l'on fournit des électrons à la DEL par le biais d'une alimentation stabilisée, qui présente un bruit très faible. Idéalement, les électrons sont répartis uniformément au cours du temps, et traversent la DEL à intervalle de temps fixe : la variance du flux d'électrons d'alimentation est nulle, sa moyenne i_{del} est constante (pour un intervalle de temps suffisamment grand). Chaque électron a alors une probabilité η de provoquer l'émission d'un photon par la DEL : l'expérience que nous décrivons suit une statistique de loi binomiale.

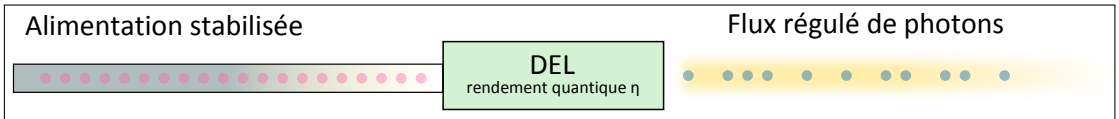


FIGURE 4.4 – Génération d'un flux de photons avec une statistique sub-poissonienne : la DEL reproduit la statistique d'un flux régulé d'électrons.

On considère un grand intervalle de temps T. On connaît alors les caractéristiques statistiques du flux émis :

$$\langle \phi_p T \rangle = \eta i_{del} T \tag{4.59}$$

$$\Delta\phi_p^2 T^2 = \eta(1-\eta) i_{del} T \tag{4.60}$$

Prenons le cas $\eta \ll 1$. Seule une infime partie des électrons est convertie en photons, et la corrélation entre les dates d'émission de ces rares photons commence à s'estomper : les événements redeviennent indépendants. La loi binomiale converge alors dans ce cas vers une loi de Poisson (qui est la loi des événements rares). Ceci est illustré par l'égalité entre la moyenne et la variance de la distribution.

$$\langle \phi_p \rangle = \Delta\phi_p^2 = \eta i_{del} \tag{4.61}$$

En revanche, dans le cas d'une efficacité quantique conséquente η, les fluctuations d'intensité du flux de photons sont réduites d'un facteur $(1-\eta)$. L'interprétation en est simple : chaque photon est séparé du suivant par un temps au moins égal à $\Delta t = \frac{T}{\phi_p}$: au prix d'une corrélation entre les dates d'émission des photons, les photons restent séparés temporellement, ce qui va limiter le regroupement de paires de quanta et défavoriser le signal dégénéré.

Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons étudié quelques principes liés à la détection de l'absorption à deux photons dégénérés et non-dégénérés, qui coexistent dès lors que nous utilisons deux sources de photons : une source de pompe, avec des photons d'énergie supérieure au mi-gap du semiconducteur, et une source signal, avec des photons d'énergie inférieure à ce même mi-gap. L'objectif de ma thèse est de maximiser le rapport signal à bruit associé à l'absorption à deux photons non-dégénérés :

$$RSB_{sp} = \langle \phi_s \rangle \frac{\beta_{sp}}{\beta_{pp}} \sqrt{\frac{\phi_p^2}{\langle \phi_p^2 \rangle}}$$

Nous cherchons donc d'une part à maximiser le numérateur, en augmentant les intensités de pompe, de signal, et en exploitant l'anisotropie du semiconducteur pour

augmenter les coefficients non-linéaires. D'autre part, nous souhaitons réduire le dénominateur, qui est associé au signal d'absorption dégénérée de la pompe. Nous proposons donc d'utiliser des sources de photons dont la statistique d'émission « dégroupe »le plus possible les photons et limite ainsi l'absorption de paires de photons de pompe.

Troisième partie

Processus de détection sub-gap dans les semi-conducteurs

J'appelle pas ça voler, j'appelle ça tomber avec panache.

Buzz l'éclair
Toy Story
de John Lasseter

Chapitre 5

Expériences d'absorption sub-gap à un faisceau

L'objectif de ce chapitre est de présenter un premier ensemble de techniques expérimentales mises en jeu dans la caractérisation de l'absorption à deux photons, et l'exploitation des résultats obtenus en lien avec les modèles théoriques développés dans la partie précédente. En particulier, on étudiera en profondeur le fonctionnement de deux détecteurs lorsqu'ils sont soumis à un flux de photons d'énergie inférieure au gap : un compteur de photons, et une photodiode commerciale.

5.1 Méthodes expérimentales de caractérisation

5.1.1 Évolution quadratique du photocourant

Les équations de propagation précédentes mettent en lumière plusieurs moyens de caractériser la 2PA d'un matériau, c'est à dire d'évaluer son coefficient β. On se place ici dans le cas de la D-2PA.

$$\frac{dI}{dz} = -\beta \frac{1}{I^2}$$

En supposant le faisceau de section constante et dans la limite d'une faible absorption, on peut intégrer l'expression précédente en faisant intervenir la puissance incidente $P_0 = I_0 S$, avec I_0 l'intensité incidente et S la section du faisceau :

$$\Delta P = P_0 - P = \frac{\beta L \frac{P_0^2}{S}}{1 + \beta L \frac{P_0}{S}} \approx \beta L \frac{P_0^2}{S} \tag{5.1}$$

où L est la longueur d'interaction entre l'onde et le milieu actif. Le taux d'absorbtion de paires de photons s'écrit alors simplement :

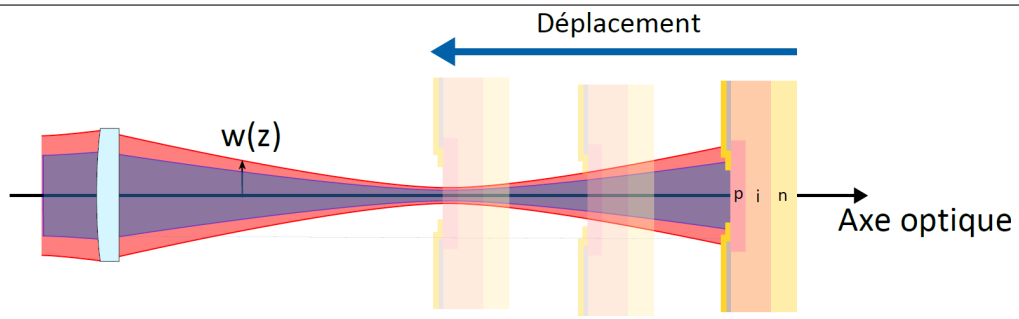


FIGURE 5.1 – Principe d'une technique de Z-Scan. Le déplacement du détecteur le long de l'axe optique fait varier l'intensité lumineuse sur la surface sensible, influant sur l'efficacité des processus non-linéaires.

$$G = \frac{\Delta P}{2h\nu} = \frac{\beta}{2h\nu}\frac{L}{S}P_0^2 \tag{5.2}$$

où $2h\nu$ est l'énergie d'une paire de photons. Comme il est dans tout ce manuscrit question de création de charges dans des détecteurs, un grand nombre de paramètres intervient ensuite dans la collecte et la mesure effective d'un photocourant lié à la 2PA : l'efficacité de la collecte des électrons, les éventuelles recombinaisons parasites, la technologie et la géométrie du détecteur. En mettant de côté pour le moment ces facteurs, on montre que le photocourant D-2PA évolue quadratiquement avec la puissance optique incidente :

$$i_{2ph} = \beta' \frac{P_0^2}{S} \tag{5.3}$$

où β' intègre la configuration radiométrique de l'expérience (position du détecteur, surface active, longueur du milieu d'absorption) ainsi que les facteurs évoqués précédemment. On retiendra que l'expression précédente montre l'importance de travailler avec une petite taille de spot pour favoriser les interactions entre photons et donc les événements d'absorption à deux photons. On montre que dans le cas ND2PA, il faut s'attendre à une évolution linéaire sur les deux faisceaux pompe et signal (pentes de 1 en échelle logarithmique).

A l'inverse, l'absorption linéaire reste indépendante de la taille du faisceau, mais est uniquement liée au nombre de photons incidents sur une surface active. L'approche la plus simple pour caractériser la 2PA est donc de réaliser une étude de l'évolution du photocourant en fonction de la puissance optique incidente.

5.1.2 Z-Scan

Il est possible d'utiliser la variation de taille transverse d'un faisceau, par exemple après focalisation par une lentille, pour faire varier l'absorption non-linéaire. Cette méthode a d'abord été utilisée dans des matériaux massifs en transmission, en se déplaçant autour du point focal d'un faisceau laser focalisé, à une longueur d'onde en configuration dégénérée ou avec deux faisceaux en configuration non-dégénérée(voir figure 5.1) [Sheik-Bahae 90, Sheik-Bahae 92]. Ici, le principe utilisé sera le même, mais la grandeur mesurée en premier lieu ne sera pas la transmission optique mais le courant à deux photons généré (2 Photon Current, 2PC) dans le détecteur.

Cette technique exploite la dépendance du taux de transition à deux photons vis-à-vis de la densité d'énergie incidente : plus les photons sont regroupés, spatialement par exemple, plus nombreuses seront les paires de photons à être absorbées, les photons se rencontrant plus facilement. En se déplaçant le long de l'axe optique, notamment autour du point focal, il est possible d'exploiter la variation de la section du faisceau incident pour faire varier l'intensité du processus (voir figure 5.1). L'évolution du rayon de la section d'un faisceau gaussien autour du point focal au point $z = 0$ est donnée par :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (\frac{z}{z_R})^2} \tag{5.4}$$

où w_0 est le col du faisceau, au foyer, et $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ est la distance de Rayleigh, caractéristique de la focalisation du faisceau. L'évolution de la surface de la tache $S = \pi w^2$ le long de l'axe optique induit un comportement lorentzien des événements d'absorption à deux photons :

$$G = \beta \frac{L\lambda}{2hc} \frac{P^2}{S} = \beta \frac{L\lambda}{2hc} \frac{P^2}{\pi w_0^2} \frac{1}{1 + (\frac{z}{z_R})^2} \tag{5.5}$$

Sans faire d'hypothèses particulières, nous garderons toutefois à l'esprit que notre mesure ne permet pas de mesurer l'efficacité de collection du photocourant généré.

5.1.3 Détermination des orientations cristallines

Les dépendances en polarisation décrites dans la section4.3 seront très utiles pour déterminer l'orientation cristalline du semi-conducteur à l'œuvre dans le détecteur. Dans le cas d'une polarisation incidente linéaire, on retiendra deux situations en particulier : l'invariance du coefficient d'absorption lorsque le cristal est présenté selon la face [111], et sa modulation sinusoïdale en fonction de la direction de polarisation lorsque le cristal est présenté selon la face [100].



FIGURE 5.2 – Cliché d'un photocompteur Hamamatsu H7421-51.

5.2 Absorption à deux photons en régime de comptage

5.2.1 Détecteur

On étudie ici le fonctionnement d'un photomultiplicateur Hamamatsu H7421-51 (Figure 5.2). Il est équipé d'une photocathode en GaAs refroidie par effet Peltier. Ce type d'instrument a notamment été utilisé pour étudier l'autocorrélation d'une source femtoseconde de faible puissance par Roth et al [Roth 02]. Cette étude était menée à 1.55 μm, où le comportement non-linéaire du détecteur a été très bien vérifié. C'est donc un bon dispositif pour étudier le processus d'absorption à deux photons, y compris dans des régimes de très bas flux.

Pour des photons d'énergie comprise entre le gap et le mi-gap de l'arséniure de gallium (entre 0.7 eV et 1.4 eV), il peut y avoir création d'un photoélectron par absorption d'un couple de photons. L'électron est accéléré par le champ généré par des électrodes de focalisation et induit une cascade d'électrons secondaires en percutant les dynodes (voir figure5.3). Le photocourant généré est transformé en une impulsion unique de 3V et d'environ 30 ns par le biais d'un discriminateur. Un compteur d'impulsions CT2 Counter Timer d'Electron Tubes enregistre le nombre de coups générés sur un intervalle d'intégration ajustable entre 10 ms et 30s, et ceci autant de fois que l'utilisateur l'aura défini, avec une limite de 32 000 mesures. Le nombre de coups d'obscurité, c'est-à-dire sans aucun flux lumineux incident, la pièce plongée dans le noir, est de l'ordre de 10 cps. A noter que le détecteur a été protégé par un wafer épais de GaAs, afin de prévenir

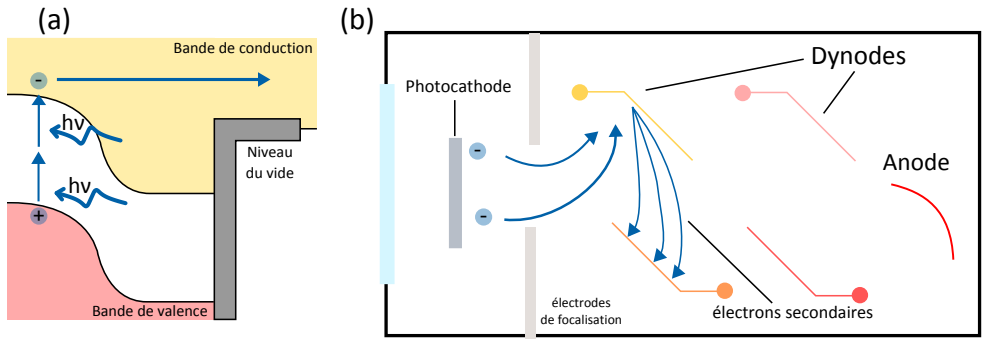


FIGURE 5.3 – Principe de fonctionnement du photocompteur en détection à deux photons. Les électrons expulsés dans le vide sont accélérés vers des dynodes et génèrent une cascade d'électrons secondaires collectés par une anode.

toute absorption directe de photon d'énergie supérieure au gap.

5.2.2 Montage expérimental

La source de lumière utilisée est un laser CW fibré Photonetics TUNICS, accordable autour de 1550 nm. La sortie de la fibre est reliée à un collimateur F810APC-1550 donnant un faisceau de sortie de 7 mm de diamètre. La fibre n'est pas à maintien de polarisation : un polariseur linéaire est donc placé en sortie du collimateur. Sur son trajet en espace libre, nous pouvons modifier la polarisation du faisceau à l'aide de lames demi-onde et quart-d'onde.

Le flux optique incident est mesuré par un détecteur à thermopile OPHIR 3A. Le faisceau est ensuite focalisé sur le détecteur. La cathode étant à 19 mm de la face d'entrée du détecteur, nous avons choisi une lentille en CaF_2 d'une focale de 25 mm. Le détecteur est monté sur un ensemble de platines de translation permettant d'ajuster sa position par rapport au point focal et le long de l'axe optique.

5.2.3 Mesure du coefficient d'absorption par Z-scan

Le profil lorentzien attendu pour une caractérisation Z-Scan est facilement identifiable, ce qui confirme la prédominance du processus D-2PA (Figure 5.4). La modélisation lorentzienne permet d'extraire les valeurs géométriques du waist, de la distance de Rayleigh, et du coefficient d'absorption à deux photons par le biais de la hauteur et de la largeur à mi hauteur de la lorentzienne. Nous obtenons une valeur de waist $w_0 = 6.2\mu\text{m}$, très proche de la valeur théorique $w_{th} = 5.9\ \mu\text{m}$ calculée à partir de l'ouverture numérique de notre optique. Le calcul aboutit à une valeur du coefficient d'absorption à deux photons $\beta_{D2PA}^{GaAs} = 4.85 \pm 0.13$ cm/GW à $\lambda = 1.55\ \mu\text{m}$. Il est à noter que les valeurs expérimentales généralement obtenues dans la littérature sont sensiblement dispersées.

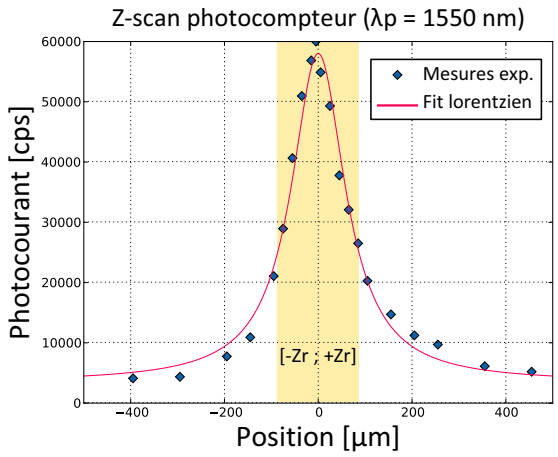


FIGURE 5.4 – Z-scan effectué sur le photocompteur. Le profil est lorentzien, en conformité avec un régime D-2PA.

Longueur d'onde [μm]	β[cm/GW]	Référence
1.06	26 ± 5	[Said 92]
1.06	23	[Van Stryland 85]
1.06	70 ± 20	[Saïssy 78]
1.06	200	[Oksman 72]
1.06	5600	[Jayaraman 72]
1.6	5	[Hurlbut 07]

TABLEAU 5.1 – Quelques valeurs du coefficient d'absorption à deux photons trouvées dans la littérature, principalement autour de 1064nm.

Un tableau assez exhaustif des valeurs expérimentales trouvables dans la littérature est présenté dans [Bosacchi 78].

5.2.4 Caractéristique I-P

Nous étudions la réponse du détecteur en fonction de la puissance incidente, pour une position du détecteur donnée. Nous utilisons la source continue TUNICS. La figure 5.5 présente l'évolution du nombre de coups en fonction du niveau de flux incident. Ce niveau de flux a été calibré par le calorimètre. Comme un wafer de GaAs protège le détecteur, il faut prendre en compte les pertes associées à la réflexion d'une partie de la lumière sur les dioptres du wafer (d'indice de réfraction $n = 3.37$ à $\lambda = 1.55$ μm).

L'évolution quadratique est vérifiée sur 3 ordres de grandeurs en photocourant, ceci pour deux positions du détecteur sur l'axe optique : au point focal, où l'intensité est maximale, mais également à $z = 2\ Z_R$, où l'intensité est plus d'on ordre de grandeur plus

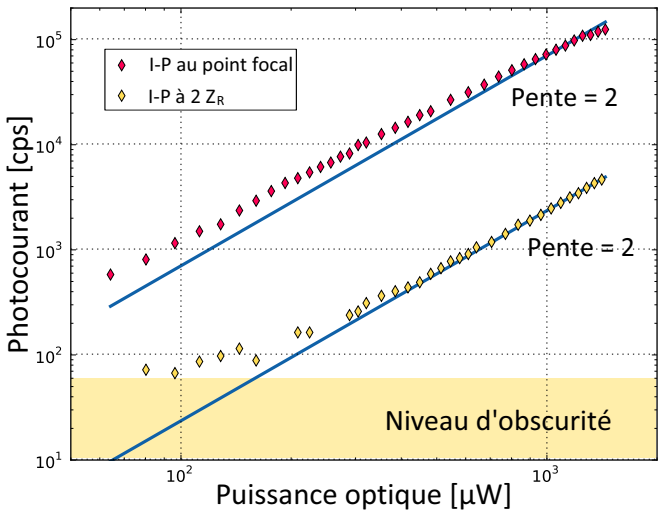


FIGURE 5.5 – Caractéristique I-P tracée pour le photocompteur à 1.55 μm. L'évolution est quadratique sur 3 ordres de grandeur, avant d'atteindre progressivement la saturation.

faible à puissance optique incidente maximale. Il y a peu d'écart à l'idéalité de la réponse non-linéaire, que ce soit à haut ou bas flux : le détecteur fonctionne donc à cette longueur d'onde dans un régime non-linéaire d'une grande pureté. Pour un nombre de coups avoisinant les 10^6 cps, la caractéristique chute progressivement : c'est la conséquence de la saturation progressive du détecteur par le recouvrement des temps morts associés aux impulsions de 30 ns fournies par le dispositif. On prendra donc soin de considérer que seuls les régimes relativement éloignés de ce point de fonctionnement permettent de prendre en compte tous les coups à deux photons. A l'inverse, en se rapprochant de 100 cps, on se rapproche du niveau d'obscurité constaté, et on s'éloigne à nouveau d'un régime bien identifié de détection.

5.2.5 Étude en polarisation

Nous étudions maintenant l'évolution en polarisation de l'absorption à deux photons dégénérée. Nous allons utiliser les résultats du chapitre 4 pour en déduire l'orientation du cristal de GaAs constituant la photocathode du détecteur.

Nous polarisons tout d'abord linéairement le faisceau. A l'aide d'une lame demi-onde, nous effectuons une rotation complète de la polarisation. Si de faibles variations sont observables, elles ne représentent qu'une fraction relative faible (voir Figure 5.6(a)). Nous savons donc que le GaAs se présente selon l'axe [111], seule configuration présentant

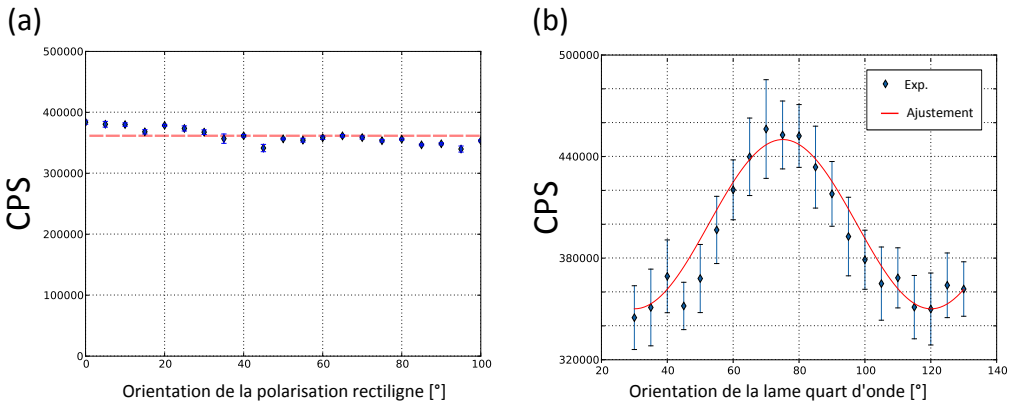


FIGURE 5.6 – (a)Étude en polarisation de la photocathode à 1.55 μm. La photocathode reçoit une onde polarisée linéairement selon différentes directions. Le signal reste stable quelque soit la direction de polarisation incidente. Les fluctuations observées sont liées au niveau de puissance de l'OPO, qui fluctue au cours de l'expérience.(b) Étude du comportement à l'ellipticité. Le rapport de contraste mesuré expérimentalement entre le coefficient d'absorption à deux photons pour une polarisation circulaire et celui pour une polarisation linéaire est de l'ordre de 1.3, en dessous de la valeur de 1.5 théoriquement attendue.

effectivement une indépendance de la réponse à l'orientation de la polarisation linéaire d'entrée [1].

Nous introduisons ensuite une lame quart-d'onde après le polariseur initial, afin de faire varier l'ellipticité de la vibration lumineuse. L'information recherchée est le facteur de contraste du courant généré entre une polarisation incidente rectiligne et une polarisation incidente circulaire. La variation sinusoïdale attendue est observée et présente un rapport de contraste entre polarisation circulaire et linéaire de 1.3, en-dessous de la valeur de 1.5 prévue par le modèle théorique. Cette mesure constitue une légère anomalie pour notre détecteur, que nous n'avons pas retrouvé mentionnée dans la littérature.

5.2.6 Bruit de détection dégénéré

Les incertitudes mesurées lors de l'acquisition du signal d'absorption dégénérée (Figure 5.5) sont représentatives du bruit associé au signal D2PA et à sa dépendance avec le niveau d'intensité mesuré. Le bruit attendu est de distribution poissonienne. La figure 5.7 présente l'évolution de la variance des fluctuations du signal, indexée en abscisse par le niveau de signal en cps. Les mesures affichées regroupent celles effectuées au point

1. A noter que ce résultat montre aussi l'absence de processus non-linéaire comme de la génération de second harmonique suivie de l'absorption de ce rayonnement à fréquence double par la photocathode. Cette contribution est dépendante de la polarisation, et une modulation de 20% sur ce signal est attendue en fonction de l'orientation de la polarisation linéaire incidente

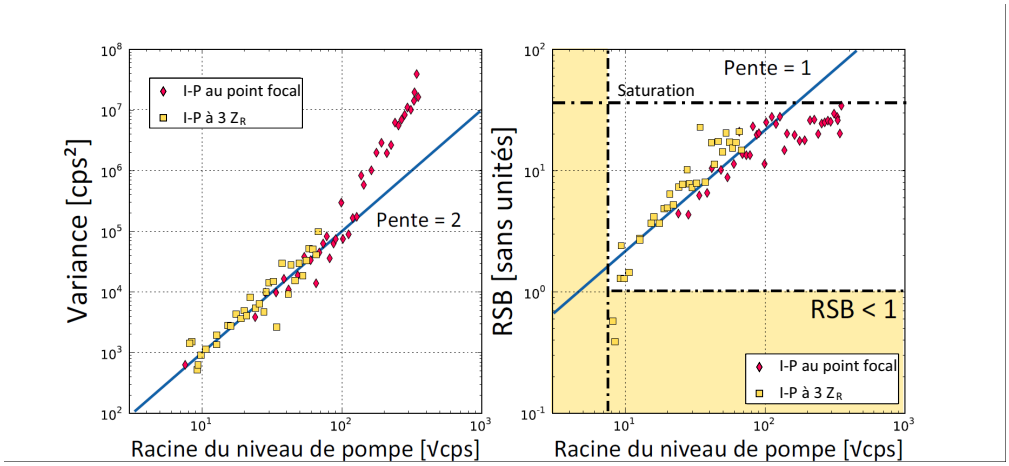


FIGURE 5.7 – Variance et RSB du signal dégénéré indexé en fonction de la racine du niveau de détection.

focal et à 2 Z_r. Dans ce dernier cas, l'intensité lumineuse incidente étant plus faible grâce à une section de faisceau plus large, on peut atteindre des niveaux moyens de signal plus bas qu'au point focal. Comme la nature du régime de détection non-linéaire est conservée, la relation entre niveau moyen de signal et bruit associé l'est également, ce qui est confirmé par la concaténation des deux séries de points. Au travers des décades explorées, on observe plusieurs régimes :

— Tout d'abord une évolution linéaire avec le nombre de coups de détection. C'est l'évolution attendue pour une distribution poissonnienne : il y a une relation entre nombre de coups et écart-type.

— Puis, la variance suit une évolution plus rapide avec le niveau de signal, à peu près synchrone avec l'entrée du détecteur dans le régime de saturation. On peut donc supposer que cette augmentation des fluctuations est liée à la fois au signal mais également aux fluctuations des recoupements des impulsions de temps mort de 30 ns.

Dans la configuration D-2PA étudiée, on peut donc tracer le rapport signal à bruit, qui synthétise nos différentes observations sur le signal et sur le bruit. Le RSB suit une évolution linéaire avec la puissance incidente (donc en racine carrée du signal) avant le régime de saturation, à comparer avec l'évolution en racine carrée attendue dans le cas de la détection linéaire. Le caractère non-linéaire du processus se retrouve donc très bien dans l'évolution du RSB, qui reproduit les attentes formulées dans le chapitre précédent.

	Absorption à un photon	Absorption à deux photons
Signal	$\propto I_p$	$\propto I_p^2$
Bruit = Ecart-Type	$\propto \sqrt{I_p}$	$\propto I_p$
RSB	$\propto \sqrt{I_p}$	$\propto I_p$

TABLEAU 5.2 – Tendances attendues d'évolution du signal et du bruit dans le cas de la détection linéaire et non-linéaire.

5.3 Absorption dégénérée dans des photodiodes PIN

5.3.1 Diode Silicium

Le photocompteur est un détecteur extrêmement sensible qui, comme son nom l'indique, est conçu pour détecter de faibles flux. Bien qu'utile pour observer les processus non-linéaires même dans des conditions très défavorables, c'est un composant très coûteux qui ne correspond pas à l'ambition de notre étude : celle d'un régime de détection infrarouge conforme aux technologies semi-conducteurs les plus communes.

Le processus d'absorption à un photon dans la bande interdite de détecteurs à semi-conducteurs a été observée par différents auteurs notamment dans des photodiodes à avalanche en silicium pour des expériences d'autocorrélation [Xu 02, Kikuchi 98]. L'origine de ces transitions a généralement été attribuée à des défauts profonds situés dans la bande interdite : ces états étant réels, stationnaires, délocalisés le temps de vie d'un porteur excité vers ce niveau est bien plus important que le temps de vie d'Heisenberg des niveaux virtuels et non-stationnaires impliqués dans la TPA. Ainsi, la détection sub-gap a une portée certaine en matière de détection, et l'implantation de défauts dans le semi-conducteur comme supports de détection est une technique déjà utilisée dans plusieurs travaux [Knights 11, Logan 09] : les états générés sont de bons candidats pour favoriser des transitions générant des porteurs dans le matériau. Certaines stratégies de détection mentionnées dans la littérature sont basées sur l'utilisation de ces défauts pour la création d'un photocourant [Bube 60, Blanc 64, Rose 63].

En conséquence, les transitions se basant sur ces états seraient bien plus faciles à réaliser et le photocourant issu de ce processus surpasserait le courant à deux photons. C'est oublier que le processus conserverait une dépendance quadratique avec le flux de photons incident. En effet, la population d'électrons sur ces niveaux devrait être proportionnelle à ce flux à l'état stationnaire. De plus, le taux de transition depuis ces niveaux serait lui aussi proportionnel au flux, donnant lieu à une dépendance globale en carré du flux.

Sans explication véritablement satisfaisante, ces observations préalables dans le silicium nous ont motivé pour une étude plus approfondie de ce phénomène dans une photodiode PIN en silicium.

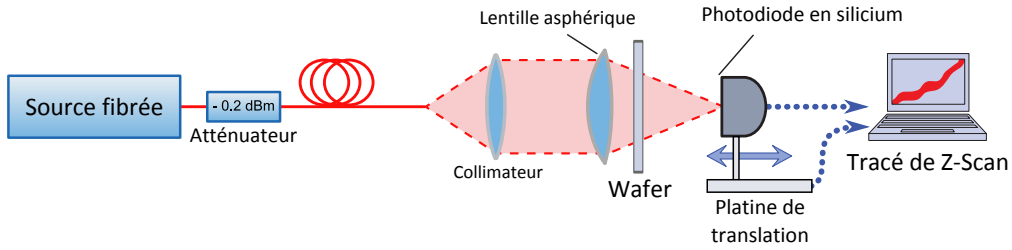


FIGURE 5.8 – Présentation du montage utilisé pour la caractérisation de l'absorption linéaire sub-gap dans une photodiode en silicium.

Configuration expérimentale

Le détecteur à l'étude est un détecteur Hamamatsu Si 5821, protégé par un wafer de silicium de 300 μm d'épaisseur. La source utilisée est une diode laser à semi-conducteur TUNICS-MC fibrée, à 1550 nm. Un atténuateur Eigenlight contrôle la puissance lumineuse. Nous effectuons une série de Z-scans à différentes puissances afin de déterminer le régime de fonctionnement du détecteur et le coefficient d'absorption à deux photons du silicium. La figure 5.8 présente un schéma du montage.

Caractérisation expérimentale

La figure 5.9 présente une série de 3 Z-scans obtenus à des puissances moyennes de 5 mW, 2 mW, et 1 mW. Les courants collectés sont faibles, de l'ordre du pA, mais la forme lorentzienne attendue est facilement observable. La modélisation est tout à fait correcte et permet de donner une estimation du coefficient de D-2PA pour le silicium, à $\beta^{Si}_{D-2PA} = 10$ cm/GW.

L'obtention des profils lorentziens tend à prouver que dans ce détecteur, le régime non-linéaire n'est pas perturbé, au moins autour du point focal, où la focalisation par un asphérique permet de maximiser la D-2PA. Toutefois, toujours au point focal un tracé I-P effectué au point focal montre qu'en descendant en-dessous du mW de puissance moyenne, un comportement linéaire est observé, à l'instar de ce qui a été observé dans [Xu 02, Kikuchi 98].

Ce régime linéaire est par surcroît largement prépondérant dès lors que l'on s'éloigne du point focal, vers les niveaux de référence des lorentziennes : le tracé I-P effectué en déplaçant le détecteur d'une distance Δz d'environ 1.5 mm de part et d'autre du point focal suit un tracé essentiellement linéaire sur trois décades de puissance incidente (Figure 5.10).

Une faible déviation à la linéarité est observée aux puissances les plus basses. Nous l'avons attribuée aux limites de notre expérience et de notre matériel : les courants mesurés deviennent en effet extrêmement faibles, de l'ordre du fA. Cet écart n'est pas

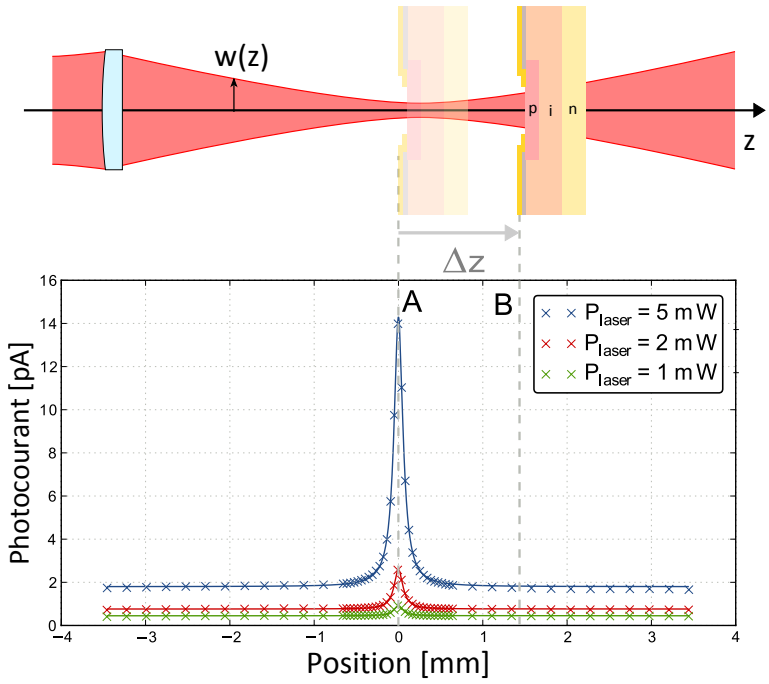


FIGURE 5.9 – Série de Z-scans obtenus pour différentes puissances moyennes incidentes sur la photodiode. Les profils lorentziens sont en accord avec un comportement non-linéaire du détecteur.

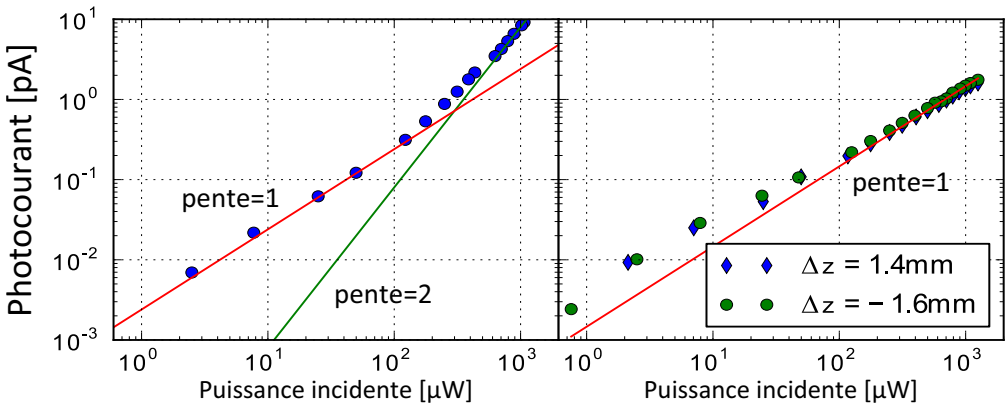


FIGURE 5.10 – Caractéristiques I-P du détecteur Si. A gauche, la mesure faite au point focal. Le régime est linéaire à bas flux, puis quadratique pour des flux plus importants. A droite, la même mesure effectuée à distance Δz du point focal. La densité d'énergie incidente est plus faible, le régime linéaire est prépondérant.

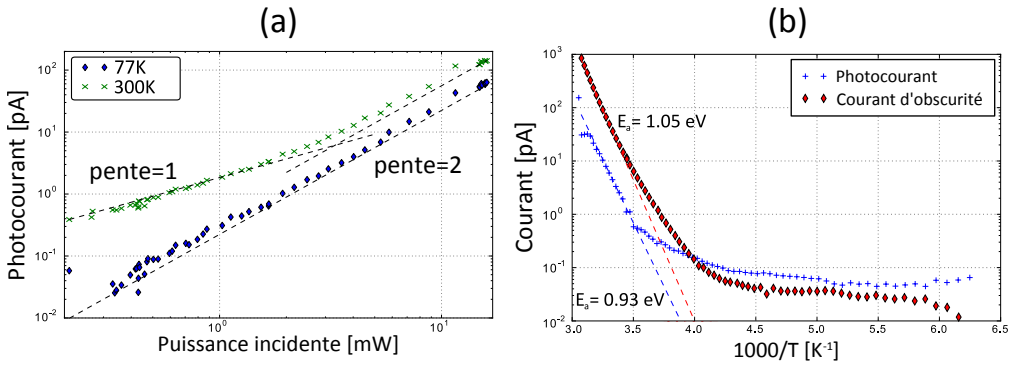


FIGURE 5.11 – Comportement thermique de la détection linéaire sub-gap. (a) Caractéristiques I-P effectuées à température ambiante, et à température cryogénique. Dans ce second cas, même à bas flux, le détecteur suit un comportement non-linéaire. (b) Évolution des contributions de photocourant et d'obscurité au courant traversant la jonction. Les deux termes répondent à des énergies d'activation similaires.

contraignant pour déduire une estimation de rendement quantique du processus : on le définit comme le rapport entre du nombre d'électrons collectés sur le nombre de paires de photons contenues dans le faisceau incident :

$$\eta = \frac{i_{D2PA}}{P_0}\frac{\frac{2hc}{\lambda}}{e} \approx 1.5.10^{-9} \tag{5.6}$$

pour un faisceau de rayon $w_0 = 5.5\mu$m au point focal et une longueur d'interaction $L \approx 10\mu$m.

Réponse du détecteur à température cryogénique

Nous avons ensuite étudié le comportement en température du photocourant dans la jonction. Pour cela, nous installons la photodiode dans un cryostat à bain d'azote, et nous effectuons deux tracés I-P au point focal du faisceau, un réalisé à température ambiante, et l'autre à environ 77K. Ces deux tracés sont présentés sur la figure 5.11 (a). Alors que la transition du linéaire vers le quadratique est clairement observée à température ambiante, le processus linéaire disparaît complètement à basse température. Ce résultat pointe dans la direction d'un mécanisme thermiquement activé dans la structure, à l'instar du courant d'obscurité d'une photodiode par exemple, suivant une évolution en $e^{-\frac{E_g}{nKT}}$, avec des valeurs de n variant entre 1 et 2.

L'énergie d'activation de ce courant est donc de l'ordre de E_g. Ceci est confirmé par les informations données par la figure 5.11(b), qui trace l'évolution du courant d'obscurité d'une part, et du photocourant d'autre part, en fonction de l'inverse de la température. On peut déterminer les énergies d'activation de ces deux sources de courant : elles sont très semblables, toutes les deux autour d'1 eV.

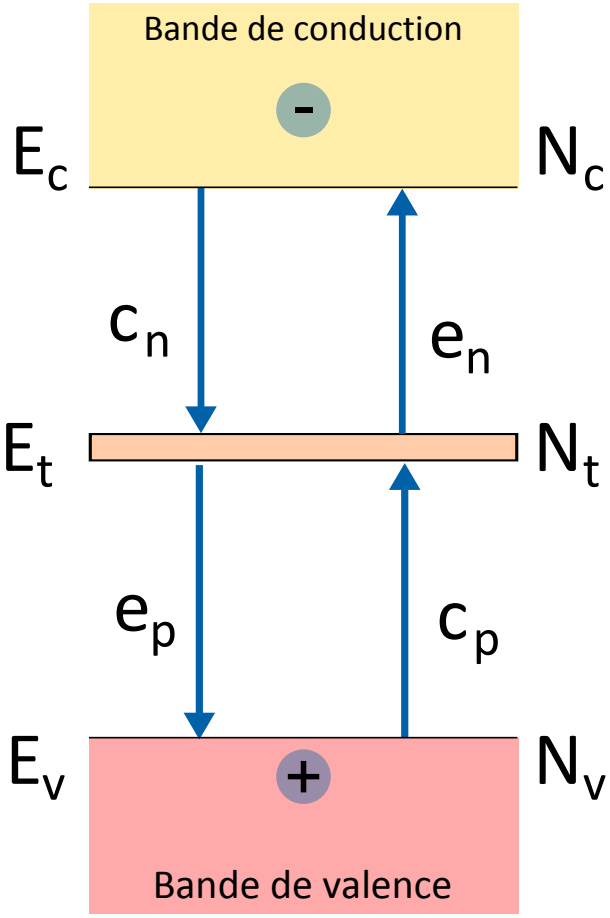


FIGURE 5.12 – Aperçu des notations utilisées pour la modélisation de l'effet PASRH. e_n et c_n (respectivement e_p et c_p) désignent des taux d'émission et de capture d'électrons (resp. de trous) depuis une densité N_t de niveaux pièges d'énergie E_t, situés entre la bande de valence E_v et de conduction E_c, de densités effectives d'états N_v et N_c.

Modélisation : un effet Shockley-Read-Hall photo-assisté (PASRH)

Nous avons donc suivi l'approche de Shockley-Read [Grove 67] pour proposer un modèle simple permettant de rendre compte d'un processus à un photon suivant les mêmes principes d'activation thermique que le courant d'obscurité ; en somme, un effet Shockley-Read-Hall photo-assisté. La description que nous en faisons est la suivante : on considère la présence d'un niveau piège dans la bande interdite, à un niveau d'énergie E_t. Ce niveau peut capturer ou émettre des électrons (respectivement des trous) selon des taux de capture et d'émission c_n et e_n (resp. c_p et e_p). La valeur de ces taux dépendent notamment du niveau d'énergie du piège et des densités effectives d'états des bandes de

valence et de conduction, N_v et N_c (voir figure 5.12) :

$$e_p = c_p N_v e^{-\frac{E_t - E_v}{kT}} \tag{5.7}$$

$$e_n = c_n N_c e^{-\frac{E_c - E_t}{kT}} \tag{5.8}$$

avec

$$c_p = \sigma_p v_{th} \tag{5.9}$$

$$c_n = \sigma_n v_{th} \tag{5.10}$$

Quelques ordres de grandeur à 300K

$$k_b = 1.2810^{-23}\ J.K^{-1} \rightarrow k_b T = 26\ meV$$

L'expression des taux de capture c_n et c_p est connue : elle est liée au produit de la vitesse d'agitation thermique par une section efficace de capture :

$$\begin{cases} c_n = v_{th}\sigma_n \\ c_p = v_{th}\sigma_p \end{cases} \tag{5.11}$$

$$v_{th} = 5.1 \times 10^6 \sqrt{T/300} cm/s \rightarrow c_n \approx c_p \approx 5.1 \times 10^{-7} \sqrt{T/300} cm^{-3} s^{-1}$$

où on a prix $\sigma_t h \approx 10^{-13}\mathrm{cm}^2$.On considère des défauts à mi-gap($E_g = 1.42eV$). En reprenant les équations 5.7 :

$$N_c = 3.22 \times 10^{19} (T/300)^{3/2} cm^{-3} \rightarrow e_n \approx 10610 s^{-1}$$

$$N_v = 1.81 \times 10^{19} (T/300)^{3/2} cm^{-3} \rightarrow e_p \approx 6001 s^{-1}$$

Les équations de Shockley-Read établissent un facteur d'occupation du piège dans le noir :

$$f_d = \frac{e_p}{e_n + e_p} \tag{5.12}$$

qui donne naissance à un taux de génération de paires électrons-trous dans le milieu $U = e_n N_t f_d$ et donc à un courant d'obscurité :

$$J_d = -qWU_d \tag{5.13}$$

avec q la charge de l'électron et W la zone de charge d'espace où les paires électrons-trous sont immédiatement séparées sous l'effet du fort champ électrique y régnant. Dans notre modèle, nous introduisons le flux lumineux comme un moyen de peupler le piège

depuis la bande de valence ou de le vider vers la bande de conduction. Le facteur d'occupation du piège devient sous illumination :

$$f_{ph} = \frac{e_p + \sigma_{op}\Phi}{e_n + e_p + 2\sigma_{op}\Phi} \tag{5.14}$$

avec σ_{op} une section efficace optique associée au niveau piège et Φ le flux de photons. Ce taux d'occupation modifié va donner naissance à un photocourant :

$$J_{ph} = J_d(1 + \sigma_{op}\Phi(\frac{1}{e_n} + \frac{1}{e_p} - \frac{2}{e_n + e_p})) = J_d + J_{op} \tag{5.15}$$

qui est la somme du courant d'obscurité J_d et d'une contribution J_{op} liée à l'éclairement par des photons sub-gap.

Ce modèle rend compte d'une grande partie des phénomènes observés : le photocourant modélisé varie linéairement avec le flux incident, tant que le courant d'obscurité est présent, c'est-à-dire tant que les transitions sont thermiquement activées. Lorsque le courant d'obscurité est gelé et tend vers zéro, les niveaux pièges ne sont plus suffisamment peuplés pour participer aux transitions. Le piège peut servir de relais à quelques couples de transitions à un photon, donnant lieu à une contribution quadratique, mais d'amplitude selon toute vraisemblance bien inférieure à la D-2PA, qui peut alors dominer la génération de paires électrons-trous dans le matériau.

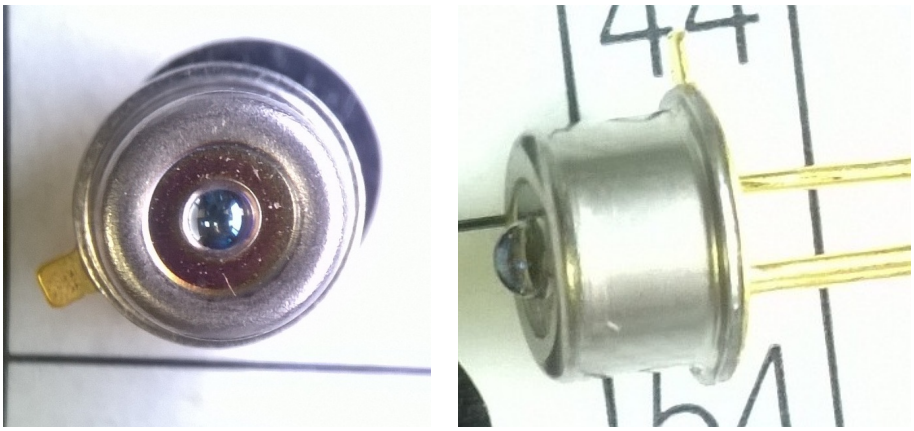
5.3.2 Diode GaAs

Nous poursuivons donc l'étude menée précédemment dans une photodiode PIN en GaAs, c'est-à-dire dans un composant commercial à bas coût à gap visible et à fort coefficient non-linéaire du 3e ordre.

Configuration expérimentale

Le détecteur est une photodiode Optowell PP85-B1T0N en GaAs (voir Figure 5.13). La lentille boule recouvrant le détecteur a été retirée afin de ne pas filtrer le rayonnement incident. Le diamètre actif de la photodiode est de $80\mu\text{m}$. La coque protégeant le détecteur est susceptible de diaphragmer le faisceau incident lorsque nous nous éloignons du point focal des optiques utilisées.

Pour des photons d'énergie 0.7 eV à 1.4 eV, une paire de photons absorbée donne naissance à une paire électron-trou susceptible de participer à un photocourant, selon les principes vus au chapitre 2. Pour cela, le composant est polarisé par un source-mètre Keithley 6430, qui permet de mesurer le courant traversant la jonction dans l'obscurité ou sous illumination.



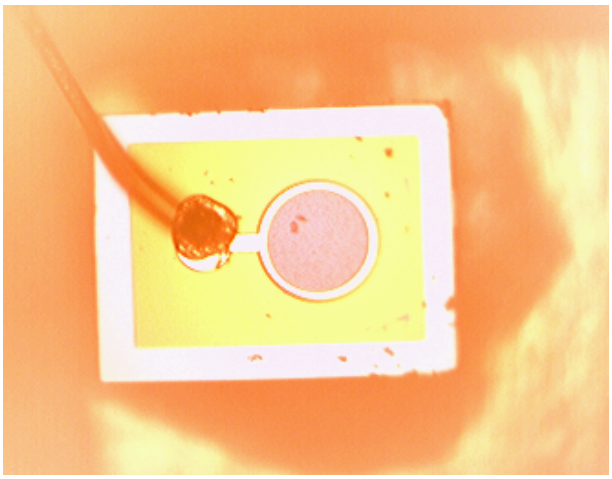


FIGURE 5.13 – (a)Aperçu de la photodiode PIN en GaAs utilisée. Une lentille boule recouvre le détecteur. Une fois retirée, on peut observer au microscope la jonction à proprement parler (b).

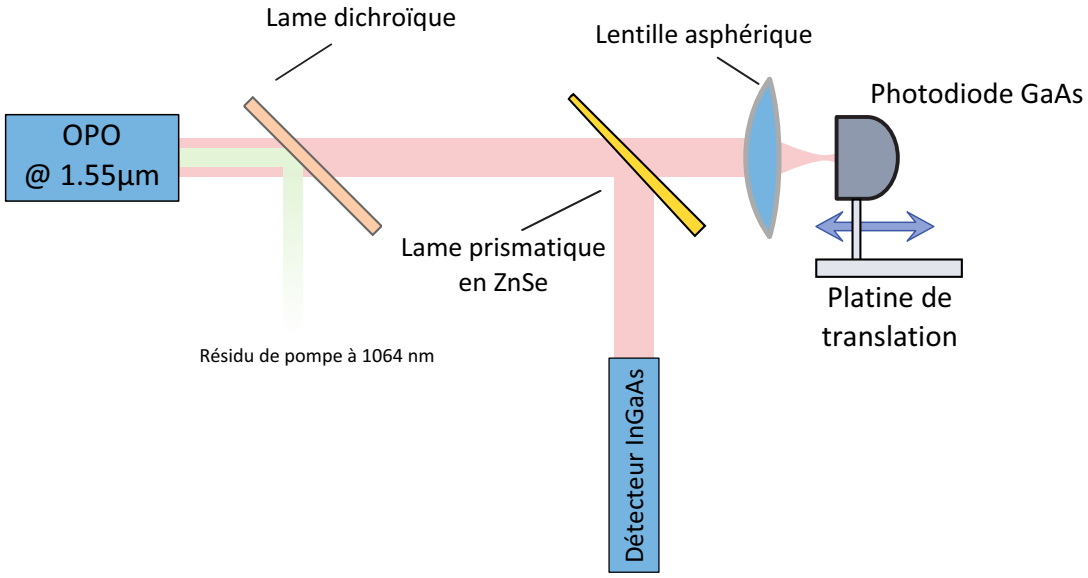


FIGURE 5.14 – Montage pour la caractérisation du régime linéaire sub-gap dans une photodiode GaAs. Le résidu de pompe de l'OPO est filtré grâce à un miroir dichroïque. La puissance incidente est mesurée en prélevant une partie du faisceau à l'aide d'un wedge de ZnSe.

Nous utilisons une source OPO M-Squared Firefly, dont le signal permet de fournir des impulsions de 10 ns à 150 kHz autour de 1.55 μm. Les résidus de pompe à 1064 nm sont filtrés à l'aide d'une lame dichroïque. Le faisceau traverse une lame prismatique en ZnSe : le faisceau réfléchi permet de calibrer la mesure en puissance. Le faisceau transmis est focalisé avec une lentille asphérique C240TME-C de Thorlabs, de focale 8 mm, avec un traitement anti-réfléchissant adapté à 1550 nm. Le flux de photons peut être atténué par des densités afin d'explorer plusieurs décades de puissance incidente. Le montage est présenté sur la figure 5.14.

Étude en polarisation

Nous avons soumis la photodiode à des ondes polarisés linéairement mais selon différentes orientations en utilisant la lame demi-onde. La courbe obtenue sur la figure 5.15 suit une variation sinusoïdale de périodicité conforme à celle attendue pour un cristal présenté selon la face [100]. Cependant, le facteur de contraste prévu était de $\frac{1}{1-\frac{\sigma}{2}} \approx 1.6$, σ étant le paramètre d'anisotropie du GaAs. Le facteur trouvé ici est plus proche de 1.2. Nous avons donc supposé que le courant observé ici ne pouvait s'expliquer par la simple contribution de l'absorption à deux photons et est parasité là encore par un courant PASRH.

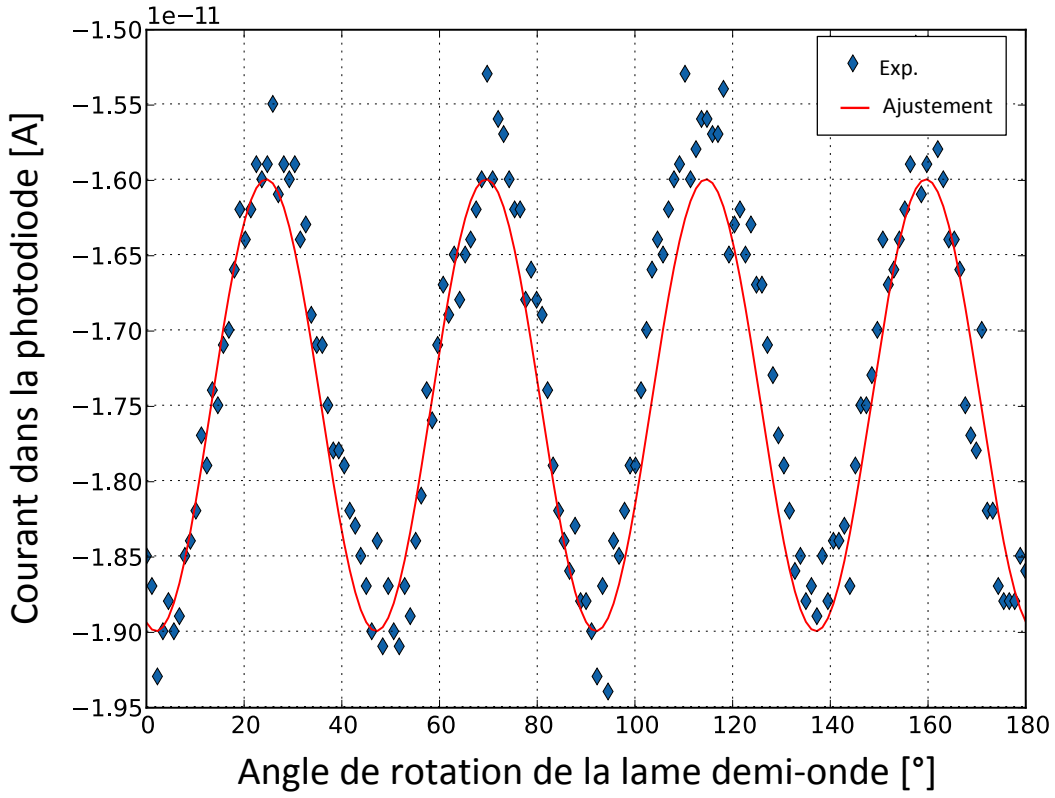


FIGURE 5.15 – Comportement de la photodiode en gaAs pour différentes polarisations rectilignes incidentes. On retrouve la modulation sinusoïdale attendu, mais avec un coefficient de modulation de 1.2, éloigné de la valeur prévue en théorie, 1.6. Nous avons attribué cette différence au parasitage du signal non-linéaire par le signal PASRH, insensible à la polarisation.

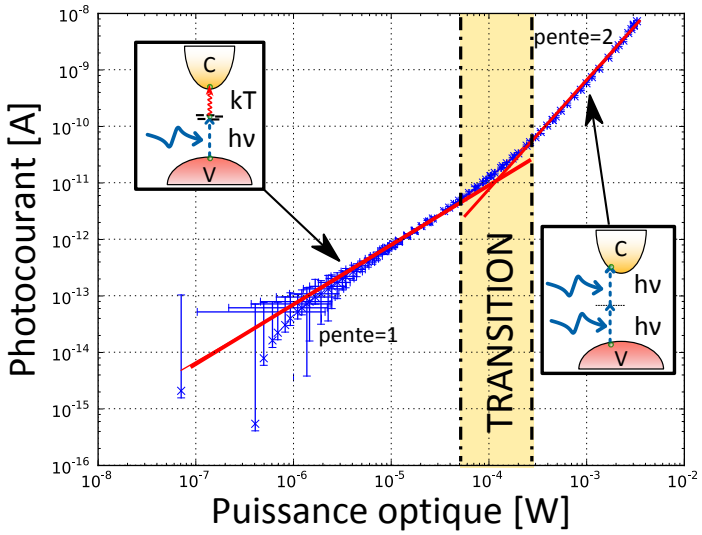


FIGURE 5.16 – Caractéristique IP d'une photodiode commerciale GaAs, faisant apparaître la transition entre un régime linéaire à bas flux et un régime de D2PA à puissance optique plus importante.

Caractéristique I-P en régime nanoseconde

Le courant total est mesuré dans la jonction sous illumination, pour des puissances moyennes variant de quelques mW à quelques μW. On en soustrait le courant d'obscurité, situé à un niveau autour de 60 pA. La courbe de la figure 5.16 présente l'évolution du photocourant dans la jonction en fonction de la puissance incidente.
On y observe clairement deux régimes distincts : un régime quadratique de D-2PA au-dessus du mW (la pente de la courbe est de 2 en échelle logarithmique), et un régime linéaire (pente de 1) au-dessous de 100 μW.

Selon toute vraisemblance, à bas flux, un processus analogue au cas du silicium autorise l'absorption de photons un par un et donne naissance à un photocourant. Ce dernier est faible, l'efficacité du processus étant de l'ordre de 10^{-8}. Mais l'absorption à deux photons étant un processus non-linéaire du 3e ordre, intrinsèquement peu efficace, on comprend naturellement qu'il existe un seuil en deçà duquel il y a compétition entre les deux phénomènes, même dans le GaAs, aux propriétés non-linéaires plus fortes, mais dont la maturité du matériau est moins aboutie que celle du silicium.

La question désormais est donc de comprendre comment faire dominer les processus non linéaires de D-2PA et ND-2PA sur l'absorption à un photon. Nous nous sommes penchés sur la dépendance temporelle de l'absorption à un photon, en faisant l'hypothèse que ce processus n'est effectivement sensible qu'au nombre moyen de photons. A l'inverse, le

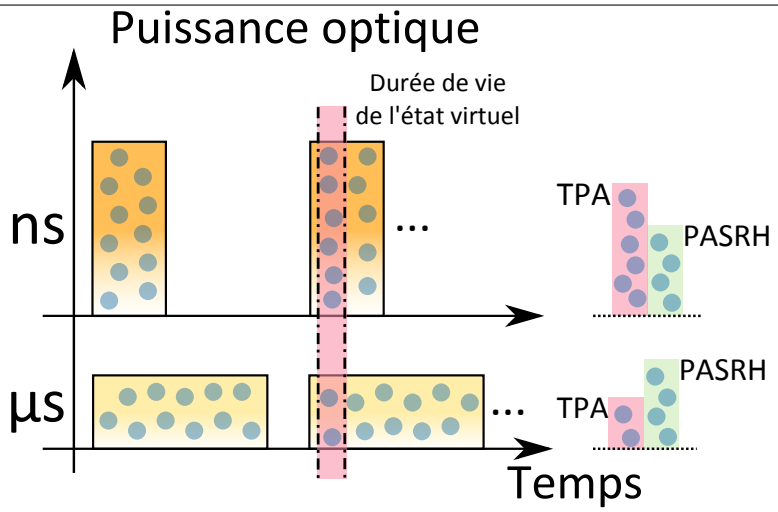


FIGURE 5.17 – Influence du régime temporel dans la compétition entre régimes linéaire et non-linéaire

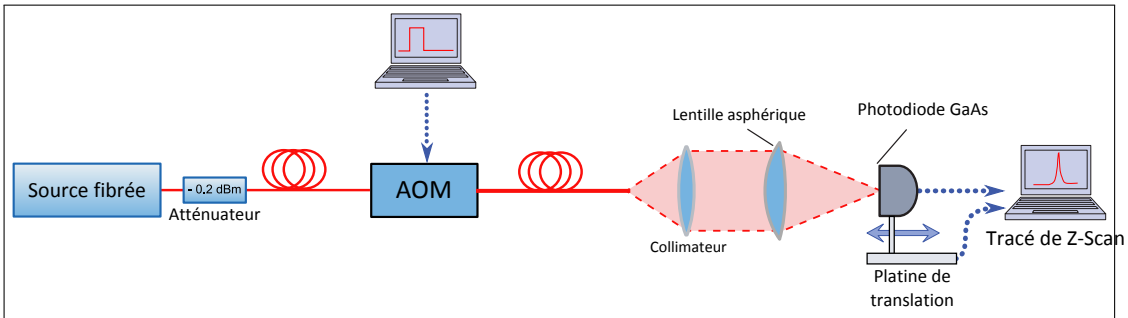


FIGURE 5.18 – Montage utilisé pour explorer la réponse du détecteur en régime microseconde

processus de D-2PA, quadratique en puissance optique, peut être optimisé ou dégradé en modifiant l'intensité crête atteinte par nos sources, à puissance moyenne constante, c'est-à-dire en faisant varier la concentration temporelle et spatiale d'un même nombre de photons (voir figure 5.17).

Extension de l'absorption linéaire en régime microseconde

Nous nous plaçons en régime microseconde. La source TUNICS à 1.55 μm est couplée à un modulateur acousto-optique (AOM) qui va hacher le flux lumineux pour découper des impulsions de 1 μs à un taux de répétition de 150 kHz (montage présenté sur la figure 5.18).

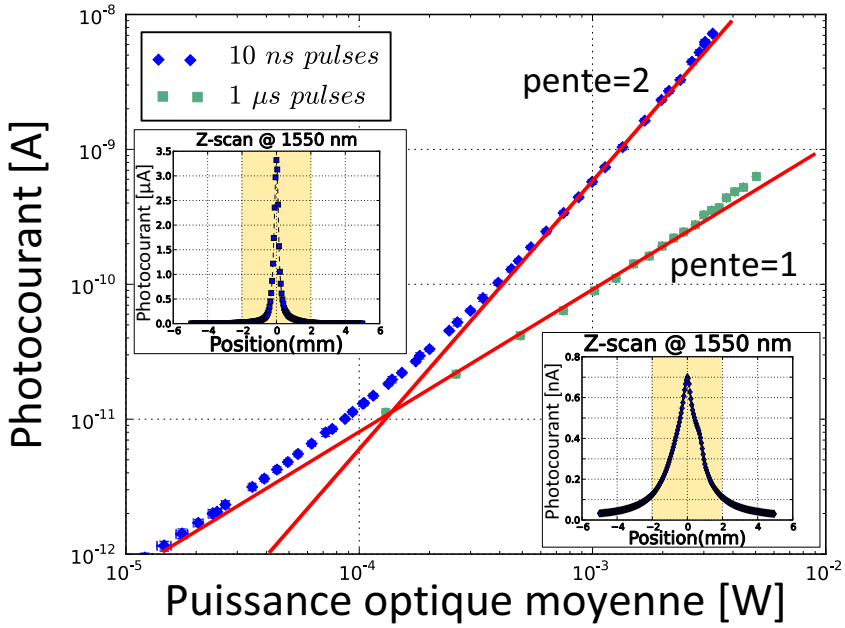


FIGURE 5.19 – Comparaison des régimes nanoseconde et microseconde à puissance moyenne analogue pour la compétition entre TPA et PASRH.

Nous pouvons donc là aussi explorer quelques décades de puissance moyenne optique, et comparer le comportement du détecteur en régime nanoseconde (OPO) et en régime microseconde (AOM), dans des configurations géométriques similaires. Les inserts de la figure 5.19 présentent les Z-scans effectués pour aligner notre banc. On y pressent déjà la différence de pureté des régimes : dans le cas nanoseconde, la forme lorentzienne est facilement observable alors qu'elle est perdue dans le cas microseconde. Le graphe montre la prédominance de l'absorption à un photon sur le D-2PA dans un régime microseconde où les intensités crêtes atteintes sont moins favorables à l'absorption de paires de photons. On peut donc en déduire plus facilement dans ce régime une efficacité quantique associée : $\eta^{1ph} = [6.1 \pm 0.6].10^{-8}$. On évalue le coefficient de D-2PA $\beta_{2D-2PA}^{GaAs} = 45.4 \pm 7.5$ cm/GW, en accord raisonnable avec la littérature. Le résultat obtenu ici est sensiblement plus grand que le coefficient mesuré lors des expériences avec la photocathode, ce que nous pouvons expliquer avant tout par le changement de détecteur et donc de processus de détection.

Conclusion

Ce chapitre illustre la limite principale à surmonter pour accéder à des régimes de détection à deux photons adaptés à la détection de photons infrarouge : le niveau de détection sub-gap à un photon.

Ce processus entre en compétition directe avec l'absorption à deux photons non-dégénérés : en effet, il sera question d'utiliser des photons d'énergie la plus proche possible du gap pour accentuer la dissymétrie des énergies photoniques mises en jeu. C'est l'avantage de la ND-2PA sur la D-2PA. Or, procéder ainsi, c'est s'attendre à une densité de niveaux pièges importante, dans la queue d'Urbach par exemple.

C'est le cas notamment de la diode PIN, qui présente naturellement des surfaces, des interfaces, des ruptures de symétrie et des défauts qui sont à même de peupler un continuum d'états sur lesquels se basera la détection parasite. La compréhension de ce mécanisme de détection parasite a fait l'objet d'une publication dans *Applied Physcis Letters* [Vest 13]. Même dans un détecteur très sensible comme un photocompteur, si le régime non-linéaire est pur très profondément dans le gap à 1.55 μm, ce n'est pas le cas pour des longueurs d'onde plus courtes.

Le meilleur moyen pour s'en convaincre est de jeter un œil à la figure 5.20. Elle présente la réponse spectrale du photocompteur et de la photodiode en GaAs, telle qu'explorée par un laser super-continuum délivrant des impulsions de 20 ns à 25 kHz, et filtré spectralement par monochromateur HORIBA H10. Dans les deux dispositifs, on mesure une réponse sub-gap quantitative, mais il faut pousser l'étude plus loin que ces deux graphes pour comprendre l'origine physique du photocourant, qui n'est pas nécessairement une conséquence de l'absorption de paires de photons. En améliorant l'efficacité des mécanismes à deux photons, nous ferons émerger naturellement la contri-

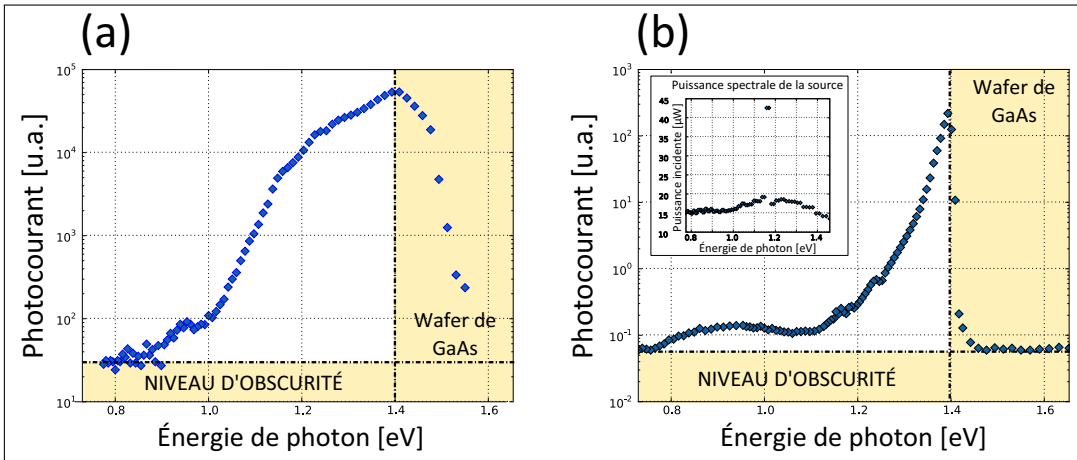


FIGURE 5.20 – Réponse spectrale (a) du photocompteur et (b) de la photodiode en GaAs pour des énergies de photon inférieures à la bande interdite. La réponse se prolonge quasiment jusqu'au mi-gap. En insert de (b), la puissance incidente telle que fournie par un laser à super continuum. A part un point aberrant, le reste de la caractéristique est constant.

bution non-linéaire au-dessus du linéaire. La maximisation de ces effets doit se faire par un biais général : l'augmentation des intensités optiques mises en jeu, que ce soit par la concentration temporelle ou bien spatiale de la lumière.

En ce qui concerne la concentration temporelle, nous pourrons utiliser dans nos expériences des sources impulsionnelles qui feront grimper les intensités crêtes. Dans les chapitres suivants, nous nous intéresserons aux possibilités qu'offrent les nanostructures pour augmenter le confinement spatial du champ électromagnétique, et comment nous les avons mises en œuvre pour améliorer l'efficacité de la D-2PA et la ND-2PA.

I coulda had class. I coulda been a contender. I coulda been somebody, instead of a bum, which is what I am, let's face it.

Marlon Brando
Sur les Quais
de Elia Kazan

Chapitre 6

Absorption non-dégénérée en régime continu

Les chapitre précédents ont montré comment le signal de pompe peut être parasité par sa propre absorption linéaire sub-gap. Il reste toutefois possible d'influer sur le signal, qui reste indépendant de la pompe : c'est ce que j'explore dans ce chapitre, où je mène des expériences d'absorption sub-gap à deux faisceaux dans les mêmes détecteurs que ceux étudiés précédemment. Nous verrons ici comment l'absorption linéaire de la pompe influe sur le signal non-dégénéré, c'est-à-dire le courant généré uniquement en présence de deux sources de photons différentes, et nous tenterons d'identifier un régime de fonctionnement pratique (en termes de RSB).

6.1 Absorption non-dégénérée en régime de comptage

Nous utilisons deux sources laser : une première source CW à 1064 nm, d'une puissance nominale de 6mW, et une source également CW à 2.2 μm, mais plus puissante, autour de 50 mW.

Les deux faisceaux qui en sont issus sont recombinés à l'aide d'un miroir dichroïque et focalisés sur le photocompteur, protégé par un wafer épais (500 μm) de GaAs (figure 6.1). La focale de la lentille utilisée est de 40 mm, et pour faciliter l'alignement, deux diaphragmes sont utilisés. Au final, l'ouverture numérique exploitée de notre optique est faible, de l'ordre de 0.05. Les taches attendues sont donc plutôt étalées, de l'ordre de 60 μm de diamètre. La mesure du flux incident se fait à l'aide d'un calorimètre Ophir 3A.

Dans cette configuration, les photons de pompe possèdent une énergie équivalente à 80% de la largeur de bande interdite, et ceux du signal sont à 40 % du gap. La somme des deux photons dépasse donc largement le seuil nécessaire pour l'absorption non-dégénérée. Le rapport de dissymétrie entre les deux photons est de 2.

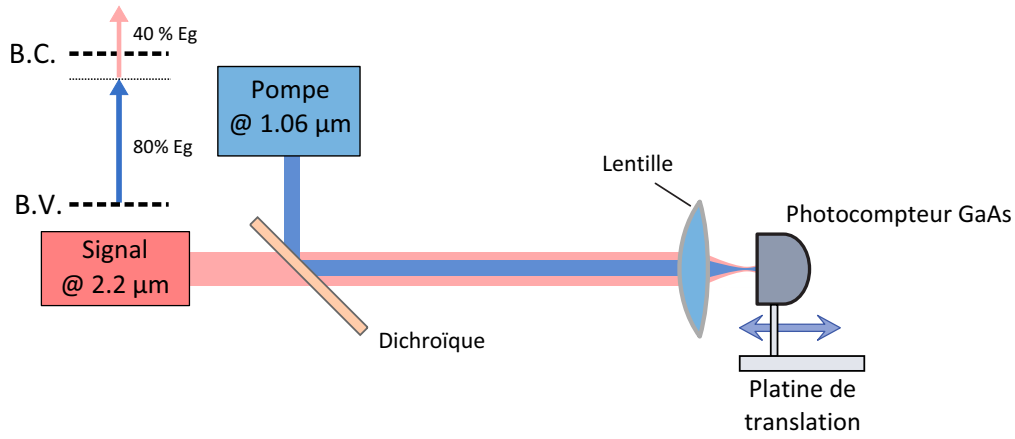


FIGURE 6.1 – Expérience d'absorption non-dégénérée dans le photocompteur.

6.1.1 Comportement de la pompe seule à 1064 nm

Caractéristique I-P

Nous commençons par mesurer la caractéristique I-P de la pompe (figure 6.2). Le diagnostic est sans appel : à 1064 nm, soit à 80% de l'énergie de gap du GaAs, la réponse du photocompteur est linéaire sur la gamme de puissance incidente mesurable par le calorimètre. Dans cette configuration géométrique, et à température ambiante, c'est donc le PASRH qui domine, même aux plus hautes puissances de pompe.

Un écart à la linéarité est observable, la pente de la courbe semblant inférieure à 1 : on peut l'attribuer, comme précédemment, à l'approche progressive de la saturation pour un nombre élevé de coups de détection.

Le détecteur utilisé est très sensible, alors qu'une mesure fiable du flux incident à l'aide du calorimètre n'est fiable qu'au-dessus d'un niveau minimal de puissance (de l'ordre de la centaine de μW). Nous souhaitons considérer des puissances optiques suffisamment faibles pour descendre jusqu'à des niveaux très bas de cps. Le régime non-linéaire n'étant pas présent pour les plus hautes puissances de pompe qui sont accessibles pour ce montage, on considèrera donc que le comportement linéaire du détecteur est vérifié pour tout niveau de pompe incidente. Ceci nous permet de réindexer les abscisses des courbes qui suivent en nombre de coups de détection par seconde, et non plus en mW.

Fluctuations et RSB associés à la détection de la pompe

Nous poursuivons l'étude du comportement de la pompe à 1064 nm en traçant la variance des fluctuations et le RSB associés à la détection de la pompe en fonction du niveau de pompe (figure 6.3). Nous pouvons ainsi descendre en pratique quasiment au

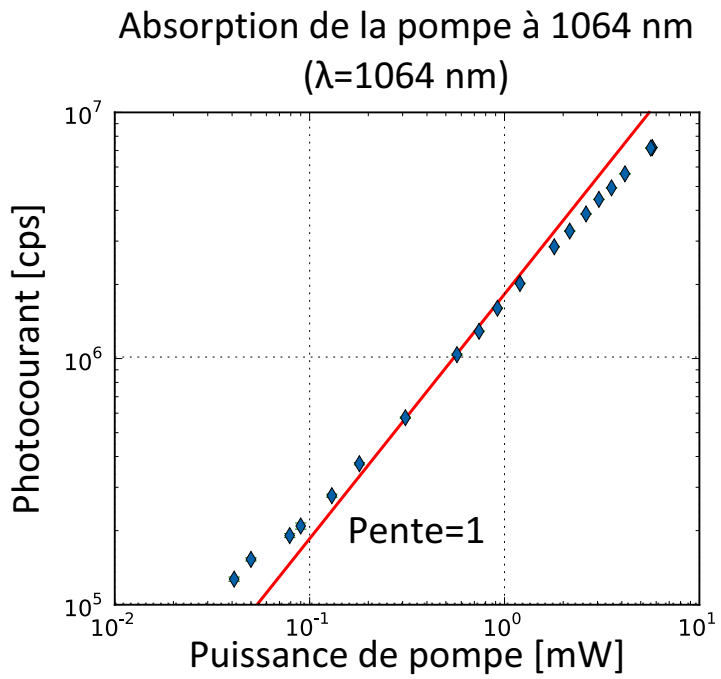


FIGURE 6.2 – Absorption linéaire de la pompe à 1064nm dans le photocompteur.

niveau de coups d'obscurité de l'appareil, autour de 100 cps. Le tracé montre une évolution linéaire de la variance sur 4 décades, ce qui se traduit par un RSB évoluant en racine du nombre de coups de détection .

Ainsi, bien que le mécanisme d'absorption soit sub-gap, le courant PASRH de pompe suit la statistique d'une détection linéaire au delà du gap limitée par le bruit de grenaille de la détection : la variance est proportionnelle au flux incident et donc au niveau de pompe. Le tracé du RSB, ratio du courant sur l'écart type des fluctuations est une autre manière de représenter ce résultat. La pente logarithmique $\frac{1}{2}$ traduit là encore ce qui est attendu dans le cas d'une détection linéaire limitée par le bruit de photons.

Bien qu'à 80% de l'énergie de bande interdite du GaAs, le photocompteur détecte donc linéairement les photons qui lui sont procurés, sans qu'il soit possible de percevoir la moindre émergence d'un comportement non-linéaire. La source fonctionnant en régime continu, un passage en régime impulsionnel pourrait faire émerger une contribution significative de l'absorption à deux photons dégénérée. Dans le souci d'optimiser le recouvrement temporel des sources pompe et signal, nous avons maintenu la pompe en régime continu.

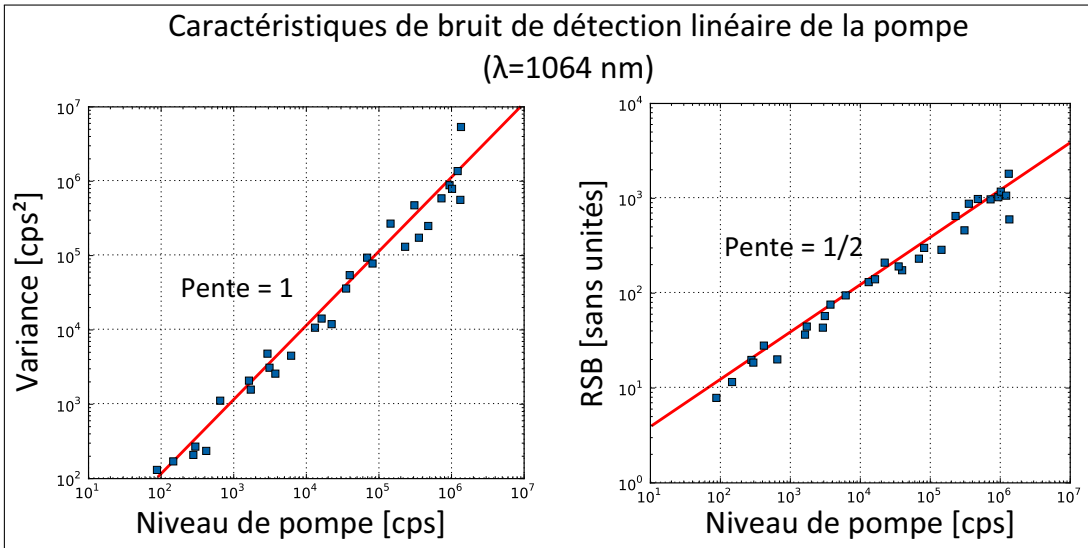


FIGURE 6.3 – Évolution de la variance et du RSB de détection de la pompe dans le photocompteur.

6.1.2 Ajout de la source signal

Nous ajoutons sur le montage la source à 2.2 μm, délivrant des photons d'énergie deux fois moindre que ceux de la pompe. Une longue phase d'optimisation et d'alignement implique la superposition spatiale des deux faisceaux par passage à travers deux diaphragmes. Cette phase est cruciale : la photocathode étant hors d'atteinte, il faut assurer le meilleur recouvrement spatial des faisceaux en amont de la lentille de focalisation.

Cette opération réalisée, on constate en obturant successivement pompe et signal que si les photons à 2.2 μm seuls ne génèrent à peu près aucun coup de photodétection, l'ajout des photons de pompe s'accompagne d'un niveau de photodétection supérieur à celui généré par la pompe seule(voir figure 6.4).

Il y a donc apparition d'une contribution n'existant qu'en présence simultanée de la pompe et du signal, et sensible à l'alignement respectif des deux sources.

Caractéristique I-P

Nous effectuons ensuite une caractéristique I-P d'une part sur la pompe, et d'autre part sur le signal, pour en vérifier la dépendance par rapport aux différents flux de photons incidents.

Le graphe 6.5 présente trois de ces courbes IP. Elles ont été obtenues en faisant varier la puissance de pompe pour trois niveaux de puissance signal fixés. Ces niveaux d'atténuation de la source signal ont été choisis après optimisation du montage, de sorte

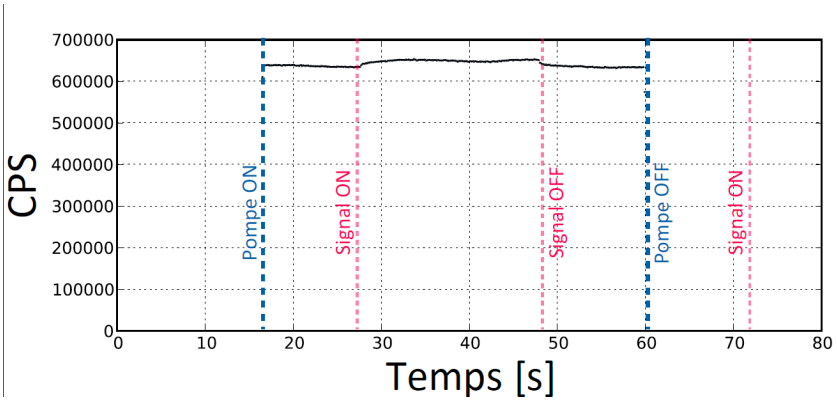


FIGURE 6.4 – Chronogramme du nombre de CPS mesurés par la photocathode avec allumage successif de la pompe et du signal. La pompe génère seule un niveau de détection autour de 630 000 cps. L'ajout du signal fait augmenter ce chiffre jusqu'à 650 000. La source signal est présente seule à partir de $t = 72$ s : le niveau de CPS alors mesuré est alors identique au nombre de coups d'obscurité.

à obtenir des offsets correspondant à 100%, 50% et 10% du niveau de PASRH une fois le signal à 2.2 μm rajouté. Le photocourant tracé correspond à la soustraction du courant obtenu par la pompe seule au niveau de courant en présence des deux sources.

Les trois courbes présentent un régime d'évolution linéaire, confirmant la proportionnalité attendue avec l'intensité de pompe sur 4 ordres de grandeur. A nouveau, les courbes ont été indexées par le niveau de pompe exprimé en cps, afin d'atteindre les seuils de détection les plus bas possible. L'offset apporté par le signal est suffisamment important pour provoquer le franchissement du seuil de saturation à haute puissance de pompe, induisant à nouveau un écart à la linéarité.

La situation symétrique a été étudiée, à savoir faire varier continûment le niveau de signal à différents niveaux de pompe fixés. Comme le signal seul ne provoque pas d'absorption dans le détecteur, il n'est pas possible d'utiliser le photocompteur lui-même pour calibrer le flux de photons signal. Nous nous sommes donc contentés d'utiliser le calorimètre sur une plage plus réduite de variation de la puissance optique, autour de 2 décades. La figure 6.6 présente des tracés effectués pour 4 niveaux de pompe différents séparés d'un ordre de grandeur chacun.

Quel que soit le niveau de pompe, la linéarité du photocourant est vérifiée sur toute la gamme de puissance explorée. Ce graphe permet donc de confirmer que l'offset identifié se comporte linéairement avec les deux sources de photons, signal et pompe : selon toute vraisemblance, ceci désigne une contribution de ND2PA à la génération de photocourant. Ce signal ND2PA est donc observable en présence de PASRH, et son amplitude peut atteindre celle de ce dernier :

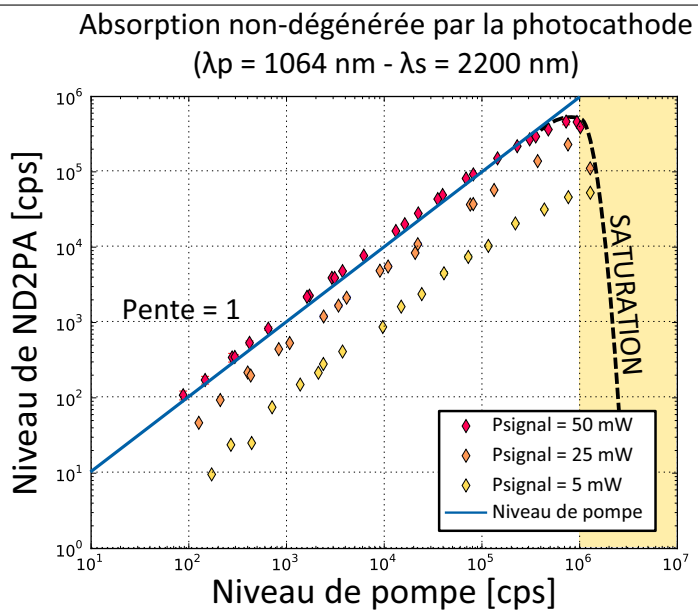


FIGURE 6.5 – Caractéristiques I-P à pompe variable, pour différents niveaux de puissance du signal à 2200 nm, dans le photocompteur.

$$\alpha_{PASRH} I_p \approx \beta_{sp} I_s I_p \tag{6.1}$$

Ceci semble cohérent, puisque le niveau de puissance signal peut être important (allant jusqu'à 50 mW), même plus important que celui de la pompe (autour de 5 mW). De plus, le ND2PA est intrinsèquement plus efficace que le D2PA de la pompe à 1064 nm. Nous avons donc une configuration où ND2PA et PASRH sont comparables, alors que le D2PA est bien plus faible.

Fluctuations et bruit

Nous nous penchons maintenant sur les fluctuations liées au signal ND2PA émergeant du PASRH de pompe, en fonction de l'intensité de pompe et de l'intensité signal.

Le photocourant considéré est le niveau d'offset tel qu'il a été présenté dans le paragraphe précédent.

En fonction de la pompe Les graphes de la figure 6.7 présentent la variance des fluctuations des photocourants étudiés un peu plus haut, à nouveau indexés par rapport au niveau de pompe incident.

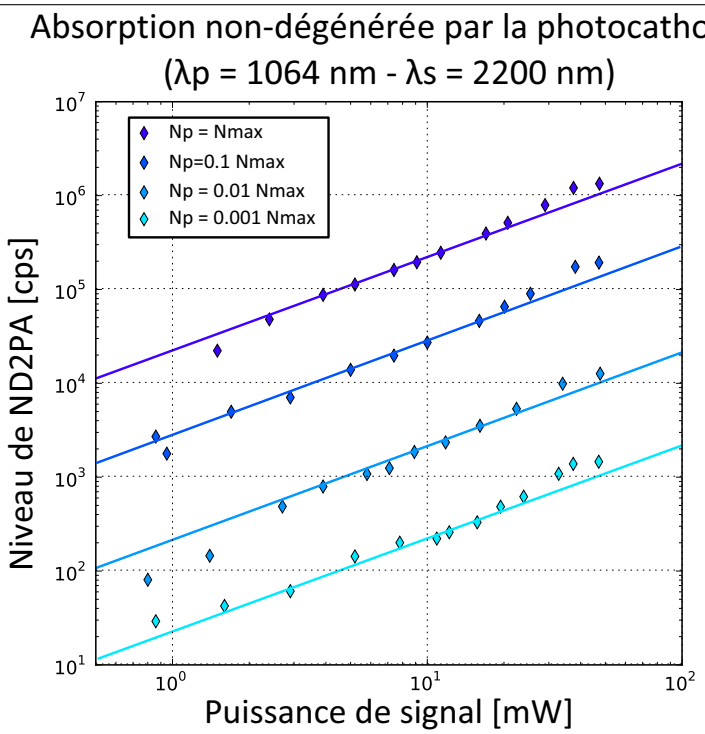


FIGURE 6.6 – Caractéristiques I-P du photocompteur, le niveau de signal étant cette fois variable, et la pompe fixe.

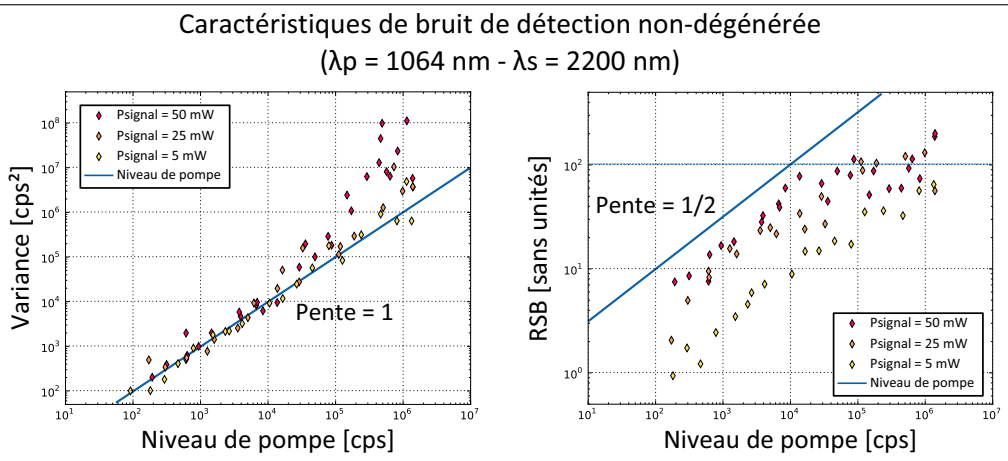


FIGURE 6.7 – Comportement des fluctuations du signal ND-2PA dans le photocompteur en fonction du niveau de pompe, pour trois puissances optiques de signal, dans le photocompteur.

Sur la quasi-totalité de la gamme de puissance explorée, les fluctuations totales sont sensiblement égales à celles associées à la pompe incidente seule. Seule la dernière décade pointe une augmentation significative des fluctuations, à pompe et signal intenses. Phénomène que nous relions à l'approche du seuil de saturation. Nous pouvons aussi supposer que des effets thermiques sont susceptibles d'influer sur la qualité de la détection.

Le dernier graphe nous donc d'observer que c'est le bruit de la pompe qui va pour l'essentiel dicter la variance des fluctuations, même pour des amplitudes comparables de ND-2PA et de PASRH.

La figure 6.7 présente également l'évolution du RSB de détection non dégénérée en fonction du niveau de pompe. Mais si cette dernière limite le niveau total des fluctuations, elle ne le fait pas par le biais de l'absorption dégénérée de la pompe, non-observée, mais par celui du signal linéaire PASRH. Ainsi, l'évolution du RSB est analogue à celle d'un processus de détection linéaire, en racine du flux incident.

L'apparition du régime de saturation contribuant à la fois à limiter le nombre de coups mesurés tout en augmentant le niveau de bruit, le RSB présente une limite atteinte en régime de pompe et de signal intenses, autour d'une valeur de 100.

En fonction du signal La même étude menée en faisant varier le niveau de signal confirme les observations précédentes (figure 6.8). Les régimes observés montrent une limitation des fluctuations par la pompe, qui restent ainsi relativement indépendantes du niveau de signal. C'est à nouveau dans un régime de haute intensité pompe et signal que l'on observe la même saturation du RSB liée à l'émergence d'une contribution non-linéaire aux variations des fluctuations : l'influence de fluctuations thermique est rendue visible par la visualisation d'une dérive lente et marquée lors de l'acquisition des mesures. La prédominance des fluctuations de pompe sur le ND2PA a une conséquence intéressante sur le RSB, qui évolue linéairement avec la puissance de signal. Nous avions auparavant supposé que cette évolution était à prévoir lorsque le bruit était limité par la pompe, c'était toutefois dans le cas d'une limitation par la D-2PA.

6.2 Dans des photodiodes PIN

Nous réitérons la même série d'expériences, cette fois dans la photodiode PIN en GaAs déjà étudiée dans le chapitre précédent. La première étape consiste à analyser la réponse de la photodiode à la pompe à 1064 nm.

6.2.1 Différents régimes d'absorption

La photodiode que nous utilisons étant, plus facilement remplaçable que notre photocompteur, nous prenons le risque de la soumettre à une illumination très intense : un

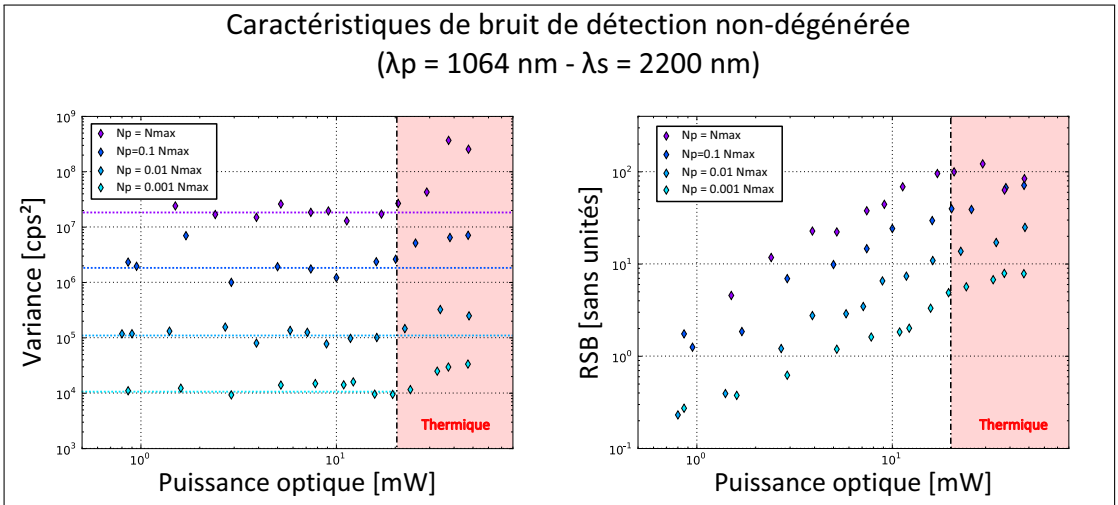


FIGURE 6.8 – Comportement des fluctuations du signal ND-2PA en fonction de la puissance optique de signal, pour différents niveaux de pompe. Lorsque le signal est trop intense, des effets thermiques augmentent sensiblement le niveau de bruit et détériorent le RSB.

laser picoseconde délivrant des impulsions de 8 ps à un taux de répétition de 76 MHz, et atteignant jusqu'à 300 mW de puissance moyenne est focalisé à l'aide d'une lentille asphérique sur la photodiode. Les graphes de la figure 6.9 présentent les I-P associées à l'expérience, effectuées à trois endroits de ce Z-scan.

On confirme donc que pour ce régime temporel, la réponse de la photodiode à 1.06 μm est purement non-linéaire. A l'aide du Z-scan, on peut identifier le coefficient d'absorption non-linéaire à cette longueur d'onde : $\beta_{D-2PA}^{GaAs} = 8$ cm/GW, ce qui est conforme à la littérature et aux résultats des chapitres précédents.

Nous mettons de côté les régimes impulsionnels de pompe pour mettre à contribution notre laser CW, ce qui a pour conséquence directe de diminuer considérablement l'intensité optique instantanée (figure 6.10). La caractéristique I-P montre sans détours que le comportement du détecteur est alors linéaire pour les presque deux décades supérieures de puissance optique accessible. On se retrouve dans une situation absolument similaire au photocompteur avec une pompe dont la contribution prédominante est celle de l'absorption par les défauts.

Cependant, les résultats portant sur le bruit de détection sont particulièrement surprenants. A très bas flux de pompe, la photodiode présente un bruit propre, indépendant de la puissance du flux lumineux. Le détecteur n'est alors pas limité par le bruit de la scène. Le bruit de détection qui émerge puis prédomine à plus haut niveau de pompe présente des fluctuations de variance quasiment quadratiques avec la puissance de pompe,

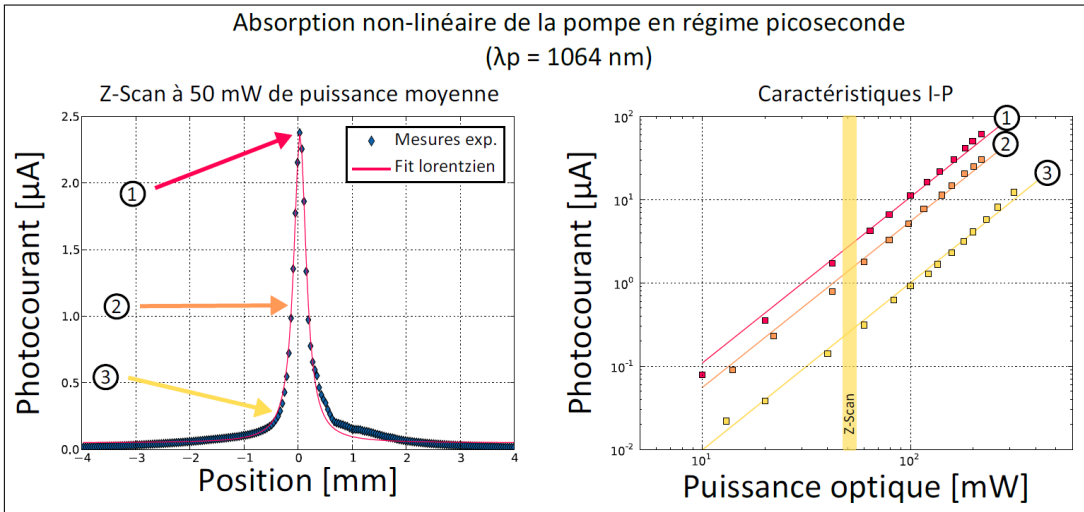


FIGURE 6.9 – Z-scan en régime picoseconde effectué à 1064 nm sur la photodiode GaAs. Les flèches indiquent les abscisses de réalisation des trois caractéristiques I-P de droite.

ceci sur deux ordres de grandeur.

Le RSB évolue donc linéairement avec la pompe tant que le détecteur est limité par son bruit propre, puis cette évolution se tasse soudainement alors que le niveau de bruit augmente considérablement. Le mécanisme de détection sub-gap est donc en toute vraisemblance d'une autre nature que celui obsservé dans le photocompteur, et s'accompagne d'un bruit plus important.

6.2.2 Ajout de la source signal

Signal non-dégénéré

La superposition du faisceau signal introduit un offset par rapport au niveau de pompe. Cet offset est toutefois bien plus modeste que dans le cas du photocompteur. La figure 6.11(a) présente trois caractéristiques I-P obtenues à différents niveaux de signal. Toutes présentent un comportement globalement similaire : une augmentation linéaire du signal ND2PA avec la puissance de pompe, qui tend à "saturer" progressivement vers les hautes intensités de pompe. On notera que l'effet est particulièrement prononcé lorsque la puissance optique du signal est basse : localement la pente logarithmique de la courbe descend jusqu'à 0.5 !

A l'inverse, le comportement linéaire attendu est bien plus stable lorsque c'est le signal qui varie, pour différents niveaux de pompe fixés (figure 6.11(b)).

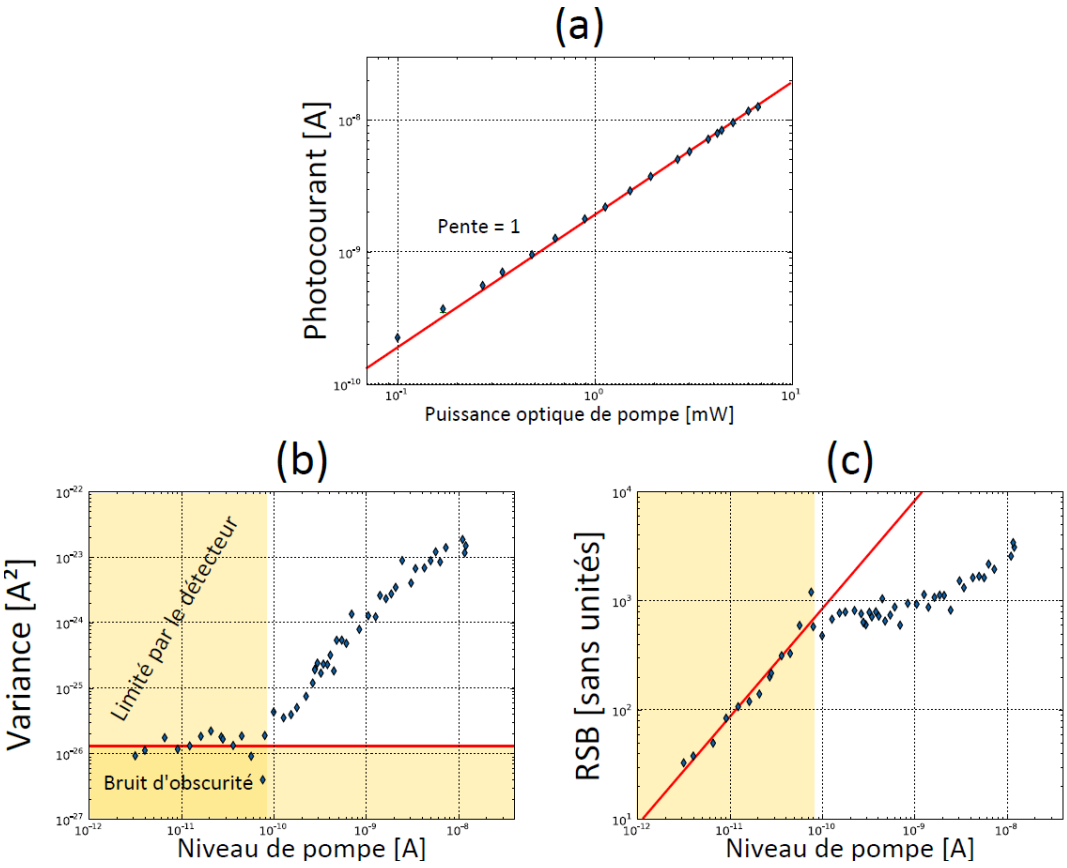


FIGURE 6.10 – Résultats de l'étude de l'absorption de la pompe à 1064 nm en régime continu dans la photodiode. L'absorption est linéaire, et le bruit fait apparaître un régime de limitation par le détecteur, et un régime limité par le bruit de détection de la pompe.

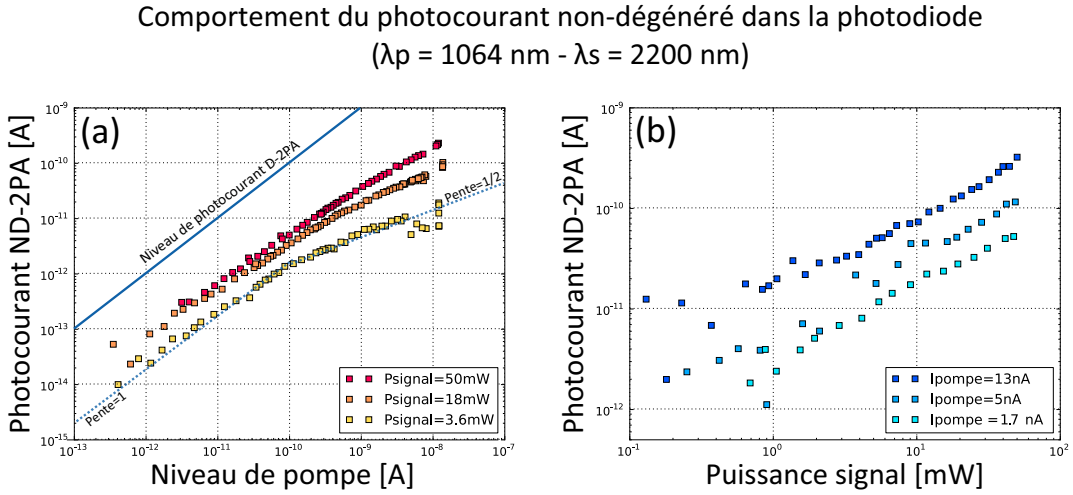


FIGURE 6.11 – Dépendance en puissance du signal ND2PA avec (a) la pompe et (b) le signal, dans la photodiode.

Fluctuations et bruit

Toujours en fonction du niveau de pompe, on trace cette fois la variance des fluctuations du signal ND2PA, ainsi que le RSB associé, sur la figure 6.12.

Les courbes de variance ont des comportements similaires. A bas niveau de pompe, on remarque que le niveau de fluctuation n'est pas le même. C'est le signe de l'influence résiduelle du signal à 2.2 μm, qui se manifeste principalement par un biais : une action thermique d'autant plus conséquente que la puissance optique est élevée. L'obturation de la source signal en l'absence de pompe rend particulièrement visible la dérive en photocourant associée à l'échauffement du système.

A chaque puissance sélectionnée du signal, on peut donc considérer un niveau de « bruit d'obscurité »différent. La prédominance de ce bruit vis-à-vis des autres contributions potentielles de fluctuations définit un premier régime de détection limitée par le détecteur. Les trois caractéristiques émergent pour définir un régime BLIP pour des niveaux de pompe de l'ordre de 0.1 nA. Progressivement, on atteint le régime linéaire d'évolution des fluctuations qui est gouverné par le niveau de la pompe, comme vu à la section précédente.

L'action conjuguée de l'essoufflement du signal ND-2PA et du bruit de pompe à haut niveau de pompe d'une part, et de l'échauffement induit par l'intensité de la source signal d'autre part, dégrade considérablement le rapport signal à bruit de détection non-dégénérée. Les points de mesure montrent ainsi l'existence d'un rapport signal à bruit optimal qui ne se situe ni à pompe maximale, ni à signal maximal, dont la valeur tourne autour de 70 : c'est tout-à-fait suffisant pour considérer que la détection est efficace. Mais

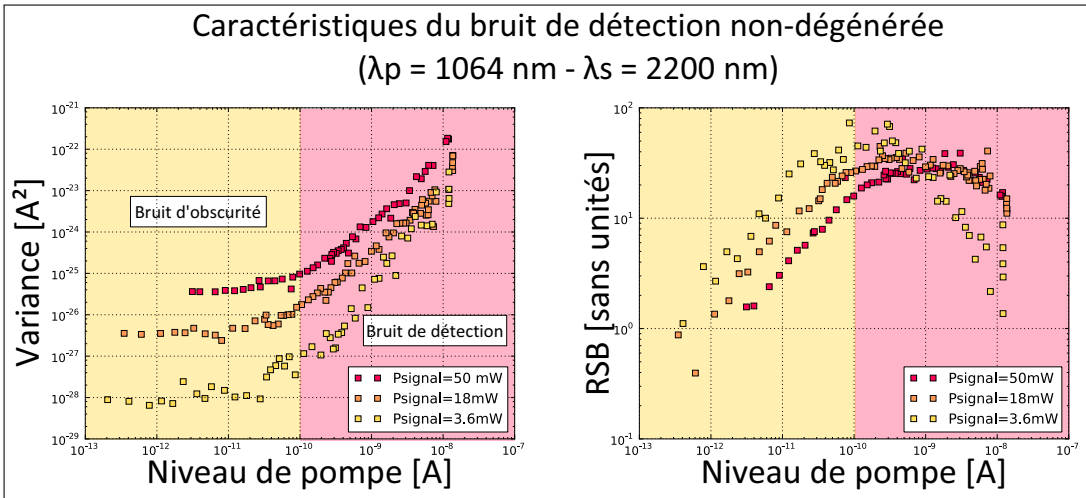


FIGURE 6.12 – Variance et RSB associés à la détection non-dégénérée en régime continu.

les comportements observés sont sujet à beaucoup d'interrogations, et nous n'avons pas été en mesure de comprendre le comportement du bruit associé à la pompe.

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons pu observer des signaux de détection dégénérés, impliquant des sources laser d'énergies de photon relativement dissymétriques. Malgré l'absorption linéaire de la pompe dans nos deux détecteurs (photocompteur et photodiode PIN), il a été possible de voir émerger un signal non-dégénéré, dont l'amplitude est même comparable avec au niveau de pompe dans le cas du photocompteur. La détection linéaire de la pompe n'est donc pas une limite infranchissable pour autoriser la détection du signal non-dégénéré.

Les caractéristiques de bruit mesurées ont confirmé que lorsque le détecteur n'est pas limité par son bruit intrinsèque, la pompe est généralement la source dominante de bruit, et le RSB reste alors généralement linéaire avec l'évolution du signal. Cependant, les comportements respectifs de la photocathode et de la photodiode sont sensiblement différents, semblant indiquer que les bruits ont des origines différentes dans chacune des configurations.

Chaque détecteur présente ainsi une évolution du rapport signal à bruit qui permet d'espérer une détection efficace de signal en s'éloignant de certains régimes « pathologiques », dont celui de trop grandes intensités de pompe ou de signal, risquant ainsi l'échauffement du détecteur.

Quatrième partie

Nanostructures pour l'exaltation de l'absorption à deux photons

Les mensonges de ceux qui nous aiment sont leurs plus belles preuves d'amour.

Catherine Deneuve
Dans la Cour
de Pierre Salvadori

Chapitre 7

Concepts de nanostructures pour l'exaltation de l'absorption à deux photons dégénérée

La 2PA est un processus intrinsèquement peu efficace, en tout cas dans les photodétecteurs conventionnels. Les intensités qui doivent être mises en jeu pour obtenir un courant mesurable (autour de 1 nA) dans une jonction standard en semi-conducteur sont considérables, incompatibles sur le papier avec les flux de photons IR que nous envisageons à terme de détecter (de l'ordre du nW).

Pour s'en convaincre, effectuons un petit calcul. Le photocourant créé dans un milieu de coefficient d'absorption à deux photons dégénérée β_{D-2PA} est donné par :

$$i^{ph}_{D-2PA} = \frac{q\lambda}{2hc}\frac{L}{S}\beta_{D-2PA}P^2 \tag{7.1}$$

où q désigne la charge de l'électron, λ la longueur d'onde, L la longueur d'interaction, S la section de la zone de détection, et P la puissance optique incidente. Prenons une photodiode PIN en GaAs avec une longueur de la zone intrinsèque $L = 10\ \mu\text{m}$, une section $S = 0.01\ \text{mm}^2$, et une puissance de 1 mW, le calcul donne $i^{ph}_{D-2PA} = 14$ fA : c'est extrêmement faible, alors que ce calcul ne fait pas intervenir un certain nombre de contraintes à même de dégrader par exemple la collection des photoporteurs. Et pour cause, le rendement quantique de génération associé à cette configuration est donné par $\eta = \frac{\beta PL}{2S} = 1.10^{-11}$. En comparaison, les rendements quantiques associés à la détection super-gap de photons peut facilement dépasser 10^{-1}... soit 10 ordres de grandeur de mieux !

Toutefois, nous savons que la question de l'efficacité de la détection ne se limite pas à l'efficacité du processus : en effet, nous avons pu voir que la figure de mérite d'importance

reste le RSB. Et à efficacité de processus faible, il reste toujours la possibilité d'augmenter l'intensité de pompe pour augmenter la contribution du signal non-dégénéré (voir l'équation 4.48) :

$$RSB_{sp} = \phi_s \frac{\beta_{sp}}{\beta_{pp}} \sqrt{\frac{\phi_p^2}{\langle \phi_p^2 \rangle}} \tag{7.2}$$

Dans ces conditions, le RSB ne dépend plus que du produit $\beta_{sp}\phi_s$ que l'on peut interpréter comme désignant le niveau de signal non-dégénéré : l'objectif est donc de maximiser ce terme pour s'assurer que $RSB_{sp} > 1$. Dans les lignes qui suivent, je présente les réflexions et les résultats issus de travaux portant sur la conception de nanostructures pour la détection à deux photons, visant à atteindre ce but.

7.1 Démarche de conception de cavités résonantes pour la détection à deux photons

7.1.1 État de l'art de la détection à deux photons dégénérée

Dans une large mesure, de nombreuses technologies exploitent l'absorption à deux photons dégénérée, et sont confrontées au problème de l'efficacité du processus. Plusieurs stratégies sont envisageables pour obtenir un signal important. Elles peuvent être résumées en interprétant l'équation 7.1. Tout d'abord il est possible d'appliquer un gain au photocourant généré : c'est la solution exploitée par les photodiodes à avalanche ou les photomultiplicateurs, en particulier le détecteur Hamamatsu H7421-51 étudié aux chapitres 5 et 6. Chaque porteur généré déclenche une cascade de génération de porteurs secondaires, comme représenté sur la figure 5.3. Le courant mesuré au final est alors conséquent, comme nous avons pu le voir lors de nos différentes expériences. Il faut dire que ces détecteurs sont conçus pour détecter jusqu'à des photons uniques : le très faible rendement des processus à deux photons replace donc ces détecteurs comme de bons candidats pour analyser finement le photocourant issu de la 2PA.

Une autre possibilité consiste en l'amélioration de l'interaction non-linéaire elle-même, par exemple en augmentant la longueur d'interaction entre l'onde et la région absorbante. Si l'efficacité locale de génération de photocourant reste faible, la dimension de la zone d'interaction est un bras de levier permettant de fournir un courant quantitatif. C'est l'option choisie par plusieurs équipes effectuant de l'absorption à deux photons dans des guides d'onde. En 2002, Liang et al. ont réalisé un guide en silicium de 17 mm de long, pour effectuer des mesures d'autocorrélation à 1.55 μm [Liang 02]. L'utilisation de structures en silicium permet également d'autres applications, comme la réalisation de portes logiques, réalisées par la même équipe dans des guides de 10 mm de long cette fois [Liang 06]. Enfin, des puits quantiques ont également été intégrés dans des guides d'ondes de 250 microns de long pour observer l'absorption à deux photons [Duchesne 09].

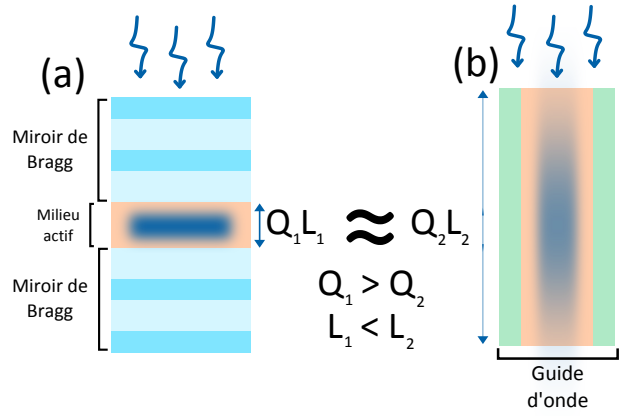


FIGURE 7.1 – Quelques principes de structures pour l'exaltation de l'absorption dégénérée. On augmente les interactions non-linéaires (a) grâce à des miroirs de Bragg qui confinent fortement le champ dans un petit volume, (b) grâce à des guides d'onde qui font interagir la lumière et la matière sur de grandes distances.

Ces exemples sont à l'image des nombreuses possibilités offertes et imaginables pour en optique intégrée pour les processus non-linéaires du troisième ordre [Stegeman 88], en particulier dans le domaine des télécommunications. Par contre, les guides d'onde posent un problème d'encombrement dès lors que les applications visées nécessitent la création des matrices de détecteurs.

Les solutions qui vont plus particulièrement nous intéresser choisissent une autre voie : le volume d'interaction reste limité voire est particulièrement petit, mais les photons sont canalisés dans ce petit volume de semiconducteur intégré dans une structure résonante, ce qui revient à multiplier la longueur d'interaction L par un facteur de qualité Q dans l'équation 7.1 : la longueur « effective »d'interaction devient alors QL : la forte densité d'énergie amplifie les effets non-linéaires. A ce titre, la réalisation de Folliot et al. [Folliot 02b] est particulièrement instructive. Cette équipe du Trinity College a intégré une jonction PIN en AlGaAs (longueur d'onde de coupure à 674 nm) et d'une épaisseur de 270 nm entre deux autres couches formant deux miroirs de Bragg. Le gain sur le coefficient d'absorption à 890 nm est d'environ 12000, mesuré avec un laser Ti :sapphire délivrant des impulsions picoseconde. Pour des puissances moyennes de l'ordre du mW, un photocourant de l'ordre de 100 nA a été mesuré. L'utilisation de miroirs de Bragg est donc l'assurance d'une amélioration très conséquente de l'absorption mais impose une sélectivité extrêmement rigoureuse en terme de longueur d'onde, la largeur spectrale de la résonance de cette microcavité étant d'environ 1 nm. La même remarque est valable pour la tolérance angulaire de cette structure, contrainte là encore par les miroirs de Bragg dont l'effet n'est valable essentiellement qu'en incidence normale.

Les effets de couplage à une cavité ont également été observés par Tanabe et al. en 2010 [Tanabe 10]. Ici, une photodiode PIN en silicium a été intégrée à un cristal photonique présentant un grand facteur de qualité ($Q \approx 10^5$) afin de détecter des photons à 1550 nm par absorption à deux photons. Le photocourant généré est visible pour des puissances aussi basses que 10 nW, et l'efficacité quantique du dispositif peut atteindre $\eta \approx 10\%$. Dans ce type de configuration, les efficacités quantiques sont donc susceptibles d'être comparables à celles proposées par des photodétecteurs pour l'absorption à un photon !

Mais le niveau de ces performances est intimement lié à l'architecture des cavités utilisées, qui délivrent des finesses extrêmement élevées, ce qui se traduit par une tolérance spectrale pour le moins limitée. Si ce n'est pas une limite dans le cadre des applications visées par les équipes précédemment citées, ce n'est pas le cas en ce qui nous concerne : nous souhaitons en effet concevoir un détecteur pour l'imagerie infrarouge, c'est-à-dire requérant une tolérance spectrale et angulaire correcte, donc des cavités présentant des finesses bien moindres.

Tous les exemples cités ci-dessus portent sur l'absorption à 2 photons dégénérée. Concernant la détection à deux photons non-dégénérée, la littérature reste extrêmement pauvre sur le sujet. L'article de référence reste celui de Fishman et al. [Fishman 11] rapportant l'étude de l'absorption extrêmement non-dégénérée dans une photodiode GaN standard. Cette étude a permis de mesurer l'efficacité de ce processus, mais dans un dispositif expérimental éloigné du cadre de notre étude : les sources utilisées sont des sources impulsionnelles femtoseconde, procurant donc des intensités instantanées très élevées. Il est envisageable avec ce dispositif de faire de l'imagerie du faisceau infrarouge utilisé, qui est synchrone avec la pompe visible voire ultraviolette, les deux sources de photons étant générées par une même cascade d'effets non-linéaires. Mais jusqu'à présent et à notre connaissance, il n'est pas fait mention d'un photodétecteur conçu explicitement à des fins de détection à deux photons non-dégénérée pour l'imagerie IR « standard »en régime continu. On note aussi dans la référence [Sarkissian 15] l'utilisation de cristaux photoniques pour des expériences pompe-sonde en configuration non-dégénérée.

7.1.2 Cavités pour la détection à deux photons dégénérée dans l'arséniure de gallium

Nous venons de voir les solutions qui ont été envisagées pour améliorer le rendement de détection à deux photons, et ceci en vue de différentes applications. Lors de mon travail de thèse, j'ai pu m'intéresser aux côtés de Benjamin Portier, autre doctorant de l'équipe MINAO à la conception de photodétecteurs équipés de nanostructures métalliques résonantes pour l'amélioration de l'absorption dégénérée. Cette piste entend tirer profit par exemple de résonances plasmoniques : en structurant les interfaces métalliques à des échelles sub-longueur d'onde, on peut espérer exalter sensiblement le champ électromagnétique en contrôlant ces résonances, et ainsi améliorer la détection à deux photons. Nous avons vu que les solutions à base de guide d'onde présentent un encombrement

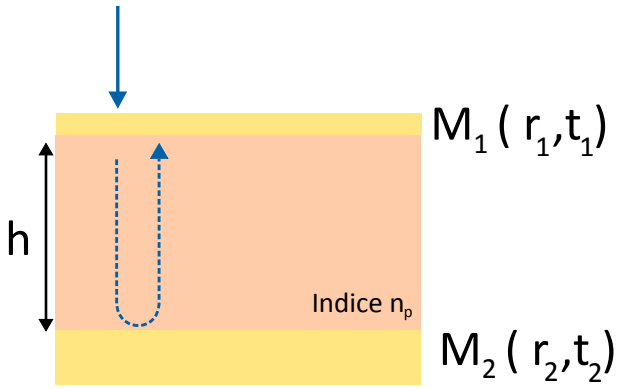


FIGURE 7.2 – Principe d'une cavité résonante non structurée. L'onde incidente traverse le premier miroir semi-transparent. La cavité sélectionne les modes de résonance.

important, tout comme les miroirs de Bragg utilisés dans [Folliot 02a]. La réflectivité importante de métaux comme l'or sur de grandes gammes de longueurs d'onde rend envisageable la fabrication de photodétecteurs beaucoup moins imposants, et dont il est envisageable qu'ils puissent être, à terme, intégrés sur une matrice.

En reprenant des éléments de raisonnement présentés dans [Folliot 02b], je présente ci-dessous quelques dispositifs simples, basés sur une simple cavité semiconductrice entourée de deux miroirs qui ne sont pas structurés. Nous en verrons les performances sur le plan du gain d'absorption à deux photons.

Cavités résonantes non structurées

On étudie une structure formée d'une couche de semiconducteur d'indice n_p et d'épaisseur h. Elle est entourée de deux miroirs, M_1 de coefficient de réflexion et de transmission en amplitude r_1 et t_1, et M_2 caractérisé de la même manière par les coefficients r_2 et t_2.

Prenons une onde d'amplitude E_0 en incidence normale sur cette structure. Elle excitera un mode résonant de la structure seulement si le chemin optique parcouru par l'onde en un aller retour dans la structure est égal à un multiple de sa longueur d'onde, soit : $2n_p h = m\lambda_m$ avec m entier différent de 0. Les modes propagatifs dans cette structure ont alors une constante de propagation $k_z^m = 2n_p\pi/\lambda_m$. Le long de l'axe z, le mode m voit son amplitude évoluer en $\sin(k_z^m z)$. Notre cavité se comporte alors comme un Fabry-Pérot à la résonance, et on peut montrer que l'amplitude E_1^m de l'onde dans la couche semiconductrice au niveau d'un ventre de résonance ($\sin(k_z^m z) = 1$) est égale à $f_m E_0$ avec f_m donné par [Folliot 02b] :

$$f_m = \frac{|t_1|(1+|r_2|)}{1-|r_1||r_2|} \tag{7.3}$$

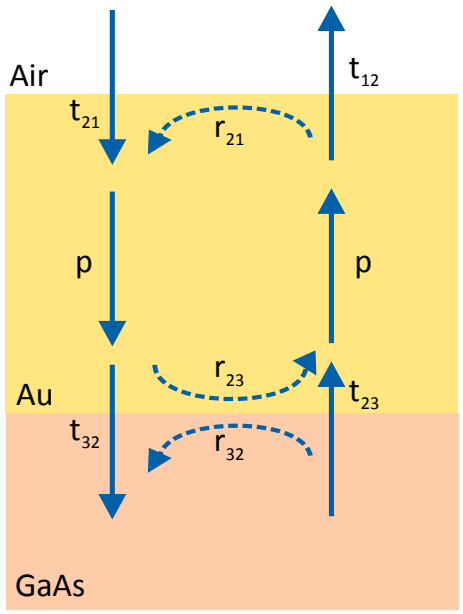


FIGURE 7.3 – Notations pour le calcul de la transmission et de la réflectance du miroir frontal d'or recouvrant la couche de semiconducteur.

On s'intéressera dans la suite uniquement au mode $m = 1$ pour une longueur d'onde fixée λ, donc une cavité de longueur $h = \frac{\lambda}{2n_p}$. Si l'on note l'intensité de l'onde incidente $I_0 = E_0^2/2Z_0$ avec Z_0 l'impédance du vide, l'intensité dans le semiconducteur s'écrit :

$$I(z) = n_p E_1^2 \frac{\sin^2(k_z^1 z)}{2Z_0} = n_p f^2 \sin^2(k_z^1 z) I_0 \tag{7.4}$$

Le photocourant généré est proportionnel à l'intégrale du carré de l'intensité de l'onde :

$$i_{ph} = K \int_0^h I^2(z) dz = \frac{3}{8} n_p^2 f^4 I_0^2 \tag{7.5}$$

où l'on a intégré la fonction $sin^4(k_z^1 z)$ entre 0 et h pour obtenir la valeur $\frac{3}{8}$. Le gain attendu sur le photocourant est donné par $G = \frac{3}{8} n_p^2 f^4$.

Commençons par envisager le cas de miroirs diélectriques, sans pertes. Par exemple, en prenant des miroirs de Bragg de réflectivité $|r_1|^2 = 0.95$ et $|r_2|^2 = 0.995$, on obtient un facteur $G = 2.5 \times 10^4$, un gain très important. En considérant le dioptre d'entrée air/GaAs ($|r_1|^2 = 0.30$) et en prenant un simple miroir d'or en face arrière ($|r_2|^2 = 0.93$), le gain chute à $G = 54$. La faible réflectivité du premier dioptre fait s'effondrer l'intensité de la résonance dans la cavité.

Considérons désormais le cas où le miroir en face avant est constitué d'une fine

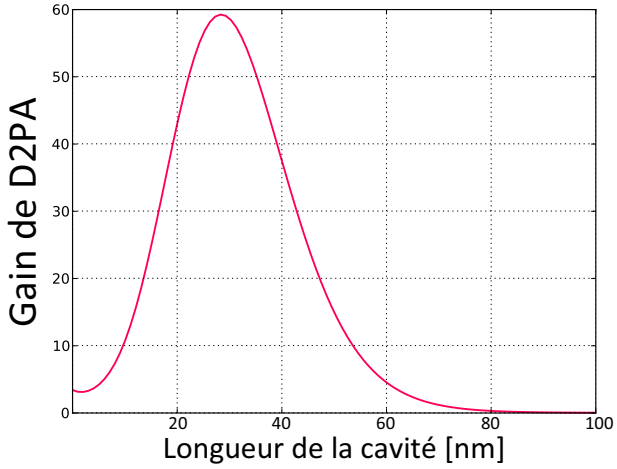


FIGURE 7.4 – Gain d'absorption à deux photons de la cavité avec miroir frontal d'or non structuré. Le miroir est semi-transparent s'il est suffisamment fin (épaisseur inférieure à l'épaisseur de peau, d'environ 20 nm dans l'IR), mais il induit des pertes par absorption. Le gain est maximal pour une épaisseur de 28 nm, pour un indice de l'or égal à 0.55512 + 9.5386i à $\lambda = 1.5$ μm [Rakić 98]. Il est alors d'environ 60.

couche d'or, suffisamment fine (moins épais que l'épaisseur de peau) pour que le miroir soit semi-transparent (figure 7.3). mais ce faisant, le miroir introduira des pertes. Le calcul des coefficients de réflexion et de transmission de ce premier dioptre doit intégrer cette nouvelle donne, et on calcule ces coefficients associés à la succession d'un dioptre air/or puis or/GaAs. L'amplitude de transmission et de réflexion s'écrivent :

$$t = \frac{t_{21}t_{32}e^{2i\pi n_{Au}h_{Au}\lambda}}{1 + r_{12}r_{23}e^{2*2i\pi n_{Au}h_{Au}\lambda}} \tag{7.6}$$

$$r = \frac{r_{12} + r_{23}e^{2*2i\pi n_{Au}h_{Au}\lambda}}{1 + r_{12}r_{23}e^{2*2i\pi n_{Au}h_{Au}\lambda}} \tag{7.7}$$

ce qui permet de tracer la courbe de gain attendue en fonction de l'épaisseur de la couche d'or (voir figure 7.4). Le gain optimal est d'environ 60, et est obtenu pour une épaisseur d'environ 28 nm d'or.

Le tableau suivant résume les gains calculés dans les trois conditions de cavités non structurées :

M1 ($\lvert r_1^2 \rvert$)	M2 ($\lvert r_2^2 \rvert$)	G_{D2PA}
Bragg (0.95)	Bragg (0.995)	2.5×10^4
Dioptre air/GaAs (0.30)	or massif (0.93)	54
couche d'or (28nm)	or massif (0.93)	59

De loin, ce sont les miroirs de Bragg qui proposent le plus grand gain, mais qui

imposent une sélectivité spectrale et angulaire très importante. Il y a peu de différences entre la situation air/GaAs ou or/GaAs. Dans le premier cas, il y a peu de pertes mais la réflectivité du premier dioptre est mauvaise. Dans le second, la réflectivité est plus élevée mais le miroir induit des pertes non négligeables, on calcule en effet un coefficient de propagation $|p| = \left|e^{2i\pi n_{Au} h_{Au} \lambda}\right| = 0.34$ pour l'épaisseur optimale de 28nm.

Cavités structurées

Les quelques remarques précédentes ont installé le cadre du travail qui suit : un gain d'absorption à deux photons de grande magnitude dans une cavité n'est accessible qu'à l'aide de couches très réfléchissantes, ce qui peut être obtenu par des miroirs métalliques autour de la couche de semiconducteur. Mais le couplage au milieu incident introduit alors des pertes qui vont considérablement atténuer l'onde électromagnétique lors de sa propagation même sur des distances très courtes, l'épaisseur de peau de l'or étant de l'ordre de 25 nm. Nous proposons donc de structurer le miroir métallique de la face d'entrée du photodétecteur. Ce-faisant, nous souhaitons engendrer des modes propagatifs dans la couche de semi-conducteur tout en évitant la dissipation de l'onde par le métal, et obtenir ainsi des facteurs de gain plus importants.

L'idée de la structuration des interfaces de la couche de semi-conducteur a été largement étudiée ces dix dernières années, et de nombreux concepts de détecteurs ont vu le jour en exploitant des structurations aléatoires ou périodiques pour exciter des modes au sein d'une couche de semiconducteur. Dans notre situation, on préfèrera baser notre réflexion sur des détecteurs à jonction PN et PIN, où la génération de paires électrons-trous a vocation à se faire au milieu de la jonction, c'est-à-dire le plus loin possible des interfaces. En conséquence, les modes que nous cherchons à créer ont pour objectif de confiner les photons au sein de la couche centrale non intentionellement dopée (nid) du semiconducteur. Dans le cas d'une couche d'entrée métallique structurée à des échelles sub-longueur d'onde, il est possible d'exciter des modes de résonances plasmoniques. Les plasmons de surface sont des ondes évanescentes confinées aux interfaces métal-diélectrique. S'il est donc possible d'amplifier fortement et localement le champ, c'est au niveau des interfaces métalliques que l'on favorisera l'absorption de photons. Si cette configuration est par exemple tout à fait adaptée à des détecteurs exploitant des jonctions Schottky [Akbari 10], nous savons que dans le cas d'une détection à deux photons, c'est prendre le risque d'être impacté par de l'absorption parasite à un photon, liée aux défauts présents en surface.

Plus globalement, ces considérations montrent l'importance de bien comprendre la distribution du champ électromagnétique dans le semiconducteur, et d'être capable d'analyser l'origine et les mécanismes de résonances opérant dans nos structures. Sans entrer dans le détail des structures étudiées, et afin d'établir des règles de conception, nous nous sommes dans un premier temps limité à des cavités résonantes bimodes, c'est-à-dire n'autorisant que deux modes propagatifs.

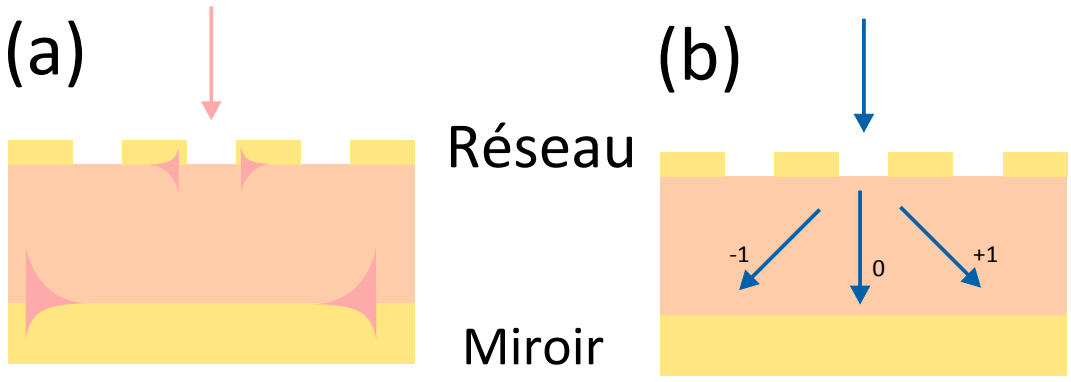


FIGURE 7.5 – Structurer le miroir d'entrée permet de générer différents effets : (a) des résonances de plasmons de surface, qui confinent fortement le champ près des interfaces métalliques, (b) des résonances de modes guidés, qui couplent les modes de la cavité aux ordres diffractés du réseau.

Nous avons défini un premier cahier des charges afin de fixer le cadre et les contraintes de notre travail. Ces contraintes sont bien sûr liées à la détection de paires de photons, mais elles sont également technologiques, et liées à la fabrication en salle blanche du dispositif, et à sa caractérisation.

7.1.3 Définition d'un cahier des charges

Matériaux et énergies de photons

Le matériau semiconducteur choisi est l'arséniure de gallium (GaAs), étudié depuis le début de ce manuscrit. Il est apprécié pour son coefficient non-linéaire important, que ce soit à l'ordre 2 pour la génération de second harmonique, ou ici à l'ordre 3 pour l'absorption à deux photons. De nombreuses études ont ainsi pu en attester et la valeur de ce coefficient est assez bien documentée : $\beta_{D-2PA}^{GaAs} \approx 10$ cm/GW à 1.55 μm en recoupant les différentes données disponibles. La bande interdite du matériau est large de 1.424 eV, soit une longueur d'onde de coupure de 870 nm, ce qui explique son intérêt pour l'imagerie visible. Pour l'absorption dégénérée, on considère des énergies de photons $\hbar\omega_p$ vérifiant :

$$\frac{E_g}{2} < \hbar\omega_p < E_g \tag{7.8}$$

donc une énergie comprise entre 0.712 eV et 1.424 eV, ce qui correspond à des longueurs d'onde comprises entre 870 nm et 1.74 μm. Les technologies à base de GaAs sont couramment fabriquées au LPN, qui peut donc garantir un certain savoir-faire.

Comme nous avons pu le voir au chapitre 3 notamment, il faut s'attendre à l'apparition de photocourant PASRH dans la jonction sous illumination. Il est d'une part délicat

de prévoir l'influence de ce phénomène sur notre efficacité de détection, et d'autre part les moyens pour le minimiser sont sans surprise, puisqu'ils consistent en somme à réduire toutes les sources de bruit d'obscurité, auquel le courant PASRH est lié. Nous nous réservons la possibilité d'utiliser un autre matériau, le phosphure d'Indium (InP), au cas où la contribution PASRH deviendrait problématique dans les échantillons en GaAs fabriqués. Les procédés technologiques de cet autre semiconducteur sont aussi bien voire encore mieux maîtrisés que ceux de GaAs, et l'InP possède un coefficient d'absorption à deux photons comparable. L'InP a un gap assez proche de celui du GaAs : 1.344 eV (soit 923 nm), ce qui permet d'effectuer de la détection à deux photons dégénéré jusqu'à une longueur d'onde de 1.85 μm.

Dans le cas de l'absorption dégénérée, nous pouvons nous permettre de nous éloigner considérablement du gap du matériau et d'éviter les régimes d'absorption linéaire même à basse puissance. Ainsi, on travaillera autour de 1.5 μm, soit avec des photons correspondant à 58 % de l'énergie de gap du GaAs.

Stratégie de photodétection

Comme évoqué plus haut, la situation la plus favorable est de pouvoir localiser l'absorption dans une couche uniforme de semiconducteur la plus éloignée possible des interfaces métalliques et plus généralement de toute rupture de symétrie ou source de défauts profonds. De plus, une fois les paires électrons-trous générées, il faut pouvoir collecter un maximum de ces photoporteurs (qui seront déjà suffisamment peu nombreux). La solution remplissant le mieux ces critères est d'intégrer une jonction PIN dans la couche semiconductrice. Le fort champ régnant dans la zone nid et la faible probabilité de recombinaison nous laissent espérer un rendement d'extraction des photoporteurs proche de 100 %. En outre, cette architecture place par construction la zone intrinsèque au milieu de la couche, soit le plus loin possible des interfaces métalliques. Ainsi, on autorise dans cette épaisseur nid la génération et la collection d'un photocourant à deux photons a priori épargné par le PASRH et par les défauts de surface. Ceci nous obligera à effectuer plusieurs allers-retours conceptuels entre le dimensionnement des couches de la photodiode PIN et celle d'une résonance de champ électrique piégeant les photons dans la zone nid.

En particulier, une contrainte forte émerge sur l'épaisseur de la couche de semiconducteur, qui doit être épaisse d'au moins 100 nm pour espérer intégrer les trois zones de la photodiode. Heureusement, cette épaisseur reste compatible avec l'existence de modes de résonance d'ordre très bas dans la couche semiconductrice, le calcul donnant pour l'épaisseur correspondant à l'existence des seuls premiers modes de guidage $h_{GaAs} = \frac{\lambda_p}{n_p} = 460$ nm à 1.55 μm.

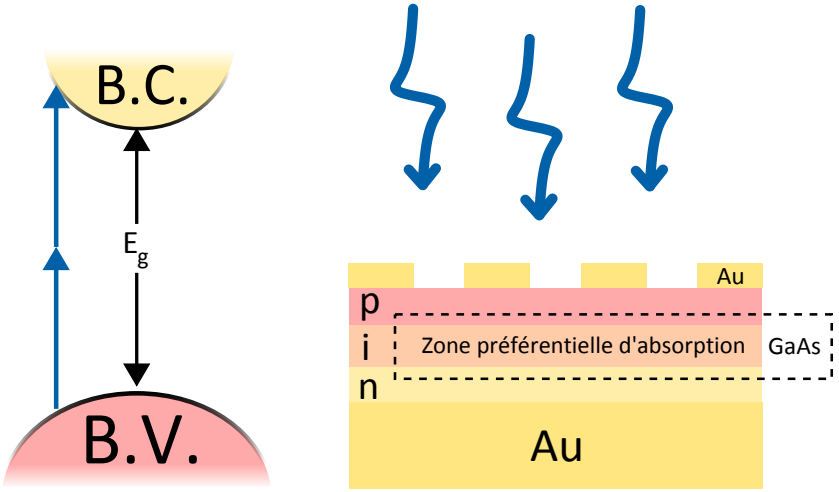


FIGURE 7.6 – Principe de la configuration étudiée : absorption dégénérée de deux photons d'énergie légèrement supérieure au mi-gap, au sein d'une cavité avec un miroir en face avant structuré, et pouvant intégrer une jonction PIN, dont la région nid constitue la région où nous souhaitons confiner le champ.

Solution étudiée et prédimensionnement

La structure dont je présente l'étude est schématisée sur la figure 7.6. Elle consiste en un empilement or - arséniure de gallium - or avec structuration de la couche d'or supérieure. Les paramètres géométriques de cette structure sont au nombre de quatre : p la période du réseau de la couche supérieure, w la largeur des lames métalliques ($p-w$ étant alors la largeur des fentes d'air), h_{Au} est l'épaisseur des lames d'or, et h_{GaAs} celle du semiconducteur.

Les paramètres géométriques de cette structure peuvent posent quelques contraintes. Comme nous venons de l'évoquer, la couche de GaAs doit avoir une épaisseur minimum de 100 nm. La face arrière métallique n'est pas structurée et ne pose pas de problème particulier. Le motif des fentes d'air sur la couche supérieure peut être dessiné en une étape de lithographie optique ou électronique suivie par une étape de lift-off d'or, tant que les fentes ne sont pas trop fines. Nous détaillerons les procédés technologiques de fabrication de la structure plus tard dans le manuscrit.

Cette architecture est facile à coder et à simuler, car la structure est périodique et invariante selon un axe. Nous utilisons par la suite la méthode modale par approximation B-Spline développée au sein de l'équipe pour simuler les performances de notre dispositif et optimiser ses paramètres [Bouchon 10]. L'inconvénient de cette solution 1D est la forte dépendance en polarisation qui est à attendre pour l'excitation des résonances.

Dans la démarche suivie, nous avons prédimensionné les cavités afin de nous intéresser

au cas de cavités bimodes, c'est-à-dire présentant seulement deux modes propagatifs ou faiblement atténués dans la couche de semiconducteur, ceci afin de pouvoir extraire une compréhension des modes de résonance de la cavité. Comme la couche de GaAs est uniforme, les modes de la cavité sont liés aux ordres diffractés par le réseau que forment les lamelles d'or. L'existence de ces modes est uniquement reliée à la période p du réseau. Notons k_x^m la constante de propagation reliée à l'ordre de diffraction m avec m entier. La formule des réseaux retranscrit l'apport du vecteur d'onde du réseau à la projection du vecteur d'onde incident sur l'interface :

$$k_x^m = k_x^0 + m\frac{2\pi}{p} \tag{7.9}$$

où k_x^0 est la projection du vecteur d'onde suivant x pour l'ordre 0, mais également la projection du vecteur d'onde incident par continuité à l'interface, et $k_x^0 = k_0 \sin(\theta))$ avec θ l'angle d'incidence de l'onde sur la structure, et $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$ le vecteur d'onde dans le vide de la vibration électromagnétique incidente. Dans une large mesure, nous dimensionnerons la structure en incidence normale, et nous étudierons le comportement de cette dernière en incidence oblique seulement après, par exemple pour en tirer le tolérancement angulaire du dispositif. Ainsi, on choisit $\theta = 0$ soit $k_x^0 = 0$. Alors $k_x^m = m\frac{2\pi}{p}$ et la composante de vecteur d'onde du mode m selon l'axe z est donnée par :

$$k_z^m = \sqrt{n_{GaAs}^2 k_0^2 - (k_x^m)^2} = k_0\sqrt{n_{GaAs}^2 - m^2\frac{\lambda^2}{p^2}} \tag{7.10}$$

Les modes propagatifs sont ceux pour lesquels k_z^m est réel, ce qui impose une condition sur la période du réseau :

$$p > m\frac{\lambda}{n_{GaAs}} \tag{7.11}$$

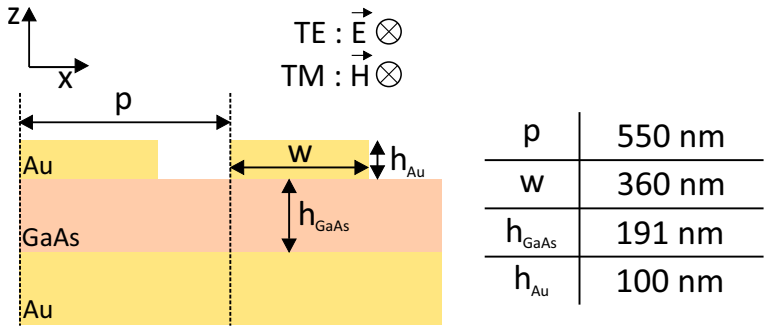
Nous voulons que les modes propagatifs se limitent aux modes 0, +1 et −1. En effet, en incidence normale, les modes +1 et −1 sont dégénérés, selon l'expression de l'équation 7.10. Dans cette situation la cavité sera bien bimode, comprenant le mode fondamental et une combinaison symétrique des modes +1 et −1. Avec une valeur d'indice $n_{GaAs} = 3.3702$ à 1.55 μm [Skauli 03], on trouve une période comprise entre 460 nm et 920 nm. Pour des angles d'incidence non nuls, la dégénérescence des deux modes non fondamentaux est levée, et la cavité autorisera la propagation verticale de trois modes distincts. Le tableau suivant résume les conditions technologiques ou géométriques qui contraignent le dimensionnement de la structure :

7.2 Design retenu et performances associées

La figure 7.7 présente la structure avec ses dimensions retenues. Les dimensions satisfont les contraintes imposées par le prédimensionnement. En particulier, la période $p = 550$ nm nous assure que la cavité est bien bimode autour de 1.5 μm. On peut le

100 nm $< h_{GaAs} <$ 460 nm	Modes Fabry-Pérot
460nm< p < 920nm	Modes du réseau
p-w> 50 nm	Tracé des fentes d'air
h_{Au}>50 nm	Tracé des fentes d'air

TABLEAU 7.1 – Résumé des contraintes technologiques et physiques s'appliquant aux dimensions d'une cavité bimode.



p	550 nm
w	360 nm
h_{GaAs}	191 nm
h_{Au}	100 nm

FIGURE 7.7 – Structure 2PHOT02 représentée à l'échelle, et ses dimensions.

vérifier en obtenant les constantes de propagation selon z calculées à l'aide de BMM autour de 1.5 μm :

En polarisation TE, aucun mode n'est propagatif, alors qu'en polarisation TM, le premier mode a une partie imaginaire très faible. Dans la couche de GaAs, les trois premiers modes (0, +1 et -1) se propagent, on peut montrer que les modes suivants sont fortement atténués. La cavité est donc bien bimode, conformément à nos attentes.

7.2.1 Identification des résonances

Le spectre de réflectivité de la structure est présenté sur la figure 7.8 pour des longueurs d'onde comprises entre 1 et 2 microns. La structure étant opaque (couche d'or en substrat), la réflectivité R est définie comme $R = 1 - A$ avec A l'absorption de la structure. Différentes résonances sont identifiables en TE et en TM :

	Mode 0	Mode +1	Mode -1	Mode +2	Mode -2
Réseau Au (TE)	0.0278 + 3.0478i	6.2442i	9.0482i	10.12i	11.39i
Réseau Au (TM)	1.1284+0.0047i	3.8914i	8.0779i	9.68i	10.33i
GaAs	3.3161	1.7476	1.7476	4.28i	4.28i

TABLEAU 7.2 – Constantes de propagation associées aux modes dans les différentes couches en incidence normale. La couche de GaAs présente trois modes propagatifs, dont deux dégénérés.

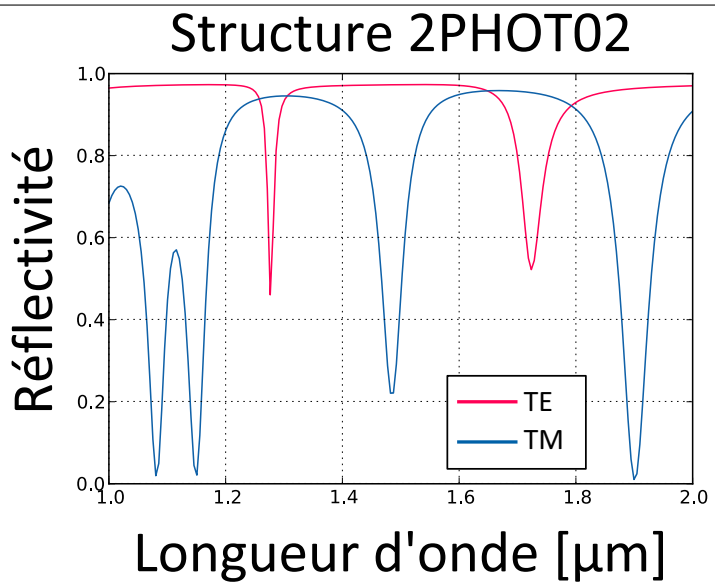


FIGURE 7.8 – Réflectivité de la structure 2PHOT02, selon les deux polarisations TE et TM. La structure étant opaque, la réflectivité est égale à $1 - A$ avec A l'absorption de la structure. La dissipation se fait dans le métal.

— En polarisation TE, on identifie deux résonances : à 1.28 μm (R=46 %) et à 1.73 μm (R=52 %)

— En polarisation TM, on identifie quatre résonances : à 1.08 μm (R=2%), 1.15 μm (R=2%), 1.49 μm (R=21 %) et 1.9 μm (R=1 %).

Les cartes de champ correspondant au champ électrique transverse pour chacune de ces polarisations est présenté sur la figure 7.9. De ces différentes résonances, seules celles existant pour des longueurs d'ondes inférieures au mi-gap (1.74 μm) peuvent être détectées pour l'absorption à deux photons. Nous mettons d'ores et déjà de côté la résonance à 1.9 μm. De plus, les résonances aux courtes longueurs d'ondes (1.09 μm et 1.15 μm) présentent un champ électrique localisé près des interfaces, sujet à dissipation et à l'absorption à un photon. Là encore, nous écartons ces longueurs d'ondes de l'étude.

Il reste donc trois résonances potentiellement intéressantes pour nos applications :

— à $\lambda = 1.73$ μm en polarisation TE : la distribution de l'intensité du champ électrique varie peu le long de l'axe optique. Ce pourrait donc être une résonance du mode fondamental de la cavité.

— à $\lambda = 1.28$ μm en polarisation TE : le champ présente deux lobes espacés d'une demi-période, et relativement éloignés des interfaces métalliques. On peut l'attri-

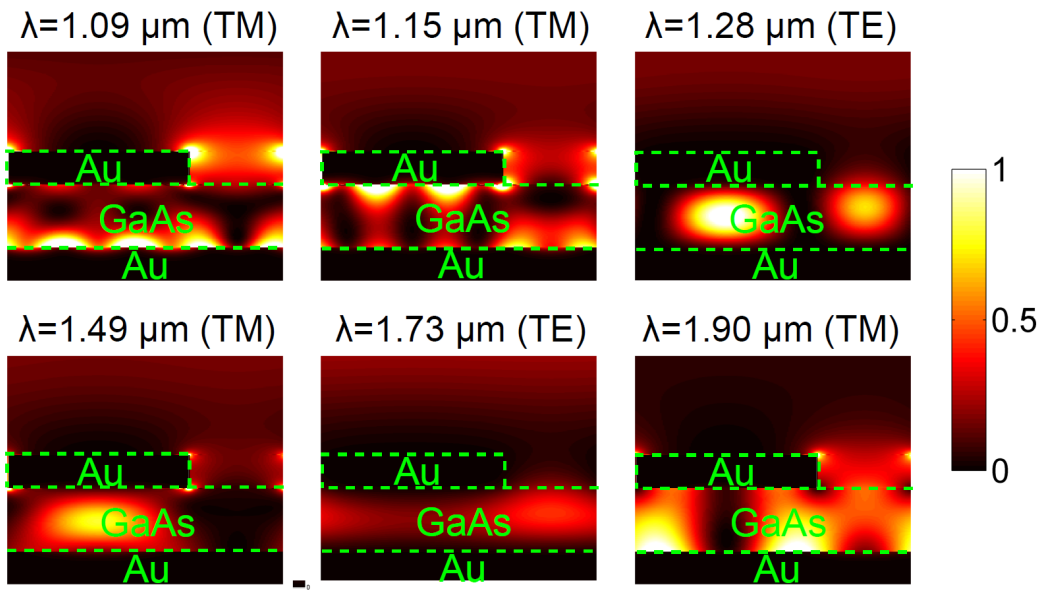


FIGURE 7.9 – Cartographie de l'intensité des résonances identifiées entre 1 μm et 2 μm, avec leurs polarisations associées. On s'intéressera aux résonances TE à 1.28 μm et à 1.73 μm, ainsi que la TM à 1.49 μm, pour lesquelles le champ est confiné préférentiellement au centre de la couche de GaAs.

buer à la variation attendue pour le modes symétrique ±1.

— à $\lambda = 1.49$ μm en polarisation TM : un lobe de champ est présent sous le métal, là encore à distance des interfaces, mais la périodicité du champ ne correspond pas au mode fondamental ou au mode ±1, il est donc difficile de conclure pour le moment sur le mécanisme de la résonance.

En tout état de cause, c'est la géométrie de cette dernière résonance qui nous a le plus intéressé par la suite, l'essentiel du champ électrique étant localisé entre les électrodes, dans le semiconducteur mais à distance des interfaces métalliques.

7.2.2 Gain et tolérance angulaire des structures

Le gain sur l'absorption à deux photons est calculé en comparant la moyenne de l'intensité au carré du champ incident avec la valeur de cette intensité dans un détecteur muni d'une couche anti-reflet. Soit pour un champ incident d'amplitude E_0 :

$$G_{D2PA} = \frac{\langle I^2 \rangle}{I_0^2} = \frac{4n_{GaAs}^2 c^2 \epsilon_0^2 \langle |E|^2 \rangle}{4c^2 \epsilon_0^2 |E_0|^2} = \frac{n_{GaAs}^2 \langle |E|^2 \rangle}{|E_0|^2} \tag{7.12}$$

Dans le cas de la résonance étudiée, le gain a été calculé à $G_{D2PA}^{TM} = 249$. Mais nous

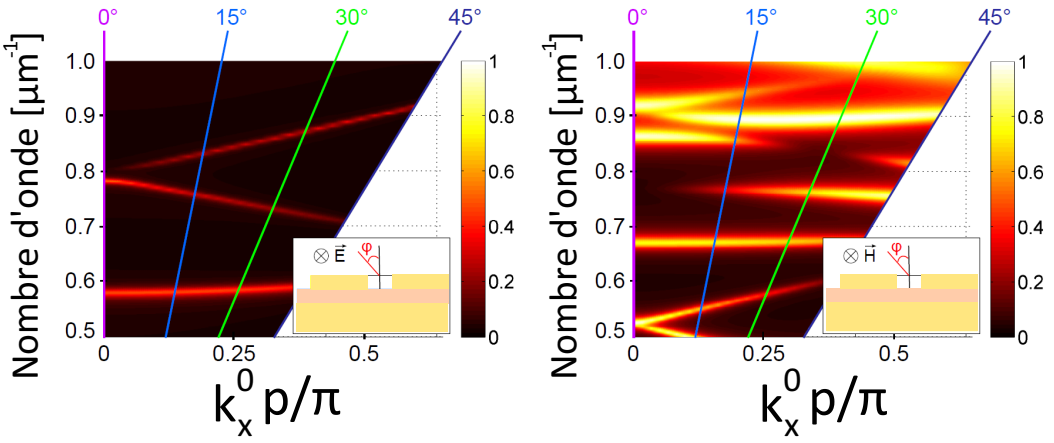


FIGURE 7.10 – Diagramme de dispersion de la structure 2PHOT02 en polarisation TE et TM. La résonance à 1.49 μm, soit 0.7 μm^{-1} en TM, évolue peu avec l'abscisse, qui représente la projection du vecteur d'onde sur l'axe x : il s'agit donc vraisemblablement d'une résonance du mode 0 de la cavité.

n'oublions pas qu'il s'agit d'une résonance en polarisation purement TM : dans le cas d'une onde incidente non-polarisée, seule une moitié de l'énergie incidente sera concernée par la résonance, et la quadraticité de l'absorption à deux photons divisera le gain de cette résonance par 4 : avec un gain d'alors seulement $G_{D2PA}^{non.pol.} = 62$, la cavité est moins performante qu'une cavité avec un premier miroir semi-réfléchissant non structuré en or, introduisant des pertes mais insensible à la polarisation incidente.

Toutes les propriétés évoquées jusqu'à maintenant de la structure 2PHOT02 supposent que l'onde est en incidence normale. La cavité est alors bimode, car les modes +1 et−1 sont dégénérés, c'est-à-dire possèdent la même constante de propagation : ils sont alors excités symétriquement. Nous prenons cette fois le cas d'une incidence oblique, $\theta \neq 0$. La dégénérescence est levée et les constantes de propagation s'écrivent :

$$k_z^{+1} = k_0 \sqrt{n_{GaAs}^2 - (\sin(\theta) + \frac{\lambda}{p})^2} \tag{7.13}$$

$$k_z^{-1} = k_0 \sqrt{n_{GaAs}^2 - (\sin(\theta) - \frac{\lambda}{p})^2} \tag{7.14}$$

ce qui implique qu'en incidence oblique, les résonances associées se produisent à deux longueurs d'onde dorénavant distinctes. A l'inverse, le mode 0 possède une constante de propagation indépendante de l'angle d'incidence, et sa longueur d'onde de résonance associée reste fixe. On trace les relations de la dispersion en polarisations TE et TM pour des angles d'incidence variant entre 0 et 45. Observons maintenant la figure 7.10. En notant que la résonance étudiée se situe à un nombre d'onde $\sigma = 0.7 \mu m^{-1}$, on voit

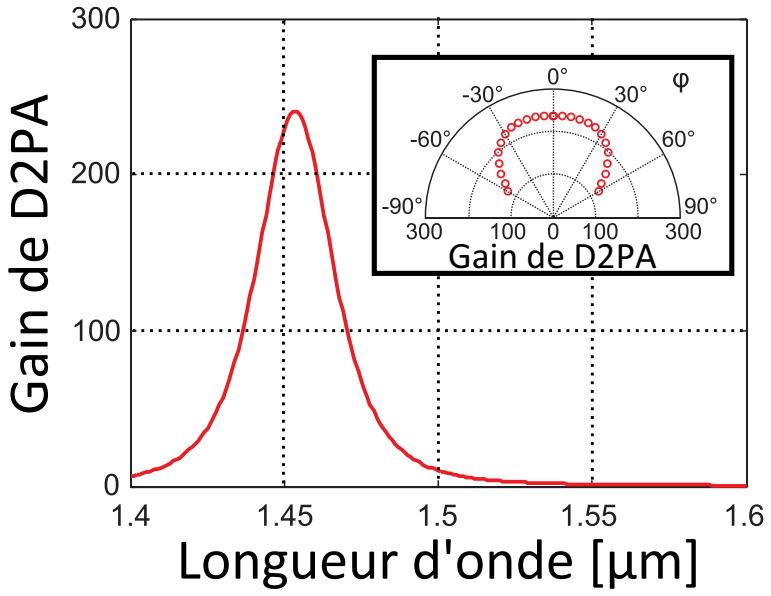


FIGURE 7.11 – Comportement du gain d'absorption à deux photons en fonction de la longueur d'onde de l'onde incidente et de l'angle d'incidence, l'onde étant polarisée TM. Un gain maximum de 249 est calculé, et le gain est supérieur à 200 sur un intervalle [-30 °, +30 °] autour de l'incidence normale.

que le pic ne se dédouble pas avec l'augmentation de l'incidence : ceci est dont plutôt caractéristique d'une résonance couplée au mode fondamental de la cavité, et sa stabilité confère une bonne tolérance angulaire à la résonance : à 30 d'incidence, le gain en polarisation TM est encore de 230 par rapport au détecteur muni de la couche anti-reflet sous la même incidence (figure 7.11).

7.2.3 Génération de photocourant

Nous faisons ici une première estimation du photocourant généré dans la structure sélectionnée. Nous pouvons l'écrire :

$$i_{ph}^{D2PA} = \eta_{int} \frac{e\lambda}{2hc} \frac{L}{S} \beta_{D2PA} P^2 \tag{7.15}$$

où P est la puissance optique incidente, S est la surface de focalisation de la lumière, L la longueur d'interaction, soit le produit $G_{D2PA} h_{GaAs}$ dans notre cas, car le gain introduit par la structure peut être assimilé à une augmentation de la longueur d'interaction du milieu. En l'occurence, l'épaisseur de la couche étant de 191 nm, le facteur de gain rend équivalent notre photodétecteur à une couche de GaAs munie d'un anti-reflet d'une épaisseur de 48 microns. Nous obtenons :

$$i_{ph}^{D2PA} = \eta_{int} \frac{e\lambda}{2hc} \frac{D_{D2PA} h_{GaAs}}{S} \beta_{D2PA} P^2 \tag{7.16}$$

Nous allons considérer que le rendement intrinsèque η_{int} est unitaire, et que chaque paire de photons absorbés correspond effectivement à un photoélectron collecté. La taille des dispositifs sera un carré de 20 microns de côté, ce qui donne une limite haute pour la surface de focalisation de la lumière de 400 μm^2. On choisit $\beta_{D2PA}^{1.49\mu m} = 10$ cm/GW.

On trouve pour 1 mW de puissance moyenne, un photocourant généré de 5pA, ce qui représente peu de porteurs dans l'absolu mais pour cette taille de détecteur, une densité de courant de lordre de 10^{-7} A/cm^2, ce qui est un à deux ordres de grandeur supérieur à la densité de courant d'obscurité d'une diode InGaAs, d'1 mm de diamètre. Il faudra toutefois comparer le niveau de phtocourant au bruit d'obscurité de la structure pour vérifier si le RSB est garant d'une détection efficace.

Cette première estimation est à pondérer par de nombreux facteurs. Tout d'abord, il faut s'attendre à ce que le rendement d'extraction ne soit pas unitaire, ce qui pourrait dégrader la collection des photoporteurs. A l'inverse, il est tout-à-fait envisageable de focaliser la puissance incidente sur une plus petite surface, ce qui est un bon moyen pour augmenter considérablement le signal de photodétection. Enfin, l'expression 7.16 traite du cas d'une source continue de lumière. Il est aisé d'utiliser un laser en régime impulsionnel pour augmenter le niveau de puissance crête. Pour un laser délivrant des impulsions carrées d'une durée Δt à un taux de répétition f, il faut intégrer sur la période $1/f$ le photocourant généré pendant la durée Δt de l'impulsion :

$$i_{ph}^{D2PA} = [\eta_{int}\frac{e\lambda}{2hc}\frac{D_{D2PA}h_{GaAs}}{S}\beta_{D2PA}P_{cr\varepsilon te}^2]f\Delta t = [\eta_{int}\frac{e\lambda}{2hc}\frac{D_{D2PA}h_{GaAs}}{S}\beta_{D2PA}P_{moy}^2]\frac{1}{f\Delta t} \tag{7.17}$$

Comme le montre l'équation 7.17, l'utilisation d'une source impulsionnelle par rapport à une source continue de même puissance moyenne permet d'améliorer le niveau de photocourant d'un facteur égal à l'inverse du rapport cyclique. Ceci est directement lié au caractère quadratique de la D2PA, et a déjà été aperçu dans le chapitre 3. La figure 7.12 présente une estimation quantitative des niveaux de photocourant attendus en situation CW et impulsionnelle.

Conclusion

Nous avons décrit la démarche suivie pour concevoir une nanostructure capable d'améliorer le confinement des photons d'énergie sub-gap dans un volume de semiconducteur, afin d'améliorer l'absorption à deux photons. Nous avons conçu la structure 2PHOT02, qui repose sur l'utilisation d'un réseau métallique capable d'exciter des modes propagatifs dans la couche de semiconducteur sur laquelle il repose. Le mode excité présente une bonne tolérance angulaire et permet d'améliorer l'absorption non-linéaire de deux ordres de grandeur, au sein d'une jonction PIN de moins de 200 nm d'épaisseur.

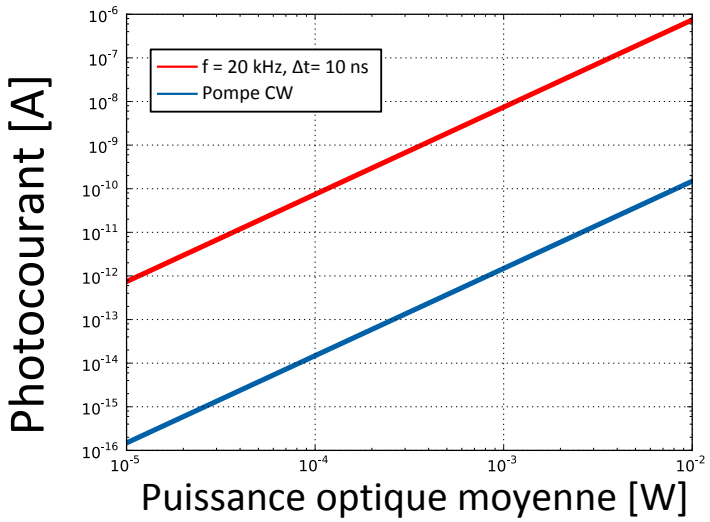


FIGURE 7.12 – Estimation du photocourant généré dans les structures 2PHOT02 sous illumination. Le recours à une source impulsionelle augmente significativement le photocourant généré, à puissance moyenne équivalente avec une source continue.

Dans le chapitre suivant, nous passons à la démonstration expérimentale de ces prédictions théoriques.

Louis, I think this is the beginning of a beautiful friendship.

Humphrey Bogart
Casablanca
de Michael Curtiz

Chapitre 8

Caractérisation expérimentale des structures 2PHOT02

Dans ce chapitre, je présente les procédés technologiques réalisés en salle blanche et qui ont mené à la réalisation et la fonctionnalisation des structures 2PHOT02 en photodétecteurs fonctionnels. Puis je détaillerai les résultats tirés des différentes étapes de caractérisations optoélectroniques des échantillons. En particulier, je m'attarderai sur la conception du banc INRI (Illumination de Nanostructures Résonantes dans l'Infrarouge), et sur les résultats qu'il nous a permis d'exploiter pour confirmer l'amélioration de l'absorption non-linéaire dans ces structures.

8.1 Fabrication

Nous passons désormais à la partie expérimentale de l'étude. La structure 2PHOT02 précédemment conçue et simulée a été fabriquée en salle blanche. Je présente ici les différents procédés technologiques à l'œuvre dans cette réalisation ; elles sont représentées sur la figure 8.1.

8.1.1 Épitaxie des couches

La première étape consiste en la réalisation de la couche active, la jonction PIN d'une épaisseur totale de 191 nm. Elle a été réalisée par Aristide Lemaître à partir d'un wafer de 2 pouces en GaAs par épitaxie par jets moléculaires (EJM).

La zone nid (non intentionnellement dopée) a pour épaisseur 60 nm, et est comprise entre une couche dopée p de 50 nm, et une zone dopée n de 80 nm. Cette couche active est séparée du substrat par trois couches (2 couches d'arrêt en AlGaAs et une couche intermédiaire en GaAs) pour protéger la jonction pendant le retrait du substrat. Les différentes couches épitaxiées et leurs paramètres sont présentés sur la table suivante. Au final, nous disposons d'une dizaine d'échantillons de taille $9\ \mathrm{mm} \times 9\ \mathrm{mm}$.

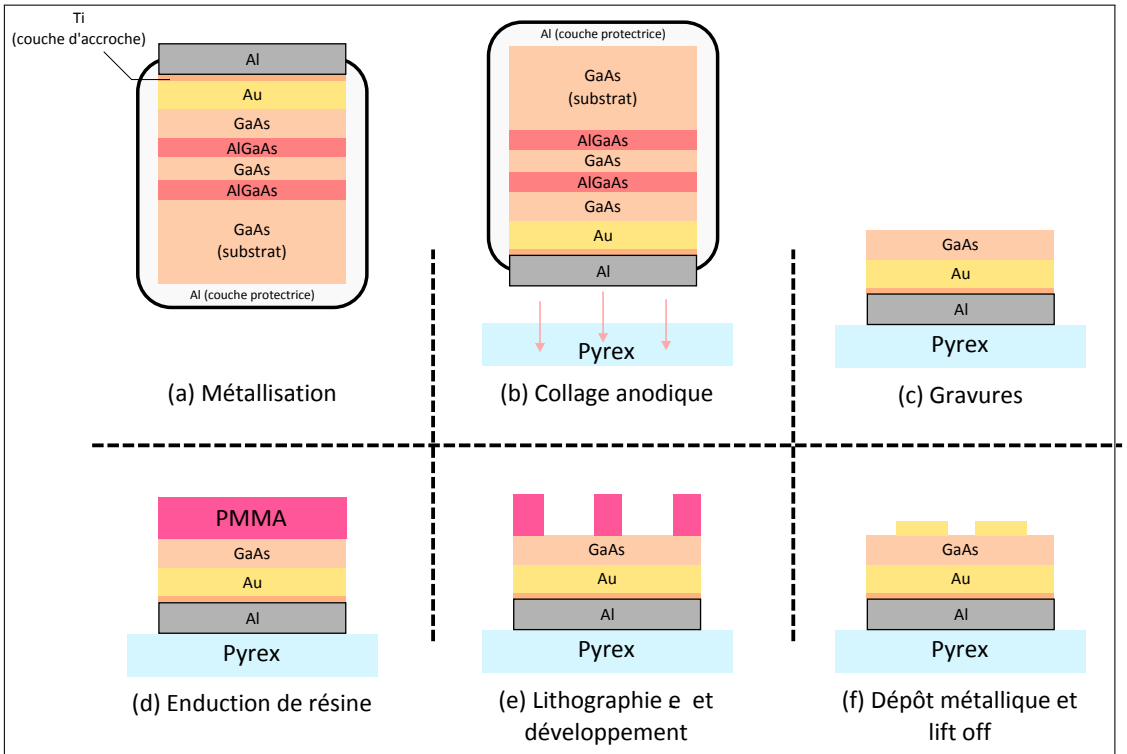


FIGURE 8.1 – Résumé des procédés technologiques réalisés pour la fabrication des motifs avec réseaux.

Couche	Matériau	Dopage (cm^{-3})	Epaisseur (nm)
Contact P	GaAs :C	$p = 1.10^{19}$	50
Zone intrinsèque	GaAs	nid	60
Contact N	GaAs :Si	$n = 5.10^{18}$	80
Couche d'arrêt 1	AlGaAs :Si	$n = 5.10^{18}$	300
Couche intermédiaire	GaAs :Si	$n = 5.10^{18}$	300
Couche d'arrêt 2	AlGaAs :Si	$n = 5.10^{18}$	300
Buffer	GaAs :Si	$n = 5.10^{18}$	-
Substrat	GaAs	Type N	-

TABLEAU 8.1 – Couches épitaxiées et leurs paramètres.

8.1.2 Report sur Pyrex

Nous allons commencer par former ce qui constituera le miroir en face arrière du détecteur final, et qui reposera sur une lame de Pyrex après une étape de report. Sur la couche active dopée, on dépose donc 200 nm d'or, puis 20 nm de titane pour nous permettre d'accrocher 200 nm d'aluminium. Enfin, on protège l'intégralité des couches épitaxiées en déposant 200 nm d'aluminium sur l'autre face et sur les bords de l'échantillon, pour finalement procéder au collage anodique dans le bondeur Süss Microtec SB6e. La face de l'échantillon côté miroir d'or est plaquée contre la lame de Pyrex. On applique une différence de potentiel de 1700 V entre l'échantillon et une face du Pyrex tout en chauffant à 200°C. Ainsi, le collage est rendu effectif d'une part par le contact électrostatique au niveau de la zone de charge d'espace créée dans le verre après migration des ions Na+, et d'autre part par la création d'indentations en AlO dans le Pyrex.

8.1.3 Retrait du substrat et des couches d'arrêt

Nous nous attaquons ensuite aux couches surplombant la couche active, et que nous allons retirer par gravure. On commence par protéger les bords de l'échantillon par de la cire pour ne pas risquer d'impacter les couches inférieures de l'échantillon, en particulier la couche active et la couche d'aluminium qui garantit le collage sur le Pyrex.

La première couche à retirer est la couche protectrice supérieure d'aluminium, que l'on grave avec une solution de soude NaOH à 10 %. Les couches suivantes sont en matériau semiconducteur, on utilise différentes solutions de gravure sélective pour les retirer successivement. Au lieu d'une seule couche d'arrêt, l'intérêt de la configuration à deux couches d'arrêt est de pouvoir graver en premier lieu très rapidement le substrat avec une solution de peroxyde d'hydrogène/ammoniac (H_2O_2/NH_4OH) avant d'utiliser une solution moins agressive de peroxyde/acide citrique ($H_2O_2/C_6H_8O_7$) en se rapprochant de la couche active.

8.1.4 Dépôt du réseau métallique

La couche active et le miroir arrière en or sont en place, il nous faut maintenant déposer le réseau métallique au-dessus de la couche de GaAs. Pour cela, nous allons commencer par déposer une résine sur la face avant de notre échantillon et y dessiner un masque par lithographie optique ou électronique, avant de développer la résine. On dépose ensuite une couche de métal par-dessus, avant de retirer la résine par lift-off : le métal n'est présent que dans les régions sans résine développée.

Le réseau métallique que nous souhaitons déposer est constitué de murs d'or de 100 nm d'épaisseur et de 360 nm de largeur, laissant des fentes de 190 nm entre chaque plot. La résolution nécessaire pour dessiner ces motifs impose le recours à la lithographie électronique. On utilise le masqueur VISTEC EBPG 5000. Il insolera les régions où nous souhaitons déposer de l'or, zones desquelles devra être évacuée la résine après insolation.

On enduit donc l'échantillon d'une résine de polyméthacrylate de méthyle (PMMA-A5) de 300 nm d'épaisseur recouverte d'une couche d'aluminium pour l'étape d'insolation. La lithographie électronique consiste à bombarder cette résine avec un faisceau d'électrons, induisant le raccourcissement des chaînes de polymères insolées. La couche d'aluminium retirée, la résine est développée dans un bain mélangeant méthylisobutylcétone et isopropanol en proportion (1 : 3), dissolvant et évacuant les chaînes raccourcies de polymère. On effectue un dépôt de 100 nm d'or, avant d'effectuer le lift-off avec une solution de trichloroéthylène pour enlever la résine restante, et le métal qui s'est accumulé en surplomb.

Les étapes précédentes ont jusque-là permis la réalisation de deux types de dispositifs. Les premiers ont pour taille $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$, les seconds $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$. La grande taille des premiers les destinent à une caractérisation purement optique, qui n'est pas réalisable avec les seconds. Dans les deux cas, un grand nombre d'échantillons est réalisé en faisant varier période et largeur des murs d'or, les dimensions finales des murs étant sujettes à fluctuations : elles dépendent beaucoup des paramètres d'insolation et du développement.

8.1.5 Fonctionnalisation des détecteurs

Les motifs $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ ont vocation à devenir des photodétecteurs fonctionnels. Il faut pour cela dessiner le contour des dispositifs et permettre la prise de contacts électriques en face arrière et sur le réseau en face avant, dont les murs métalliques jouent le rôle d'électrodes. Toutes les étapes sont réalisées par lithographie cette fois optique, la résolution à atteindre ($\approx 1\ \mu\text{m}$) étant compatible avec cette technique qui a l'avantage supplémentaire d'être beaucoup plus rapide, puisque tous les motifs sont insolés simultanément. La figure 8.2 résume les étapes que je présente ci-dessous.

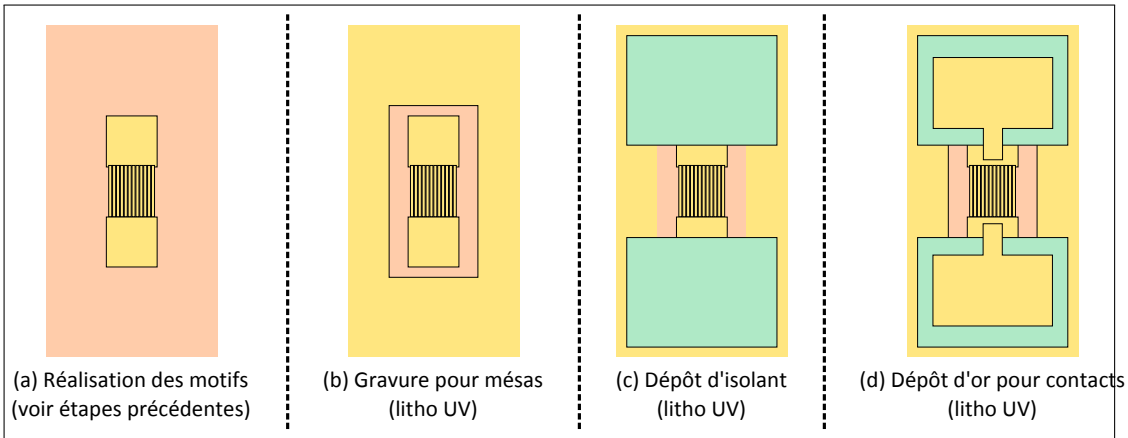


FIGURE 8.2 – Résumé des procédés technologiques réalisés pour la fonctionnalisation des motifs 20 μm $\times$ 20 μm en photodétecteurs.

Formation des mésas et contact face arrière

Tout d'abord, nous allons former des mésas de 30 μm $\times$ 90 μm autour des motifs de réseaux. On enduit pour cela l'échantillon d'une résine optique AZ5124 que l'on recuit pendant 60 s à 120C. On utilise un masque pour insoler les régions souhaitées de la résine avant de plonger l'échantillon dans un bain d'une solution de développeur A826MIF puis de le rincer à l'eau. La résine non insolée est ainsi évacuée. On peut maintenant graver le GaAs qui n'est pas protégé par ces masques de résine à l'aide de la solution de peroxyde d'hydrogène/acide citrique que l'on avait déjà préparée pour le retrait de substrat. On atteint comme cela la face arrière d'or qui constituera un de nos deux contacts électriques. Le masque peut être retiré dans un bain d'acétone.

Pads métalliques et contact supérieur

Nous allons créer le contact métallique supérieur en déposant de l'or sur une couche qui va l'isoler de la face arrière. Nous commençons par enduire l'échantillon de résine AZ5214, que l'on va utiliser cette fois comme résine positive : l'objectif est de créer des ouvertures dans la résine pour définir les zones de dépôt d'isolant. On insole donc la résine une première fois avec un masque pendant 3s, avant de la recuire à 128°C pendant 60s afin d'en provoquer la réticulation. Le développeur A826MIF retire la résine qui n'a pas été insolée la première fois, laissant donc vide deux ouvertures autour de chaque dispositif. On vient y déposer une couche isolante de 400 nm de SiO_2 par pulvérisation cathodique. Le contact électrique supérieur est réalisé en déposant par évaporation d'abord une couche d'accroche de titane de 20 nm d'épaisseur, suivie d'une couche d'or de 300 nm d'épaisseur.

Nous présentons ici quelques photos issues des observations au microscope optique et au MEB, qui témoignent de la réussite des procédés technologiques entrepris. La largeur

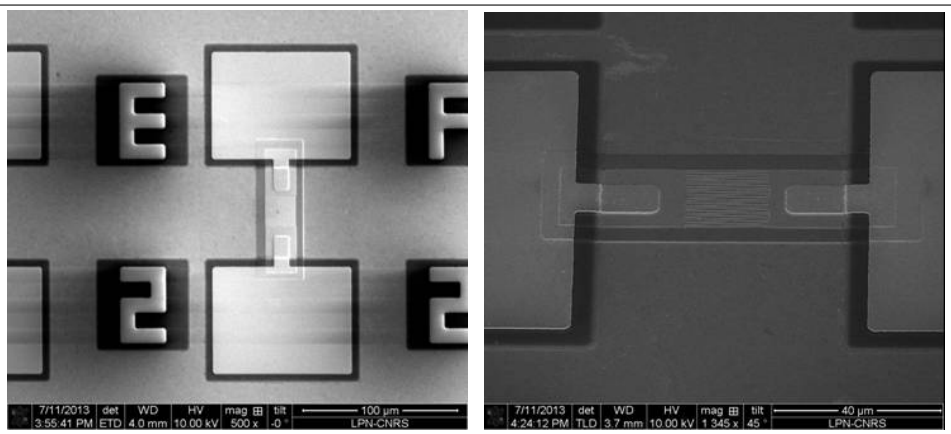


FIGURE 8.3 – Deux images d'un des dispositifs réalisé

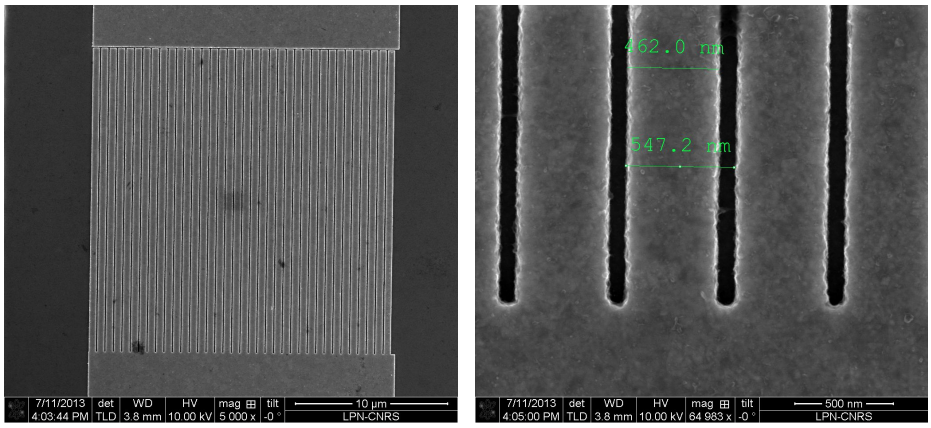


FIGURE 8.4 – Zoom sur le réseau d'un des dispositifs. Le plot supérieur est mal connecté au réseau, il faut donc poser la pointe métallique sur la plot inférieur.

des fentes d'air, autour de 200nm, est suffisante pour être correctement résolue.

8.2 Caractérisation optique sur banc FTIR des motifs $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$

La première étape pour vérifier la conformité du comportement de nos structures est d'en tracer la réflectance pour des longueurs d'onde entre 1 et 2 microns, l'intervalle que nous avons utilisé pour nos simulations. Cette étude est réalisée à l'aide d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) Bruker Hyperion focalisant le faisceau de lumière issu d'un corps noir sur l'échantillon, ce qui induit une incidence conique sur la surface étudiée. La lumière est non polarisée, ce qui signifie que 50 % de l'énergie

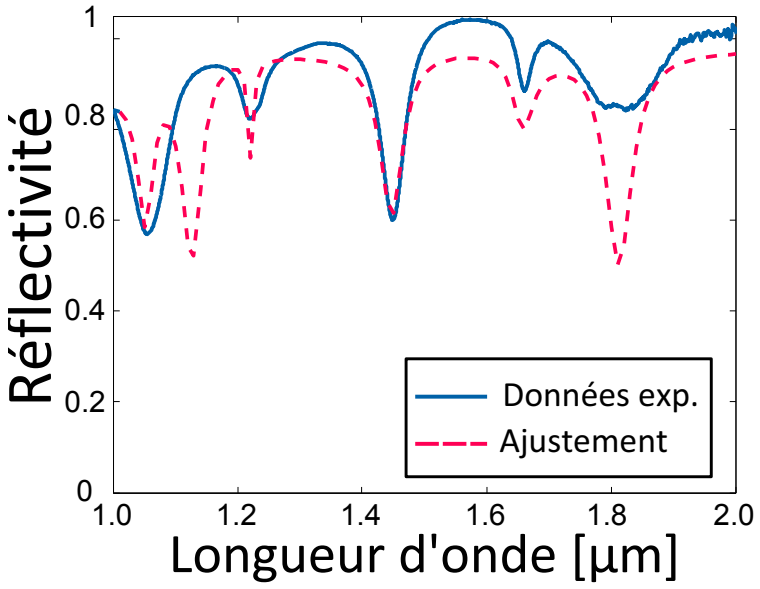


FIGURE 8.5 – Mesure sur FTIR de la réflectivité d'une structure de période théorique 525 nm, et de taux de remplissage 72%, en lumière non polarisée. La courbe en pointillés représente la courbe de réflectivité simulée d'une structure de période légèrement plus petite, 515 nm.

excitera les résonances TE, et 50 % les résonances TM.

On effectue l'acquisition de deux spectres : un spectre de référence qui est issu de la réflexion sur la face arrière de l'or, et le spectre associé à la réflexion sur la surface d'un des dispositifs. Chacun de ces deux spectres est mesuré par un détecteur InSb refroidi à l'azote liquide. Le spectre de réflectance est donc normalisé deux fois, la première fois par rapport au spectre de référence, la deuxième fois par rapport à la réflectance théorique du dioptre or-air. C'est une courbe renormalisée de cette manière que nous présentons sur la figure 8.5. L'échantillon observé au MEB a pour période 525 nm et un facteur de remplissage de 72 %. Sur la figure, nous avons superposé une courbe simulant la réponse correspondant à une structure dont on a légèrement fait varier les paramètres pour qu'ils correspondent au spectre mesuré. Les paramètres qui ressortent de cet ajustement sont une période de 515 nm, et une épaisseur de GaAs de 184 nm, soit une épaisseur légèrement plus petite que celle prévue.

On identifie sans problèmes l'essentiel des résonances proposées du dispositif étudié, en particulier la résonance qui nous intéresse à 1.49 μm. On note toutefois que la résonance à 1.15 μm a complètement disparu. Elle correspond à une exaltation du champ près des interfaces, on peut donc supposer que les pertes soit dans le métal soit par une absorption à ces interfaces aura atténué la quasi totalité de l'énergie à cette longueur

d'onde, en tout état de cause, dans des proportions supérieures à nos prévisions.

D'autre part, le pic à 1.8 μm est présent, mais considérablement atténué. L'incidence du faisceau étant conique, nous savons qu'une partie de l'énergie arrive en incidence oblique sur la structure, et lève la dégénérescence de la résonance existant en incidence normale. Ce sont donc bien des pics vraisemblablement proches qui sont présentés sur la figure, qui est donc différente de la courbe de simulation qui montre la réponse du réseau sous incidence normale.

8.3 Caractéristique courant-tension des motifs $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$

Les détecteurs fabriqués étant basés sur une jonction PIN, un bon indicateur de leur bon fonctionnement reste une caractérisation électrique, afin de confirmer le comportement redresseur attendu. En effectuant ces mesures à température ambiante et dans l'obscurité, nous pouvons en outre obtenir une mesure du courant d'obscurité de ces diodes en fonction de la polarisation qui leur est appliquée. Il est alors possible d'en déduire le niveau de bruit qui lui est lié, et de remonter au NEP, et à la limite de détection.

On modélise le courant d'obscurité d'une diode par un terme de la forme :

$$J_{obs} = J_{sat}\left[\exp(\frac{qV}{nkT}) - 1\right] \tag{8.1}$$

où n est un facteur d'idéalité qui traduit l'existence de deux contributions au courant d'obscurité :

— Un courant de diffusion dont la dépendance suit une loi en $\exp(\frac{-qV}{nkT})$.

— Un courant de génération-recombinaison par des impuretés dans la zone de charge d'espace (mécanisme Shockley-Read-Hall, ou SRH) dont la dépendance est cette fois en $\exp(\frac{-qV}{n2kT})$.

Dans une diode PIN, on s'attend à ce que la contribution du courant de diffusion soit bien inférieure au courant SRH, le champ régnant dans la zone intrinsèque empêchant la traversée de la jonction. On mise donc plutôt sur un facteur n proche de 2.

Les mesures effectuées sous pointe sont présentées sur la figure 8.6, où les résultats sont affichés selon deux courbes : une moyenne sur 10 diodes sans réseaux, et une moyenne sur 8 diodes avec réseaux. Les courbes sont pratiquement confondues en échelle logarithmique, signe que les réseaux métalliques, s'ils ont une influence sur le comportement optique des diodes, n'a pas d'influence considérable sur le plan électrique. Nous avons rapproché ces mesures expérimentales d'une caractéristique similaire à celle présentée sur l'équation 8.1 en ajustant notamment le courant de saturation et le facteur n. Cet ajustement s'est fait en écartant les points expérimentaux acquis aux tensions supérieures à 0.7 V, étant entendu qu'ils s'écartent notablement de la linéarité de la

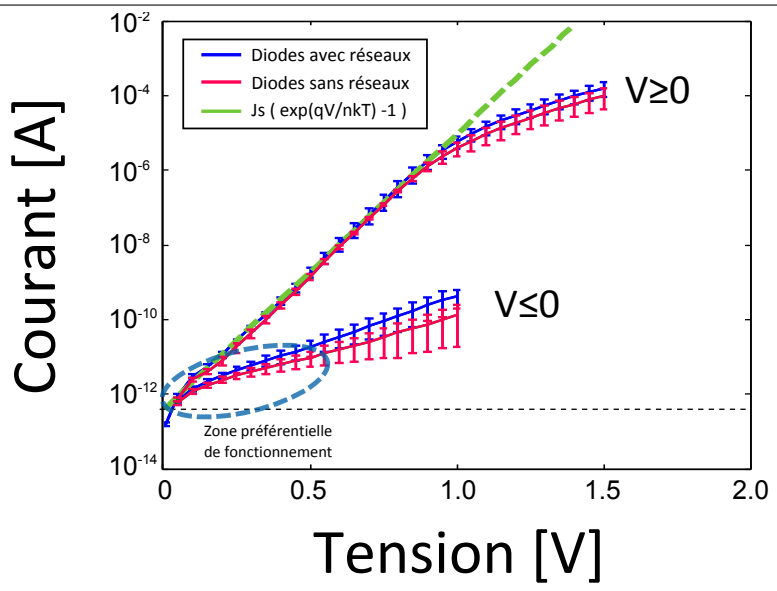


FIGURE 8.6 – Caractéristiques courant-tension moyenne d'une série de diodes, mesures effectuées sous pointes, et ajustement avec notre modèle. Le comportement aux tensions plus élevées n'a pas été compris. Les points de fonctionnement les plus intéressants se situent à basse tension inverse, où le courant d'obscurité est de l'ordre du pA.

caractéristique.

L'ajustement permet de déduire un facteur d'idéalité $n = 2.28$ et un courant de saturation $J_{sat} = 0.4$ pA de la moyenne de nos mesures à température ambiante (autour de 300 K). On peut donc raisonnablement confirmer la prédominance des mécanismes SRH dans les jonctions, bien que n soit légèrement supérieur à la valeur 2. Le comportement du courant à plus haute tension de polarisation n'a pas été compris, et le caractère pathologique de ce comportement est peut-être à chercher dans la faible épaisseur de notre jonction par rapport à la tension appliquée, générant des champs très intenses dans la structure.

En polarisation inverse, là encore le courant continue à augmenter pour des valeurs de tension croissantes en valeur absolue. Comme l'évolution est tout de même bien plus lente, il nous sera possible de nous placer à des niveaux de tension de l'ordre de -500 mV maximum pour assurer un point de fonctionnement correct de la photodiode polarisée en inverse, et un courant d'obscurité autorisant la détection. Plus précisément, à $V = -100\text{mV}$, le courant mesuré est de l'ordre du pA. Le bruit associé à ce courant de génération-recombinaison est un bruit de Schottky des électrons, dont on peut donner l'écart-type :

$$\sigma_{obs} = \sqrt{2eJ_{obs}\Delta\nu} \approx 20fA \tag{8.2}$$

pour une bande passante $\Delta\nu = 1$ kHz, soit des temps d'intégration de l'ordre de la milliseconde. En référence à nos estimations préalables du paragraphe 7.2.3, le RSB à attendre dans ces conditions (idéales) est de l'ordre de 50 pour un signal continu de puissance 1 mW, ce qui est suffisant pour détecter dans de bonnes conditions le flux incident. En pratique, le bruit mesuré dans cette bande passante est plus élevé, de l'ordre de 100 fA : on a donc augmenté le temps d'intégration des mesures de courant pour réduire cette valeur et garder un RSB satisfaisant.

8.4 Caractérisation opto-électronique des dispositifs

La caractérisation des structures 2PHOT02 passe également par un point de vue optoélectronique : observer la réponse des structures et leur capacité à convertir des photons en électrons, avec deux paramètres en ligne de mire : la réponse spectrale des structures, mais également le régime de détection (absorption à deux photons ou absorption linéaire). Je présente ici le montage que j'ai conçu pour la caractérisation des échantillons et les résultats qui en ont été tirés.

8.4.1 Cahier des charges

Ce n'est pas un échantillon qui a été réalisé mais une centaine de dispositifs déposés sur une même face arrière en or, aux dimensions légèrement différentes. Chaque échantillon individuel est petit : la partie comprenant le réseau forme un carré de côté $D = 20$ μm. Plaçons-nous en limite de diffraction, l'ouverture numérique minimale à atteindre pour l'optique de focalisation est donnée par :

$$\text{O.N.}_{min} = \frac{1.22\lambda}{D} \approx 0.1 \tag{8.3}$$

Il est donc nécessaire d'utiliser une focalisation de bonne qualité afin de nous assurer de la bonne performance des dispositifs.

La collection des charges au sein des photodiodes est assurée par des pointes métalliques qui sont posées sur les pads entourant la structure. Une fois le dispositif unique choisi et les pointes posées, il est impossible de bouger l'échantillon complet. C'est donc le système optique qui devra se déplacer pour sonder la bonne photodiode et affiner l'alignement.

La résonance étant sélective en polarisation, le système optique doit permettre un contrôle de la direction du champ électrique. Enfin, afin de déterminer le degré de linéarité de l'absorption, le montage doit prévoir la possibilité de contrôler le niveau de flux incident.

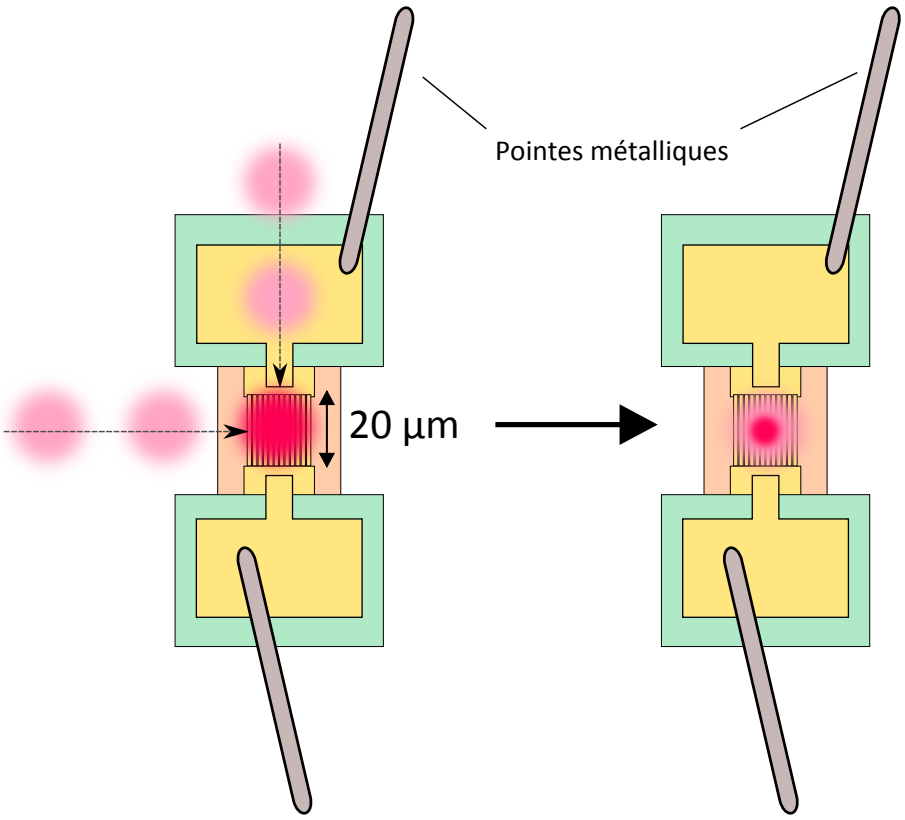


FIGURE 8.7 – Ajustement de la position du spot laser, vu du dessus de l'échantillon. Le spot peut se déplacer latéralement pour commencer à trouver un signal satisfaisant. Une fois aligné, on peut déplacer le spot longitudinalement afin de faire varier le waist du faisceau, et augmenter le signal.

8.4.2 Solution retenue

La source choisie est un OPO APE nanoLevante. Elle délivre des impulsions d'une durée $\Delta t = 2$ ns à une fréquence de répétition $f = 20$ kHz, provenant, au choix, d'un faisceau signal accordable entre 1.43μm et 2μm, ou d'un complémentaire entre 2.2 μm et 4.2 μm. Dans notre situation, c'est bien entendu le faisceau signal qui est utilisé. La sortie de cette voie a été injectée dans une fibre monomode, dont la sortie est couplée à un collimateur Thorlabs F810APC-1550 procurant un faisceau de diamètre 7 mm.

La fibre n'étant pas à maintien de polarisation, un polariseur linéaire est placé sur le trajet du faisceau. Il précède un cube séparateur de polarisation. L'association de ces deux composants permet de contrôler la quantité de flux se dirigeant vers l'échantillon, tandis que le résidu est mesuré par une photodiode. Une photodiode similaire est utilisée pour capter le flux réfléchi par la surface de l'échantillon afin de contrôler la position longitudinale de la focalisation. Une lame demi-onde à 1.55 μm permet la rotation de la polarisation linéaire du faisceau direct, avant sa focalisation sur l'échantillon.

Afin de favoriser autant que possible l'absorption non-linéaire, et limiter l'incidence d'énergie sur les bords du dispositif, nous avons décidé de travailler avec une focalisation encore plus performante. Nous utilisons une lentille asphérique Thorlabs C240 TME-C, disposant d'une focale très courte de 6 mm. L'ouverture numérique totale est de 0.5, ce qui garantit une tache de focalisation quasiment limitée par la diffraction sur la plage de longueurs d'onde que nous allons étudier [1.4 μm, 1.6 μm]. Comme le faisceau source que nous utilisons est supposé gaussien, la structure est illuminée avec un cône d'incidence de demi angle +8 (correspondant au rayon à $1/e^2$).

L'ensemble de la partie optique du montage, de la sortie de fibre jusqu'à l'optique de focalisation, est monté sur un ensemble de trois platines de translation permettant de déplacer le point focal sur la surface de l'échantillon.

Les faisceaux de l'OPO étant générés par une pompe à 1064 nm, un faisceau pilote issu de la pompe doublée à 532 nm est utilisable pour l'alignement, en observant la légère diffusion de cette lumière par la surface. Cette surface est filmée à travers l'objectif d'une binoculaire, permettant de placer l'intégralité du montage dans une boîte noire, et d'effectuer l'alignement de la partie optique et les séries de mesures avec cette boîte fermée. Une fois le spot positionné, il reste à placer deux pointes métalliques prenant appui sur les pads métalliques latéraux entourant la photodiode choisie : elles sont reliées à un source-mètre Keithley 6430, permettant de polariser la jonction et de récupérer le courant la traversant. Un schéma du montage est présenté sur la figure 8.8, et des clichés sont présentés sur la figure 8.9.

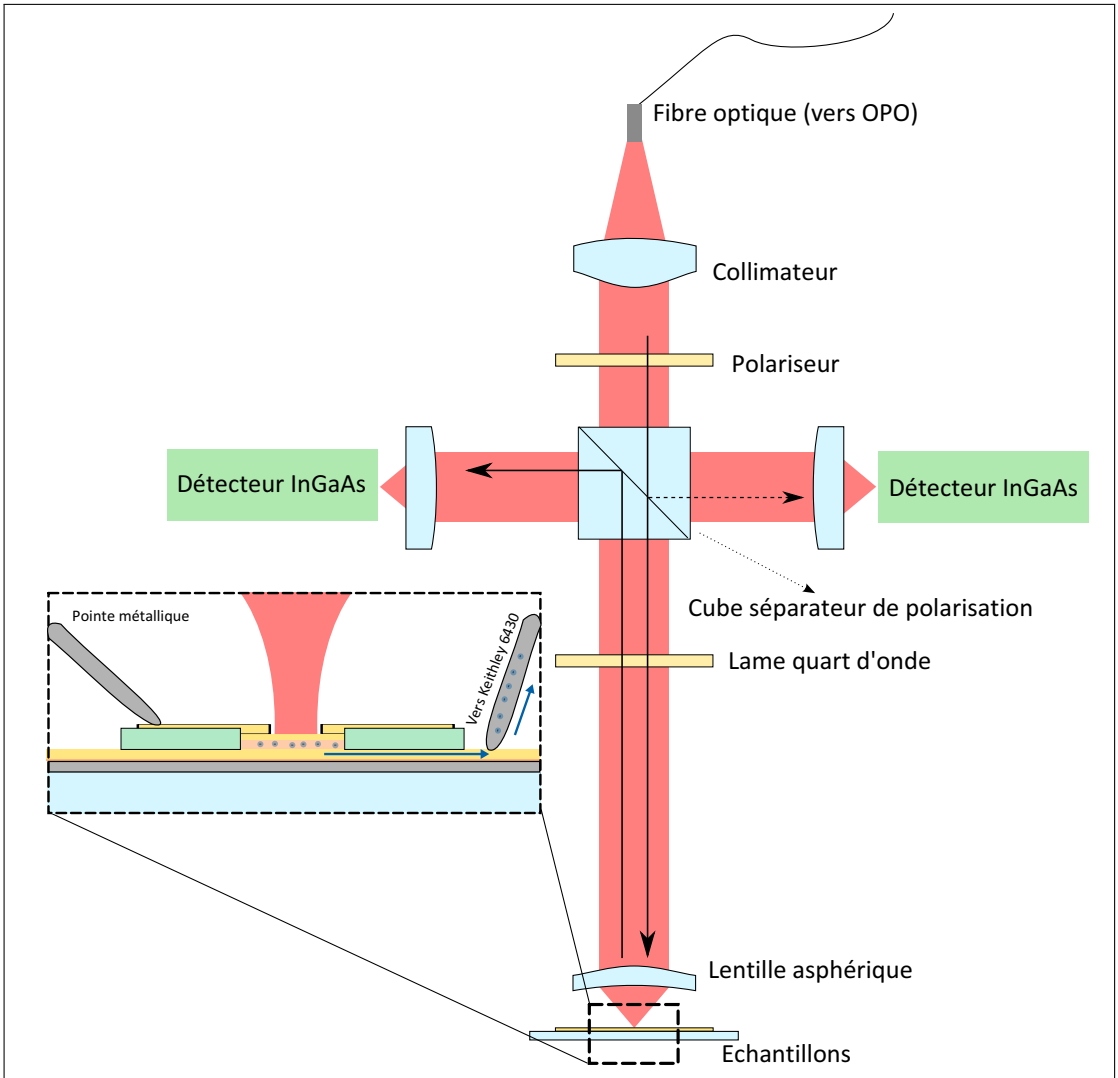


FIGURE 8.8 – Montage INRI (Illumination de Nanostructures Résonantes dans l'Infrarouge) de caractérisation opto-électronique de l'absorption à deux photons. En insert, un zoom sur un dispositif testé. Deux pointes métalliques servent à polariser la jonction et récupérer le courant. Une pointe repose sur un des plots métalliques, l'autre sur le miroir d'or qui recouvre la surface.

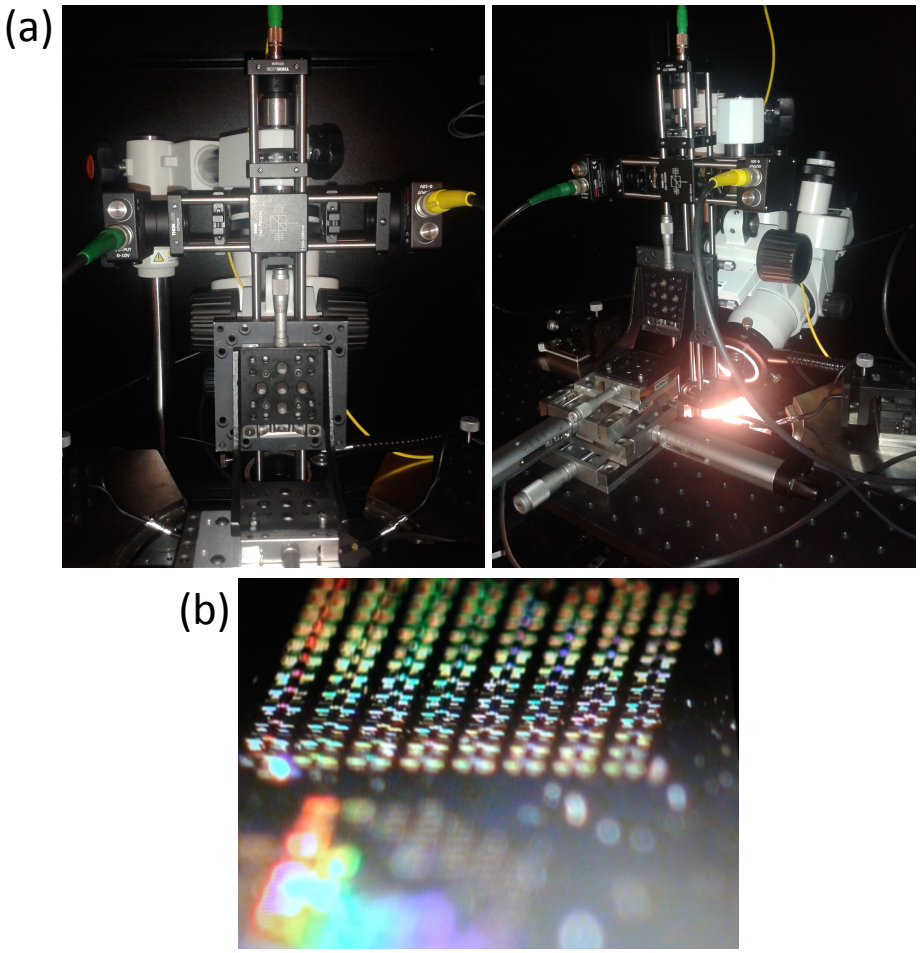


FIGURE 8.9 – (a) Deux clichés du banc INRI, monté dans une boîte noire. (b) Capture d'écran de la voie d'observation de la binoculaire. Cette dernière permet d'observer en temps réel les échantillons pour positionner les pointes métalliques sur les contacts à la surface.

8.4.3 Acquisition et résultats

Les échantillons présentés se différencient par deux paramètres : la période du réseau, et le facteur de remplissage, chacun balayant continûment une plage de valeurs. Chaque structure présente donc une résonance légèrement différente de ses voisines directes.

La phase d'acquisition débute par une caractérisation I-V, afin de vérifier le bon fonctionnement de la photodiode et son caractère redresseur. Une fois les composants fonctionnels identifiés, un balayage en longueur d'onde est réalisé. Il permet d'identifier la résonance recherchée en polarisation TM. En particulier, on oriente l'échantillon de telle manière que la polarisation de sortie du cube séparateur de polarisation soit la polarisation TM pour nos dispositifs. La gamme spectrale de l'OPO débutant autour de 1.43 μm, avec donc un flux réduit, les résonances en deçà ou trop proches de ce seuil ne peuvent donner lieu à un niveau sensible de signal (voir figure 8.10).

En accord avec les résultats des caractéristiques I-V présentées par la figure 8.6, on polarise les jonctions à $V_{bias} = -100$ mV. Un certain nombre de structures n'étaient pas fonctionnelles, à cause de mauvaises connections entre les plots métalliques et le réseau, d'autres présentaient des courants de fuite trop importants (de l'ordre du nA) pour pouvoir être considérées comme fonctionnelles.

Les graphes de le figure 8.10 concernent une des structures fonctionnelles, étiquetée G6, avec comme consigne de fabrication une période $p = 650$ nm et un facteur de remplissage de 55%. Le balayage en longueur d'onde fait apparaître un pic très distinctif autour de 1.46 μm, entouré d'un niveau de signal sensiblement égal au courant d'obscurité (de l'ordre de 30 pA). C'est la résonance attendue, légèrement décalée par rapport à sa position théorique qui la situait à 1.49 μm. Nous avons attribué ce décalage aux quelques nanomètres de GaAs potentiellement gravés en excès lors des étapes de gravure sélective et de désoxydation : ainsi, pour des épaisseurs légèrement plus faibles de GaAs ($h_{GaAs} = 191$ nm) la résonance est localisée à 1.47 μm.

On trace en regard de ce graphe de réponse spectrale, la puissance optique relative telle qu'elle est mesurée simultanément pendant l'acquisition du courant. On observe que dans l'intervalle spectral cernant la résonance, la puissance optique augmente continûment avec la longueur d'onde ; elle n'est que d'une poignée de mW, focalisés donc sur une surface inférieure à un carré de 20 μm de côté, faisant grimper l'intensité à quelques W.cm^{-2}. L'émergence du pic de résonance en photocourant montre donc l'efficacité de la génération de photocourant dans une photodiode PIN qui fait seulement 191 nm d'épaisseur.

Pour confirmer la nature non-linéaire du courant, nous lançons une caractérisation I-P, dans l'espoir d'observer une évolution quadratique du courant avec la puissance optique incidente. Cette caractéristique est représentée sur la figure 8.11 Pour cela, nous utilisons une lame demi-onde en amont du cube séparateur de polarisation. La succession des deux éléments constitue un « robinet à photons », la puissance optique transmise

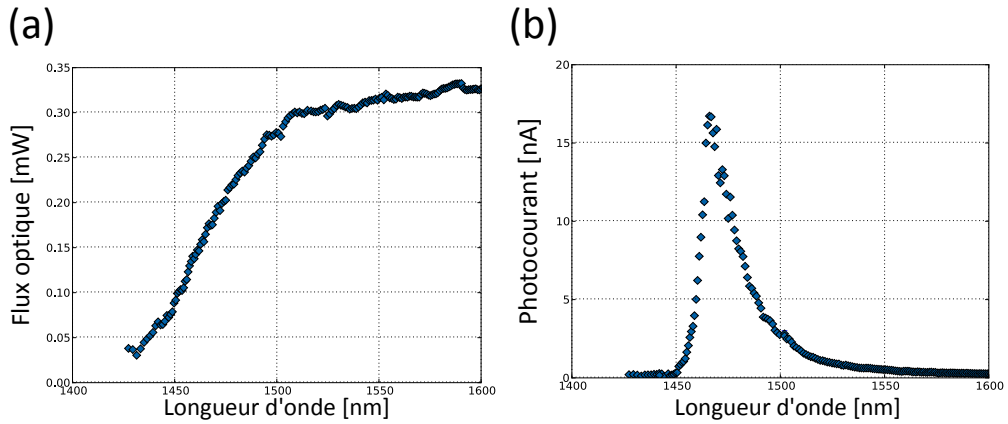


FIGURE 8.10 – Étude spectrale du dispositif G6, avec comme consigne de paramètres $p = 500$ nm et $w = 360$ nm. (a) Flux optique mesuré par le détecteur de référence InGaAs, indiquant l'évolution du flux incident sur la structure. (b) Photocourant récolté par les pointes métalliques en fonction de la longueur d'onde incidente.

par le cube suivant la loi de Malus :

$$P_{in}(\theta_{\frac{\lambda}{2}}) = P_0 \cos^2\left(2\theta_{\frac{\lambda}{2}}\right) \tag{8.4}$$

Le niveau maximal de courant observé n'étant que de deux ordres de grandeur au-dessus du niveau d'obscurité, une division par seulement 10 du flux optique en entrée peut nous ramener à un bas niveau de photocourant ; l'évolution quadratique est cependant facilement identifiable sur cette décade, et permet donc de désigner l'absorption à deux photons comme mécanisme à l'origine de la génération de photocourant à la résonance.

La suite de la démarche va nous amener à des considérations plus quantitatives, dans l'idée de calculer un gain sur le coefficient d'absorption à deux photons du matériau brut, tel qu'il a été mesuré plusieurs fois dans la littérature. Pour cela, on rappelle le lien entre photocourant et coefficient d'absorption :

$$i_{ph} = \frac{e\lambda}{2hc}\eta_{int}\beta_{eff}^{D2PA}P_{in}^2\frac{L}{S} \tag{8.5}$$

où i_{ph} est le photocourant, P_{in}^2 la puissance optique incidente, L est la longueur d'interaction de la lumière, que nous prendrons égale à h_{GaAs}, et η_{int} un rendement d'extraction intrinsèque que nous prendrons égal à 1 par souci de simplicité. Ce calcul nécessite de pouvoir estimer de manière assez précise la surface éclairée. Nous avons donc réalisé une expérience de « spot scan »en déplaçant le spot au delà des bords du dispositif pour observer la chute de photocourant. Les résultats sont présentés sur la figure 8.12. La courbe de fit est tracée à partir de l'évaluation de l'intensité contenue dans une gaussienne tron-

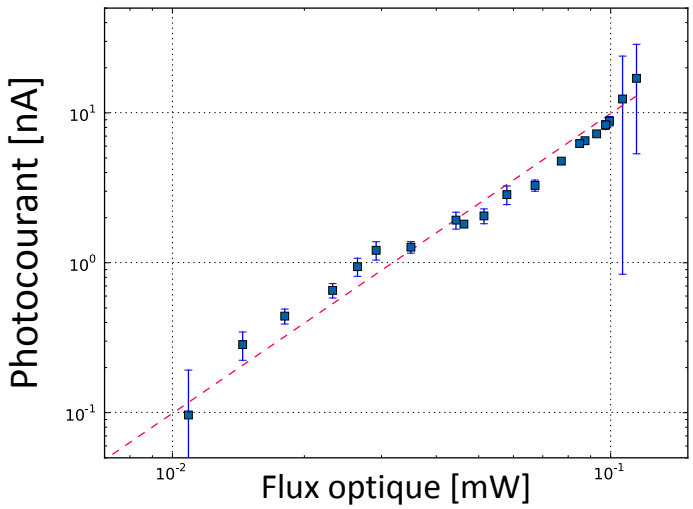


FIGURE 8.11 – Caractéristique I-P de la photodiode G6 mesurée à 1475 nm, soit à la résonance théorique du dispositif. Le comportement quadratique est observé sur la décade explorée, confirmant le caractère non-linéaire de l'absorption à l'origine du photocourant.

quée. On observe bien un palier central, puis une chute de photocourant lorsque le spot quitte l'échantillon, mais cette étape se traduit par un signal très bruité d'une part, et d'autre part par une décroissance moins rapide que ne le prévoit notre modèle. Ceci est probablement dû au profil du spot après focalisation par la lentille asphérique : une partie de l'énergie se retrouve assez éloignée du centre du faisceau, et pourrait contribuer encore au photocourant même après des déplacements importants de nos platines de translation.

Finalement, on retient comme valeur du waist $w_0 = 4\ \mu$m, confirmée par une mesure de type « couteau de Foucault »effectuée en amont du montage avec la lentille de focalisation. En considérant donc une surface de focalisation $S = \pi w_0^2$, nous avons toutes les cartes en main pour évaluer le coefficient d'absorption à deux photons effectif à $\lambda = 1.47\ \mu$m :

$$\beta_{eff}^{D2PA} = i_{ph} \times \frac{e\lambda}{2hc} \times \frac{S}{L} \times \frac{f\Delta t}{P_{in}^2} \approx 1050 \pm 128 \text{cm/GW} \tag{8.6}$$

ce qui représente un facteur de gain $G^{D2PA} = 109 \pm 13$ par rapport au cas d'une couche uniforme de GaAs munie d'un anti-reflet, pour laquelle $\beta_{eff}^{D2PA} = \beta_{D-2PA}^{GaAs} = 9.6$ cm/GW à la même longueur d'onde[Fishman 11]. La simulation de la structure étudiée a des dimensions qui l'éloignent de la configuration optimale définie au chapitre précédent. La simulation des performances de ce dispositif donne un gain $G_{D-2PA}^{sim.} = 139$ à $\lambda = 1.49\ \mu$m, la longueur d'onde de sa résonance théorique, et une tolérance angulaire bien moindre

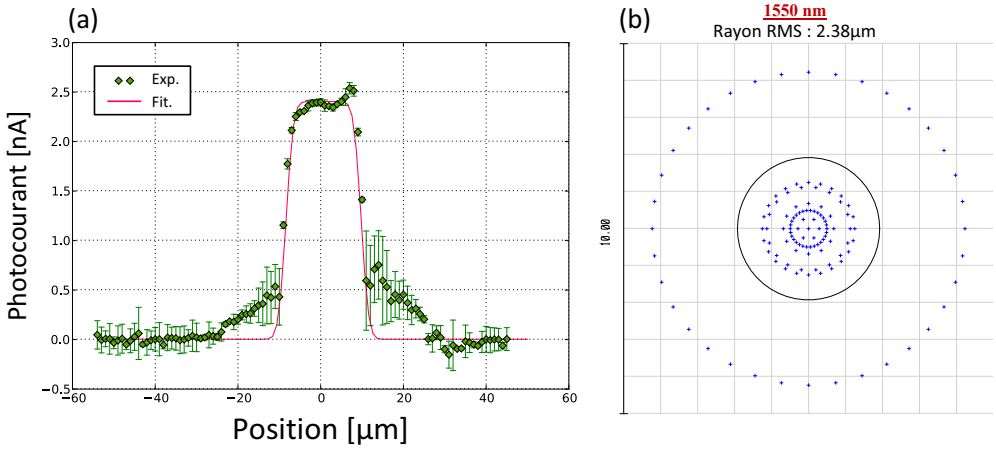


FIGURE 8.12 – Expérience de spot-scan pour l'évaluation de la taille du spot. (a) Évolution du photocourant collecté en fonction de la position du spot, pour une translation selon un axe. (b) Données constructeur des performances de focalisation de l'asphérique C240TME-C utilisé sur INRI, pour $\lambda = 1.55\mu$m. Si l'essentiel de l'énergie est comprise dans une tache limitée par la diffraction, l'étalement total de la tache est presque de 20μm.

(voir figure 8.13). Ce léger écart avec les performances vérifiées expérimentalement sont très certainement liées à une surestimation du rendement d'extraction des porteurs, supposé unitaire mais sans aucun doute inférieur à 1.

L'importance du réseau peut être observée qualitativement et quantitativement en réalisant un balayage en longueur d'onde d'une structure ne disposant pas de réseau : il s'agit donc simplement d'une photodiode PIN en GaAs. Le graphe 8.14 permet de comparer les deux situations (présence/absence de réseau) : sans réseau, un courant peut être généré mais ne présente aucun caractère résonant, ni signature particulière en longueur d'onde. De plus, il faut atteindre des intensités optiques plus importantes (quelques dizaines de mW) pour générer ce courant, qui profite cependant de l'absence de réflectivité du réseau d'or.

Conclusion

Cette partie a présenté le travail réalisé sur une première architecture de nanostructures visant à améliorer l'absorption à deux photons dégénérée dans un photodétecteur. La conception de ce composant intègre les contraintes et les réflexions nées lors des expériences sur les photodétecteurs commerciaux : choix du matériau, simplicité... En particulier, la géométrie de la résonance a été pensée pour tenter de limiter autant que faire se peut les recombinaisons aux interfaces, dont nous pensons qu'elles sont une des sources essentielles d'absorption linéaire sub-gap. Ainsi, le champ électromagnétique a

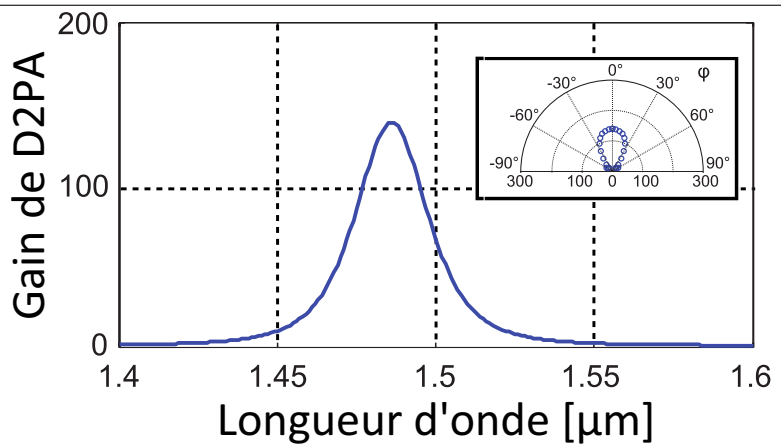


FIGURE 8.13 – Simulation du gain et de la tolérance angulaire de la structure G6, pour ses paramètres de consigne de fabrication. Les performances sont moindres que pour la situation optimale vue au chapitre précédent, avec notamment un gain maximum de 139, contre les 249 de la structure optimisée.

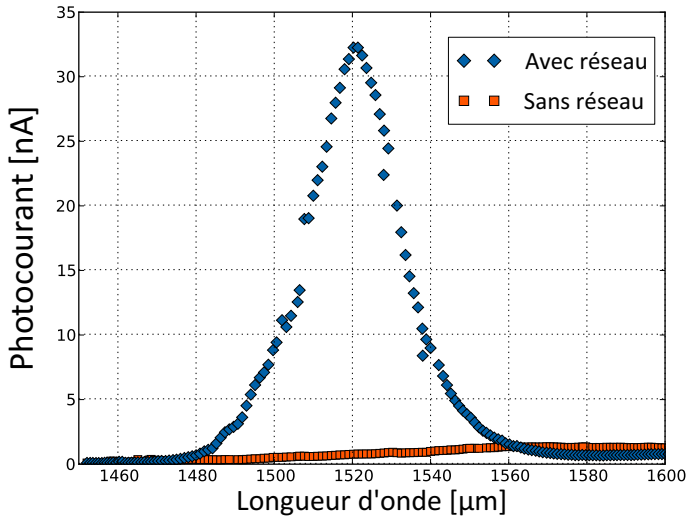


FIGURE 8.14 – Photocourant collecté en fonction de la longueur d'onde incidente en polarisation TM. La courbe bleue présente les performances de la structure M5, de paramètres $p = 600$ nm, $w = 460$ nm, avec une résonance théorique à 1.54 μm. La courbe rouge présente le courant généré dans la structure M0, un des dispositifs issus des mêmes couches épitaxiées mais qui ne possède pas de réseau. La présence du réseau introduit le caractère résonant. A une longueur d'onde donnée, le flux optique incident est identique pour les deux courbes.

été concentré au cœur d'une photodiode PIN, et ne "bave" pas sur les interfaces.

L'adjonction du réseau de diffraction permet de coupler les ordres diffractés avec un mode guidé dans cette fine couche de GaAs. Il en résulte un champ confiné spectralement et spatialement, propice à l'exaltation d'une résonance en photocourant généré par absorption à deux photons. Après caractérisation sur banc des échantillons précédemment réalisés en salle blanche, un facteur de gain d'environ deux ordres de grandeur pour un processus autour de 1.46 μm a été calculé. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication dans *Applied Physics Letters* [Portier 14]. Les performances de cette résonance sont sujettes à amélioration, sur le plan du gain mais aussi sur le plan de la tolérance angulaire, dont on a vu que l'optimisation du réseau pouvait étendre considérablement le domaine.

Cette architecture est une base sur laquelle je me suis appuyé pour proposer une évolution vers une solution à deux longueurs d'ondes distinctes, autorisant l'absorption à deux photons non-dégénérée.

Je ne perds jamais. Jamais vraiment.

Alain Delon
Le Samouraï
de Jean-Pierre Melville

Chapitre 9

Détection non-dégénérée dans des nanostructures

Nous venons de présenter un exemple de cavité à résonance de modes guidés spécifiquement conçue pour l'amélioration de l'absorption dégénérée. La résonance exploitée dans cette étude à 1.49 μm possède des caractéristiques qui ont permis de contourner le problème de l'absorption à un photon, tout en fournissant un gain au processus, qui permet de considérer les structures fabriquées comme des photodétecteurs fonctionnels à deux photons. Dans ce chapitre, nous étendons les concepts de l'étude précédente au cas de l'absorption à deux photons non-dégénérés, pour laquelle de nouvelles contraintes apparaissent.

9.1 Choix du matériau

Nous avons cette fois décidé d'utiliser l'InP pour fabriquer la couche active de la photodiode. Son gap (1.344 eV) et son indice (3.17 à 1550 nm [Gini 96]) sont sensiblement égaux à ceux du GaAs (respectivement 1.42 eV et 3.37 [Skauli 03]). En changeant de matériau de la sorte nous pourrons évaluer une fois le composant réalisé la réponse linéaire sub-gap du composant et la comparer à celle du GaAs telle que nous avons pu l'apercevoir plus haut.

9.2 Principes de conception propres au cas non-dégénéré

Le travail à deux longueurs d'onde différentes introduit une contrainte de dimensionnement vis-à-vis du régime de fonctionnement de la structure. Celle-ci se voulant être le prolongement de la structure vue au chapitre précédent, travailler avec deux longueurs d'onde très dissymétriques - jusqu'à un ordre de grandeur de différence - rend délicat d'identifier une configuration résonante pour le signal qui le soit aussi pour la pompe. Plus précisément, la physique à l'origine de la résonance d'un des deux champs a peu de

chance d'être tout à fait transposable à la longueur d'onde du second champ.

Cette contrainte intuitive étant posée, nous nous sommes placés dans une situation de dissymétrie "intermédiaire", où la pompe est dans le proche infrarouge, à 1064 nm, et le signal à 3.39 μm : il y a un facteur 3 entre les deux énergies de photons considérées.

L'évaluation de l'absorption de ces structures se fait en évaluant le recouvrement de $E_s(x,y,z)$ (champ électromagnétique signal dans la structure) par $E_p(x,y,z)$ (champ électromagnétique pompe dans la structure). L'absorption non-linéaire n'a qu'un effet très faible sur les champs, en particulier il n'y a déplétion ni de la pompe, ni du signal. De plus, l'absorption à deux photons est un processus ne nécessitant aucun accord de phase entre les champs. On peut donc légitimement se contenter de calculer la distribution des champs électriques telle que fournie par des calculs analytiques ou des simulations numériques, comme le résultats des calculs linéaires de la méthode modale B-Spline [Bouchon 10], puis évaluer la superposition des champs pour se donner une idée de la carte d'absorption non-dégénérée dans la couche de semiconducteur.

9.2.1 Coïncidences spatio-temporelles de photons

Reprenons la structure D2PA exposée précédemment. La couche de GaAs formant la photodiode est fine, 191 nm, et sa dimension est conçue pour une résonance du champ autour de 1.5 μm. Nous avons décidé de redimensionner cette structure pour une résonance analogue du signal à 3.39μm. En effet, favoriser une résonance de la pompe aurait nécessité une contraction globale, ce qui n'est ni tout à fait souhaitable, ni véritablement envisageable. A l'inverse, aller dans le sens des longueurs d'onde plus grandes oriente le redimensionnement vers une dilatation des distances plutôt qu'une contraction, ce qui relâche l'essentiel des contraintes technologiques apparues dans le cas D2PA.

A ces considérations techniques s'ajoute une réflexion plus pragmatique sur le rôle qu'occupe chacune des sources dans l'optique de la détection IR.

— Le signal en bande II à 3.39 μm est la source d'informations que nous cherchons *in fine* à détecter : en réalité, nous devons admettre qu'aucun « contrôle »n'est possible sur le flux incident provenant de la scène IR à imager. Chaque photon doit donc être capté au mieux pour participer à l'absorption d'une paire non-dégénérée.

— La pompe est avant tout là pour alimenter en photons le matériau actif, plus précisément là où les photons signal seront réunis et concentrés. En pratique, on s'autorise un contrôle quasi-total sur la pompe, que ce soit sa polarisation, le flux optique, son angle d'incidence...

En résumé, nous nous plaçons en situation de ne disposer d'aucun degré de liberté sur la source IR, et à l'inverse, d'un contrôle total sur la pompe. Ainsi, nous mettons les degrés de liberté liés au dimensionnement de la structure au profit d'une résonance portée sur le signal IR. Nous exploiterons ensuite notre contrôle de la pompe pour favoriser l'absorption non-dégénérée, en provoquant les rencontres de photons des deux sources, en faisant tout pour que les photons IR puissent rencontrer un photon de pompe, la réciproque n'étant pas prioritaire.

Ces rencontres de photons doivent être de deux natures :

Des coïncidences spatiales

Les deux champs doivent bien évidemment se superposer dans un volume non-négligeable de la structure, les événements d'absorption étant contingents à la section efficace optique d'absorption des systèmes permettant ces processus. Cette section efficace est très faible (de l'ordre de $10^{-20} cm^2$). Outre le recouvrement "macroscopique" des champs, la concentration respective en photons - c'est-à-dire l'intensité des champs - est capitale à deux titres : alors qu'elle doit être la plus importante possible pour le signal IR, une intensité de pompe trop élevée risquerait de générer un photocourant d'absorption dégénérée conséquent. Son évolution étant quadratique avec la puissance incidente, il est attendu qu'elle puisse surpasser l'absorption non-dégénérée, (qui n'évolue que linéairement avec la pompe) bien que cette dernière soit plus « efficace »en terme de rendement de conversion des photons.

Le bruit associé à l'absorption dégénérée suivant également une évolution linéaire dans le cas idéal, nous ne pouvons attendre dans le meilleur des cas qu'une stabilisation du RSB du signal non-dégénéré, à mettre en parallèle d'un signal dégénéré émergent. Ceci pointe la nécessité d'un compromis à identifier sur la puissance de pompe, ce qui fait écho à mes séries d'expériences réalisées dans des détecteurs commerciaux.

Comme il est possible d'agir sur la puissance de pompe, on essayera de faire en sorte que :

$$S_s \cap S_p = S_s \tag{9.1}$$

où S_s est la section du faisceau signal dans la couche active et S_p la section du faisceau pompe dans le même milieu.

Des rencontres temporelles

Les photons doivent se rencontrer au même endroit ET au même moment. L'utilisation d'un OPO était pour le moins commode dans le cas D2PA : elle permettait le balayage en longueur d'onde mais également, en configuration impulsionnelle avec f la fréquence et Δt la durée des impulsions, d'atteindre des niveaux d'intensité-crête plus

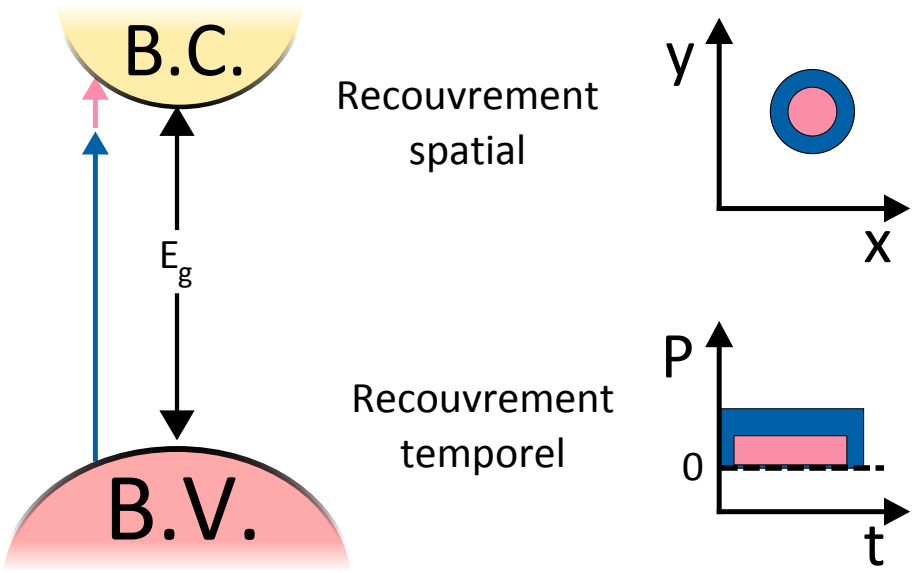


FIGURE 9.1 – Configuration souhaitée pour l'étude de l'absorption non-dégénérée : recouvrement spatial et temporel du signal par la pompe.

élevé qui augmentait le signal de détection moyen d'un facteur $\frac{1}{f\Delta t}$. Là encore, cet avantage était lié à la dépendance quadratique du photocourant avec la puissance incidente. A l'évidence, cet avantage n'en est plus un pour la configuration non-dégénérée, dont le photocourant est linéaire à la fois pour la pompe et le signal.

Il n'y a donc mathématiquement rien à attendre d'une variation du rapport cyclique d'une ou des deux sources à puissance moyenne constante. Pire, ici le rapport cyclique s'apparentera plus à un « facteur de remplissage », remplissage de photons en dehors duquel tous les photons possiblement fournis par l'autre source seront inutiles, car incapables de trouver un vis-à-vis permettant l'absorption non-dégénérée.

En somme, si le signal est issu d'une source continue, le régime temporel de la pompe s'apparentera à un interrupteur pour l'absorption non-dégénérée.

$$T_s \cap T_p = T_s \tag{9.2}$$

où T_s est l'intervalle temporel pendant lequel la détecteur reçoit des photons issu du signal, et T_p correspondant à l'intervalle temporel de présence de photons pompe.

9.2.2 Cas des cavités non structurées

Reprenons le cas des cavités non structurées, évoqué au chapitre 7.1.2. On doit dorénavant traiter avec deux relations modales, prenant notamment en compte la dispersion

du milieu :

$$2n_p h = m\lambda_p^m \tag{9.3}$$

$$2n_s h = m^{'}\lambda_s^{m^{'}} \tag{9.4}$$

avec m et $m^{'}$ des entiers différents de 0. En première approximation, comme on reste dans les zones de faible dispersion des matériaux, on peut considérer $n_s \approx n_p$. Il reste alors :

$$\lambda_s^{m^{'}} \approx \frac{m}{m^{'}}\lambda_p^m \tag{9.5}$$

Comme $\lambda_s > \lambda_p$, alors $m > m^{'}$, ce qui signifie que le mode fondamental de la cavité ne peut être excité que par le signal, la pompe excitant des modes d'ordre nécessairement supérieurs. On vérifie l'égalité $h = \frac{m^{'}\lambda_s}{2n_s} = \frac{m\lambda_p}{2n_p}$. Le champ pompe évolue alors dans la couche en $\sin^2(m\pi\frac{z}{h})$ et le signal en $\sin^2(m^{'}\pi\frac{z}{h})$. Le photocourant généré dans la cavité peut s'exprimer :

$$i_{ph}^{ND2PA} = K\int_0^h P_s(z)P_p(z)dz = \frac{1}{4}n_s n_p f_s^2 f_p^2 P_s P_p \tag{9.6}$$

où le facteur 1/4 vient de l'intégrale de $\sin^2(m\pi\frac{z}{h})\sin^2(m^{'}\pi\frac{z}{h})$ entre 0 et h avec $m \neq m^{'}$. La différence des modes empêche le recouvrement total des deux sources de photons : on perd un facteur 3/2 par rapport à l'intégrale de recouvrement du cas dégénéré, qui donnait 3/8. Avantage de la géométrie des résonances, le champ reste nul à proximité des interfaces. Plus embêtant, le recouvrement des champs est limité par la pompe (voir figure 9.2) : une partie des photons signal est donc nécessairement « perdue », car non superposée avec la pompe.

Prenons le cas d'une cavité avec un simple dioptre air/GaAs en entrée et un miroir d'or en face arrière. On choisit comme pompe $\lambda_p = 1.064\ \mu$m :

Pompe	Épaisseur de la cavité (nm)	Signal
1064nm (m=2)	230	2 μm ($m^{'} = 1$)
1064nm (m=3)	460	3 μm ($m^{'} = 1$)
1064nm (m=4)	612	4 μm ($m^{'} = 1$)

Le calcul des coefficients f_s et f_p donnant sensiblement les mêmes valeurs que dans la cas dégénéré, on trouve par exemple pour la résonance à 4 μm un gain $G_{ND2PA} = 38$, principalement réduit en raison de la modification du préfacteur. A partir de cet exemple, on cerne que le cas de cavités non structurées est encore moins avantageuse que dans le cas dégénéré, notamment à cause de l'impossibilité de faire résonner pompe et signal sur le même mode. En principe, on cherchera donc à exploiter différents mécanismes de résonance, aussi indépendants que possible, pour faire résonner chacun des champs sur

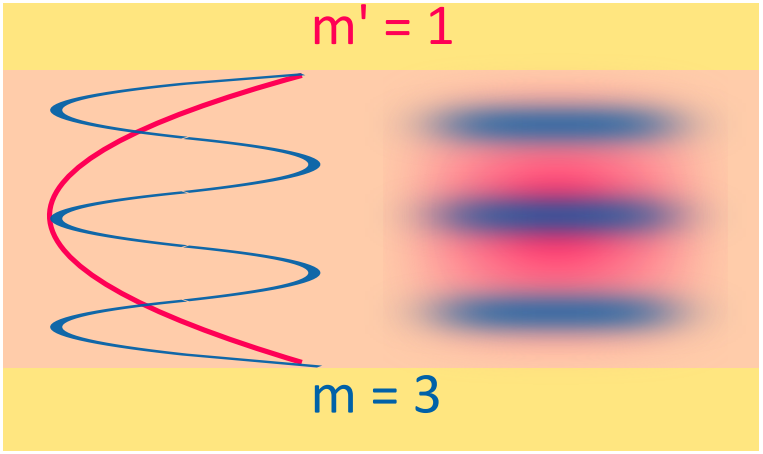


FIGURE 9.2 – Résonance des deux champs pompe et signal dans une même cavité. La longueur d'onde signal, plus grande, impose la longueur minimale de la cavité pour résonner au mode fondamental $m_s = 1$. La pompe résonne dans un mode supérieur, ici $m_p = 3$. Les courbes à gauche représentent l'évolution du champ dans la cavité.

la base de principes physiques distincts.

Le moyen intuitivement le plus direct de s'assurer que le signal est recouvert par toute la pompe est de trouver le moyen de placer le champ pompe dans toute la couche active. Je me suis donc orienté vers des solutions basées sur le guidage de la pompe dans la couche.

9.3 Guidage de la pompe et résonances de structures Métal-Isolant-Métal (MIM)

Guider la pompe dans la couche de semi-conducteur nécessite dans un premier temps d'utiliser une couche fine de semiconducteur. En effet, en configuration non-dégénérée, voire extrêmement non-dégénérée, l'épaisseur doit être de l'ordre de $\frac{\lambda_p}{2n_p}$. La face d'entrée de la structure doit être semi-réfléchissante pour permettre un confinement certain de l'onde pompe.

9.3.1 Guidage de la pompe dans une cavité non structurée

On commence donc par concevoir une cavité sans structuration avec une fine couche d'or en face d'entrée. Nous savons que l'optimum du confinement est atteint pour des épaisseurs fines du miroir d'entrée, inférieures à 30 nm. Le miroir est alors semi-transparent, et propose un compromis entre réflectivité de la cavité formée et pertes introduites par l'épaisseur d'or. On se place en incidence normale.

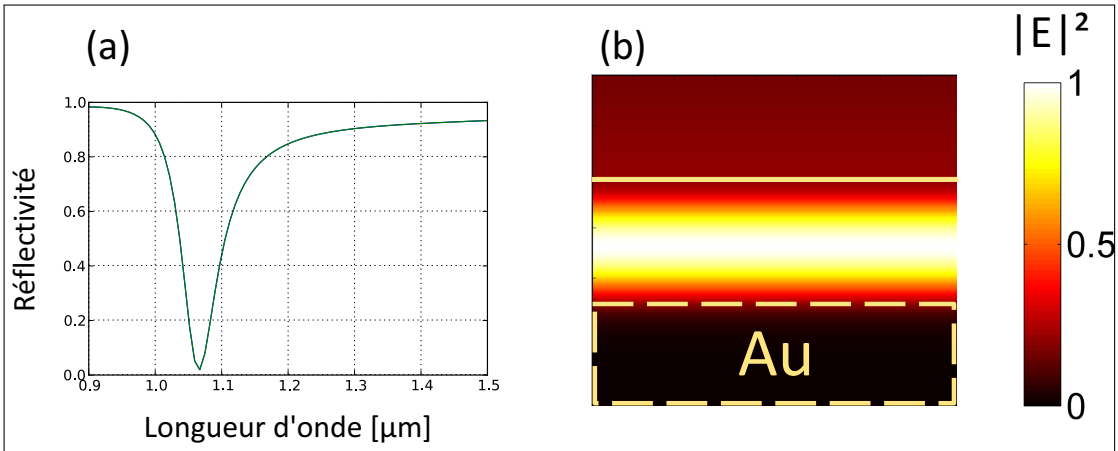


FIGURE 9.3 – Cavité non structurée résonante pour la pompe. (a) Réflectivité de la structure autour de 1064 nm. (b) Distribution de $|E|^2$ dans le dispositif.

Le graphe 9.3 présente les dimensions d'une structure guidant la pompe pour une incidence normale. Comme il n'y a pas de structurations pour le moment, la polarisation n'a pas d'influence. Si la pompe est résonante dans cette configuration, aucune longueur d'onde IR (bande II) ne l'est. La réflectivité est quasi unitaire, aux quelques pertes introduites par la structure près, et le champ signal dans la cavité est nul. Nous allons donc structurer le miroir d'entrée en y traçant des fentes d'air afin de modifier les propriétés optiques du dispositif.

9.3.2 Structuration du miroir d'entrée

L'apparition de fentes d'air, même très fines, induit une rupture de symétrie qui a pour conséquence de séparer la résonance précédente en deux pics de polarisations respectives TE et TM (voir figure 9.4). Tous deux correspondent à une résonance du mode 0 de la cavité, et la tolérance angulaire associée est très bonne. La séparation des pics augmente au fur et à mesure que le facteur de remplissage diminue (ou que les fentes d'air s'élargissent) :

— La résonance TE se déplace vers les plus grandes longueurs d'onde. Pour des facteurs de remplissage importants, le champ est invariant selon l'axe x. Cependant, la géométrie globale de la résonance se montre assez sensible au facteur de remplissage lorsqu'il descend en dessous de 90 %. En particulier, on voit l'apparition de deux pics situés de part et d'autre de la résonance initiale, et présentant des géométries de champ symétriques : le champ est localisé soit majoritairement sous le plot de métal, soit sous le dioptre air/GaAs. Quelques modes de résonance d'ordre supérieur font leur apparition pour des longueurs d'ondes plus élevées.

— La résonance TM se déplace très peu en longueur d'onde avec le facteur de remplissage. Le champ se localise au centre de la couche, sous le métal seulement. Il s'agit selon toute vraisemblance de la résonance étudiée dans le cas dégénéré que nous avions attribuée également à une résonance du mode 0 de la cavité après étude du diagramme de dispersion.

Il est donc possible de jouer sur le facteur de remplissage pour influer sur la position des modes supérieurs de résonance en polarisation TE par rapport à la résonance TM, qui bouge très peu.

9.3.3 Résonance MIM des rubans de métal

Le tracé des fentes d'air fait progressivement évoluer les propriétés optiques de la structure. Plus particulièrement, on dessine ainsi progressivement des rubans de métal dont nous pouvons exploiter les dimensions afin de faire résonner le signal. Chaque ruban définit un empilement métal-semiconducteur-métal, structure individuelle dont on peut montrer l'équivalence avec une structure présentant un sillon de diélectrique tracé dans du métal [Koechlin 13] . Cette architecture forme une cavité assimilable à un Fabry-Pérot [Takakura 01], et présentant donc des résonances de guide d'ondes qu'il est possible d'exciter avec une onde de polarisation TM. L'excitation de plasmons de surface à la résonance est à l'origine d'un confinement d'une partie du champ à l'interface métal-semiconducteur. Ce type de résonateur est parfois désigné sous le nom de résonateur MIM (métal-isolant-métal). On met pour l'instant de côté le caractère collectif de notre photodétecteur qui peut être vu comme une combinaison de MIM, pour se pencher simplement sur un MIM unique : la résonance observée est localisée.

En configuration non-dégénérée, on part du principe que la présence du champ signal à proximité des interfaces est beaucoup moins problématique que celle du champ pompe, dans la mesure où les événements d'absorption à un photon, très peu probables compte tenu de l'énergie des photons signal, ne feront que contribuer à un éventuel signal de photodétection que nous recherchons. Dans plusieurs papiers, textscLe Perchec *et al.* [Le Perchec 09, Le Perchec 12] ont démontré la possibilité d'exploiter ces résonateurs pour faire de la photodétection. Pour cela, une fine couche de semiconducteur, absorbante à la longueur d'onde de détection, était utilisée sous un ruban de métal : par exemple, 40 nm d'InSb sous un ruban d'Al, pour des longueurs d'onde à détecter situées en bande II. Dans notre cas, la principale différence réside dans le caractère non-absorbant du semiconducteur : il est transparent pour chacune des longueurs d'onde pompe et signal, mais devient très légèrement absorbant pour l'une des longueurs d'ondes en présence de l'autre. Ce détail compris, il reste que la physique de la résonance n'est pas affectée. Une des propriétés des résonateurs MIM en rubans (donc en 1D) est qu'ils sont sélectifs en polarisation : en TE, le champ ne peut pas résonner dans le semiconducteur. Les résonances MIM peuvent être rendues insensibles à la polarisation à la condition d'utiliser des motifs métalliques 2D. Ce n'est pas envisageable dans notre cas, car les motifs du réseau sont aussi exploités comme électrodes interdigitées pour la polarisation des

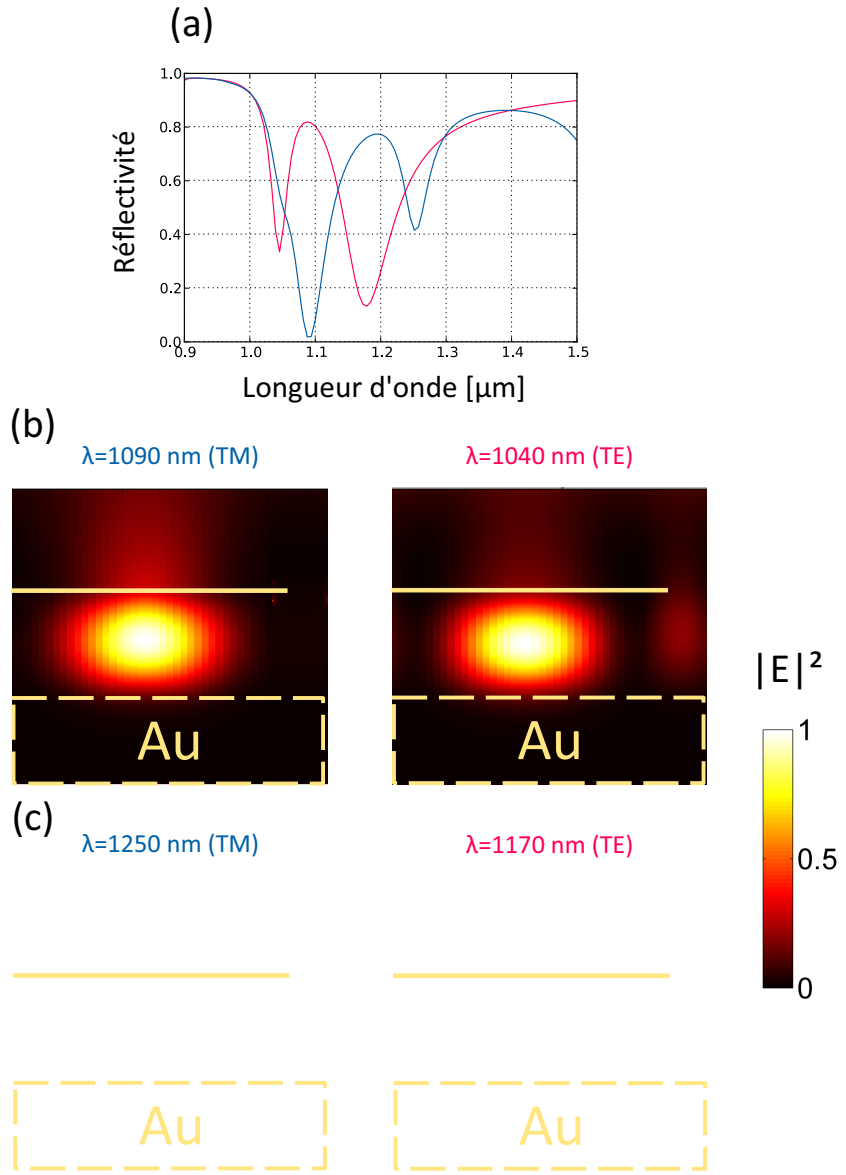


FIGURE 9.4 – Évolution de la cavité non structurée vers une cavité avec de légères fentes d'air : 150 nm tous les 700 nm de métal. (a) Réflectivité de la structure en polarisation TE et TM, se comportant désormais différement. (b) Distribution des champs électriques transverses à 1090 nm en TM ainsi qu'à 1040 nm en TE. Le champ reste localisé sous le métal.(c) D'autres résonances apparaissent à 1250 nm et 1170 nm. Elles correspondent à des localisations de champ sous l'interface air/GaAs.

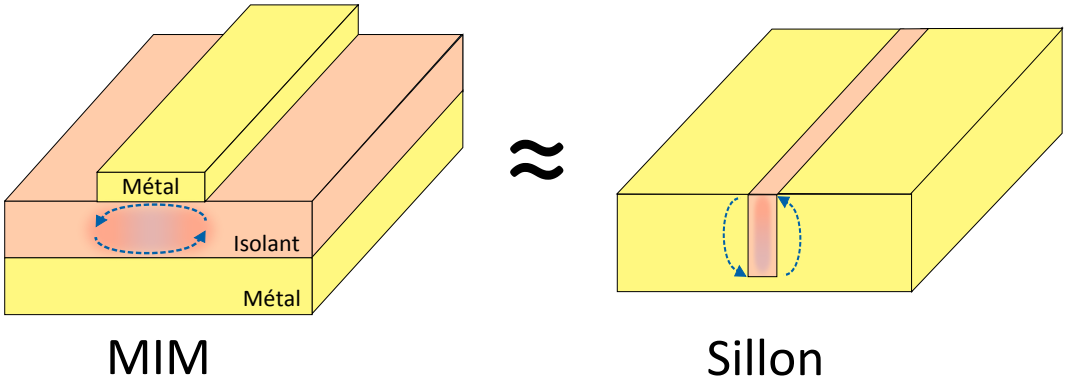


FIGURE 9.5 – Principe d'un résonateur MIM en ruban. L'empilement ruban métallique-isolant-métal est équivalent à un sillon de diélectrique tracé dans du métal. Cette dernière structure constitue une cavité Fabry-Pérot verticale. Le MIM forme une cavité Fabry-Pérot horizontale.

jonctions.

Plusieurs modèles analytiques décrivent le comportement résonnant des MIM individuels. La longueur d'onde de résonance peut être estimée à l'aide de [Le Perchec 12] :

$$w \approx \Re\mathfrak{e}\left[\frac{\lambda}{2n\sqrt{1+(i\lambda)/(\pi h_{SC}\sqrt{\epsilon})}}\right] \tag{9.7}$$

où n représente l'indice effectif du mode plasmon guidé, h_{SC} l'épaisseur de semiconducteur et ϵ la permittivité du métal. A épaisseur h_{SC} fixée, il y a une relation linéaire entre largeur du ruban et longueur d'onde à la résonance. La figure 9.6 présente 2 MIM de tailles différentes, résonant chacun à 3.39 μm et 4.5 μm, les rubans faisant respectivement 300 nm et 450 nm de large, et reposant sur une même couche de semi-conducteur. La juxtaposition de MIM de dimensions différentes peut également aider à la réalisation de photodétecteurs de large bande passante spectrale. Des effets collectifs sont susceptibles d'apparaître dès lors que les MIM se rapprochent les uns des autres. Ajuster la taille des fentes d'air entre chaque MIM (soit le facteur de remplissage) permet ainsi d'ajuster la fréquence de résonance.

9.3.4 Règles de conception et fonctionnement en non-dégénéré

L'existence de deux échelles de dimensions suffisamment différentes permet de travailler séparément sur deux types distincts de résonances. Les règles de conception propres à cette architecture peuvent alors être résumées :

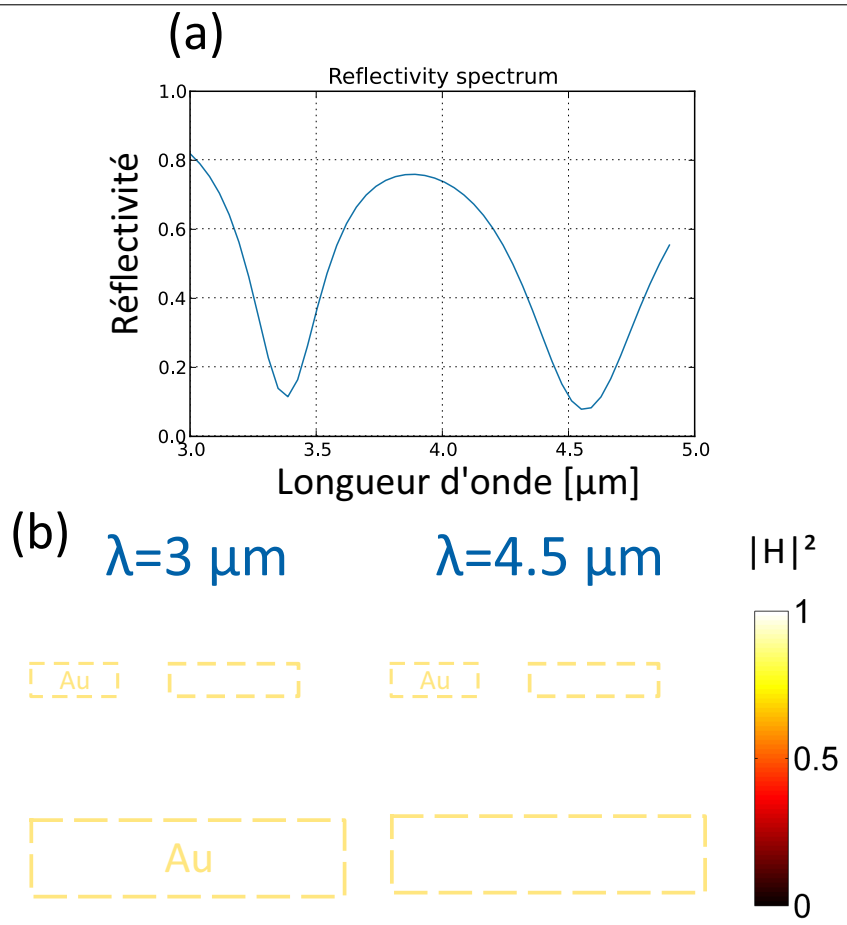


FIGURE 9.6 – Utilisation de MIM de différentes tailles :(a) Spectre de réflectivité, montrant l'existence de deux résonances MIM à 3 et 4.5 microns. (b) Excitation d'une structure à deux rubans de 300 nm et 450 nm de large, montrant la séparation spatiale des deux résonances.

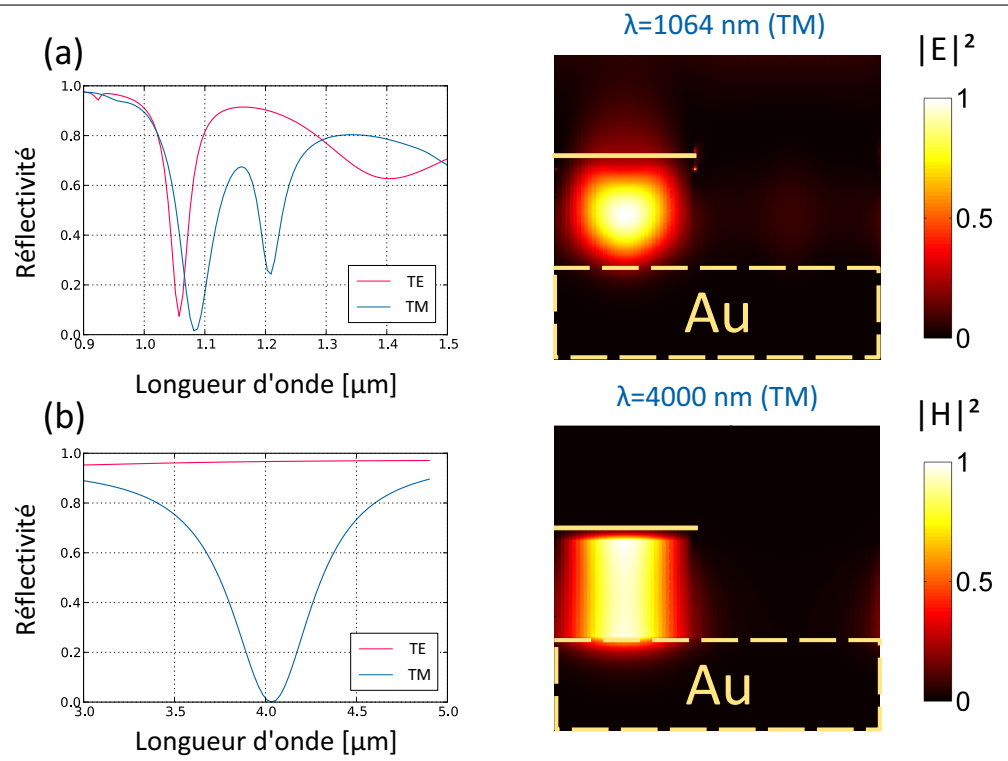


FIGURE 9.7 – Étude d'une structure associant guide d'onde pour la pompe et MIM pour le signal. (a) Réflectivité et distribution de l'intensité pour la pompe à 1064 nm polarisée TM. (b) Réflectivité et distribution du champ magnétique transverse pour le signal à 4 microns en polarisation TM.

— Le guidage de la pompe dans la couche de semiconducteur est avant tout gouverné par l'épaisseur de cette couche. Avec un miroir d'or semi-transparent (typiquement d'épaisseur l'épaisseur de peau, soit environ 20 nm dans l'IR), on commencera par déterminer l'épaisseur h_{SC} de cette couche pour obtenir le guidage à la longueur d'onde de pompe.

— A partir de cette épaisseur de couche, on définit la largeur w du ruban d'or pour placer la résonance MIM à la longueur d'onde souhaitée au sein de la bande II.

— Enfin, on joue sur la période p, donc sur le facteur de remplissage w/p, pour à la fois ajuster la résonance de pompe (éventuellement superposer les résonances TE et TM) et le signal.

En suivant ces principes, j'ai obtenu une structure optimisée pour un pompage résonnant en TE et en TM à 1064 nm avec localisation du champ sous le plot d'or, et une détection autour de 4 microns (dimensions dans la table9.1 et résultats sur la figure 9.7).

p	910 nm
w	360 nm
h_{Au}	15 nm
h_{GaAs}	92 nm

TABLEAU 9.1 – Dimensions de la structure présentée en figure 9.7. La pompe présente une résonance de guidage dans les deux polarisations.

p	520 nm
w	360 nm
h_{Au}	20 nm
h_{GaAs}	98 nm

TABLEAU 9.2 – Dimensions d'une structure optimisée (voir figure 9.8) : le facteur de remplissage est de 70%.

Cette structure pose une contrainte technologique assez forte sur le guide de pompe, puisqu'il faut intégrer une jonction PIN suffisamment fine dans la couche de 92 nm. Pour ce qui concerne les fentes par contre, pas de problèmes particulier n'est à noter. Le facteur de remplissage de la cavité est de 40 %. On peut l'augmenter en mettant de côté la résonance TE de la pompe pour utiliser uniquement la résonance TM (figure 9.8 et table 9.2). Dans ce cas, le facteur de remplissage passe à 70 %, ce qui permet de placer plus de périodes sur un même mésa. On peut pousser le facteur de remplissage encore plus loin, mais cela reviendrait à dessiner alors des fentes fines, inférieures à 100 nm de large, ce qui reste compliqué.

9.4 Cavité résonante pour le signal : SOS2PID

Dans cette section, nous prenons le contrepied de la solution précédente. Prenant acte des limites technologiques que constituent la fabrication d'une jonction PIN d'une centaine de nanomètres et d'autre part la géométrie d'une résonance MIM, qui localise le champ électromagnétique près des interfaces, je me suis penché sur la solution qui vise à exploiter le mode fondamental de résonance de cavité pour le signal. En accord avec les observations formulées dans le cas de cavités non structurées, nous savons que les

Signal $\lambda = 4000$nm	Mode 1	Mode 2	Mode 3
Réseau Au (TE)	0.19+7.93i	0.474+15.59i	1.73+21.23i
Réseau Au (TM)	1.1482+0.0013i	10.5i	21i
GaAs	3.31	5.62i	5.62i

TABLEAU 9.3 – Constantes de propagation k_z des premiers modes des différentes couches de la structure pour le signal $\lambda = 4$ μm.)

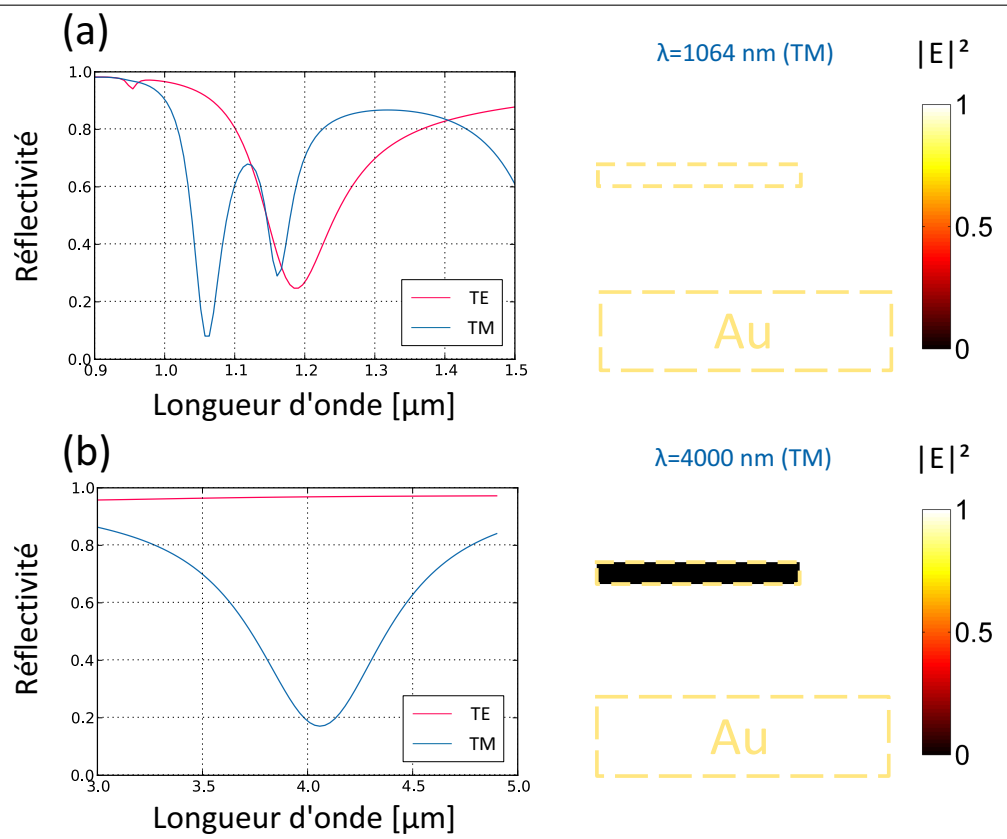


FIGURE 9.8 – Même type de cavité : guidage de la pompe et résonance MIM pour le signal, mais avec une structure de facteur de remplissage plus important. (a) Réflectivité et distribution du champ pompe en TM. Seule la résonance TM est encore présente à cette longueur d'onde. (b) Réflectivité et distribution du champ pour le signal à 4 microns en polarisation TM.

Pompe $\lambda = 1064$ nm	Mode 1	Mode 2	Mode 3
Réseau Au (TE)	0.028+2.3i	0.063+4.8i	0.22+6.6i
Réseau Au (TM)	1.15	3i	6i
GaAs	3.48	2.81	2.81

TABLEAU 9.4 – Constantes de propagation k_z des premiers modes des différentes couches de la structure pour le signal $\lambda = 1.06$ μm. La cavité est bimode pour la pompe, reprenant les propriétés de la conception opérée en configuration dégénérée.

épaisseurs de semiconducteur nécessaires pour exciter ce mode aux longueurs d'onde IR du signal sont alors plus importantes. Il est alors plus facile d'y intégrer une jonction PIN.

Nous visons une réalisation en salle blanche puis une caractérisation expérimentale des structures. Le dimensionnement effectué intègre donc les contraintes imposées par nos moyens expérimentaux disponibles pour l'accomplissement de l'étape de caractérisation en particulier.

9.4.1 Redimensionnement pour fonctionnement en bande II

La figure 9.9 présente le cas d'une cavité non structurée bien plus épaisse que précédemment, puisque la couche de semiconducteur est de 580 nm. Avec un fin miroir d'or de 20 nm d'épaisseur à sa surface, la cavité présente une réflectivité suffisante pour être excitée par une longueur d'onde de 4.1μm pour la résonance fondamentale, et 1060 nm pour un mode supérieur, qui exhibe quatre lobes le long de la couche de semiconducteur.

L'analyse des constantes de propagation montre, comme on pouvait s'y attendre, est bien bimode pour le signal à 4.1 μm (les modes 0 et ±1 sont propagatifs), mais est fortement multimode pour la pompe : 11 modes sont propagatifs correspondant au mode 0 puis aux modes ±1, ±2, ±3, ±4 et ±5. L'excitation collective de ces modes donne lieu à cette distribution de champ.

Nous allons cette fois structurer le miroir d'entrée afin de favoriser autant que possible le confinement du signal loin des interfaces, au milieu de la couche, de la même manière que nous avions confiné la pompe au paragraphe précédent. Nous introduisons donc progressivement des fentes d'air dans la couche supérieure d'or, tout en maintenant l'épaisseur de semiconducteur constante à $h_{SC} = 580\ nm$. Ceci permet de modifier la fréquence de résonance du signal. Par commodité, nous avons décidé de placer la résonance signal à 3.39 μm : pour cette longueur d'onde, nous disposons d'une source laser HeNe en régime CW, ainsi que d'un OPO, en régime impulsionnel.

Après optimisation, nous aboutissons à l'architecture SOS2PID (Signal Optimized Structure for 2 Photon Infrared Detection) présentée dans le tableau 9.5. En modifiant le facteur de remplissage du réseau, j'ai pu superposer une résonance en polarisation TM et une en polarisation TE à la même longueur d'onde. La résonance s'illustre alors par une chute quasi-totale de réflectivité, totale car elle concerne les deux polarisations, là où l'étude en configuration dégénérée nous avait amené à concevoir une structure ne résonnant qu'en polarisation TM. En observant la distribution des champs TE et TM dans la structure (figure 9.10), on peut attribuer le mécanisme de résonance de la polarisation TM au mode 0, et la résonance TE aux modes +1 et -1. Ce diagnostic est confirmé par l'analyse de la tolérance angulaire des résonances selon chacune des polarisations. Alors qu'en TM, on reste en dessous de 20 % de réflectivité dans un cône de demi-angle 25, elle s'effondre bien plus rapidement en TE (demi-angle de quelques degrés seulement).

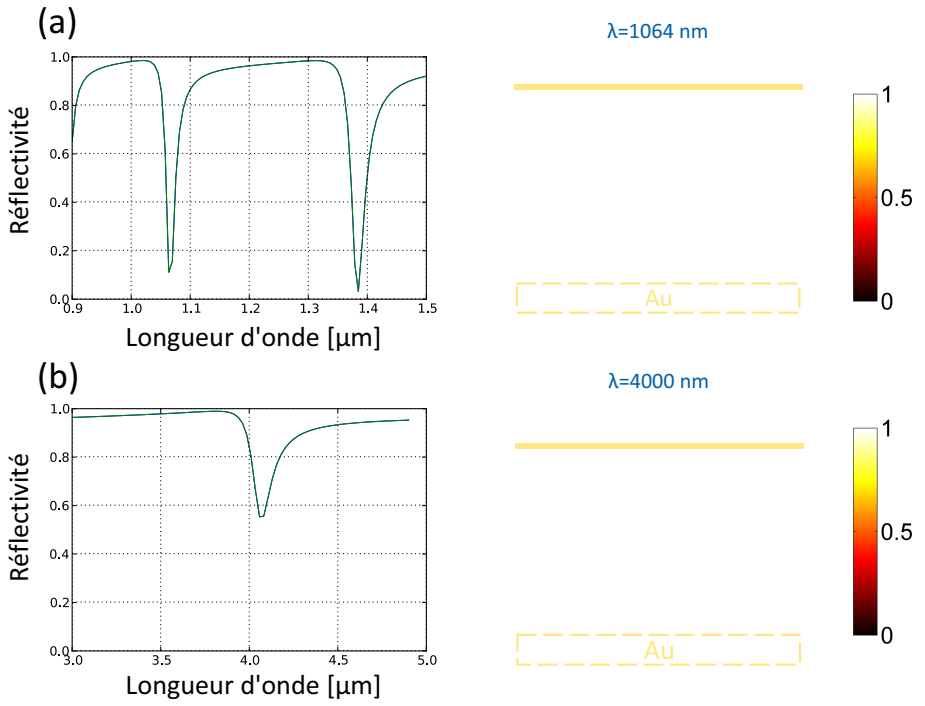


FIGURE 9.9 – Géométrie de guide d'onde en bande II. (a) Le signal fait résonner la cavité dans son mode fondamental. Pour la pompe (b), le mode de résonance est supérieur, d'où la présence de lobes supplémentaires limitant le recouvrement.

p	1.78 nm
w	0.7 nm
h_{Au}	100 nm
h_{InP}	580 nm

TABLEAU 9.5 – Dimensions de la structure SOS2PID.

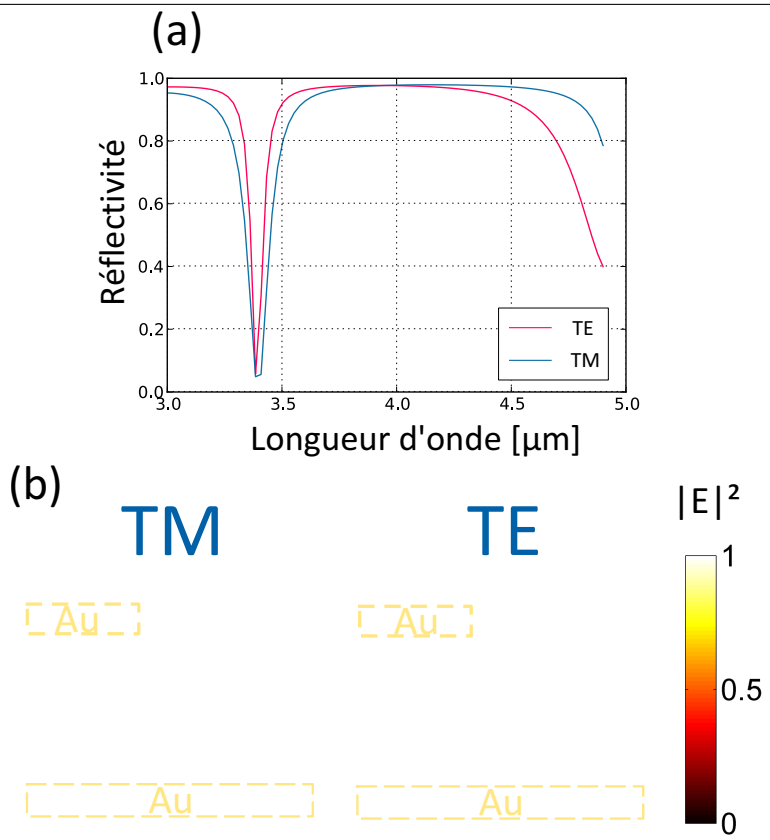


FIGURE 9.10 – (a)Réflectivité de la structure en fonction de la longueur d'onde (b) Intensités en polarisation TE et TM à 3.39 μm

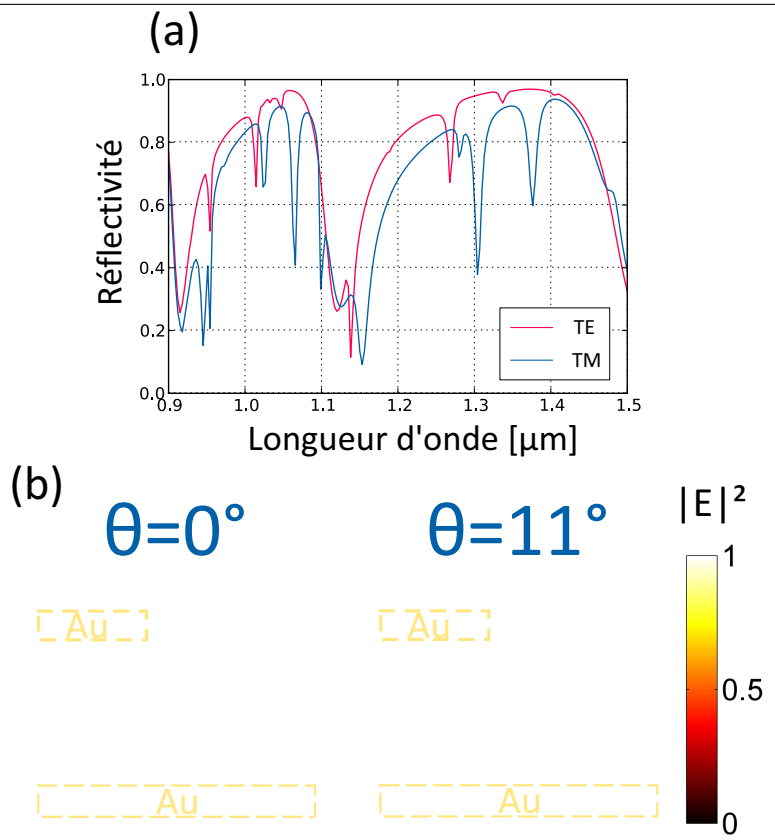


FIGURE 9.11 – (a)Réflectivité de la structure en fonction de la longueur d'onde (b) Pompe TE en incidence normale et en incidence oblique à 1064 nm en polarisation TE.

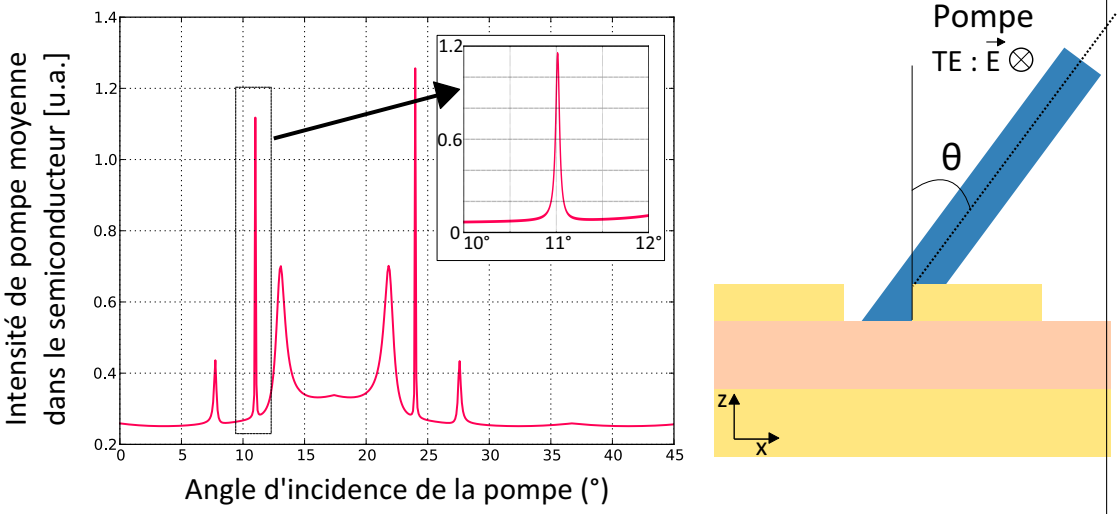


FIGURE 9.12 – Intensité moyenne de la pompe dans la couche de semiconducteur en fonction de l'angle d'incidence, pour un faisceau collimaté. En insert, un zoom sur le pic à 11°, dont la largeur est de l'ordre de 0.1°.

Les dimensions mises en jeu dans cette architecture mènent à une différence de traitement importante entre pompe et signal : si le réseau est sub-longueur d'onde pour le signal, il est plutôt super-longueur d'onde pour la pompe, et son comportement sera résolument différent. Le graphe 9.11 présente la réflectivité de la structure autour de 1064nm, ainsi que la distribution du champ en polarisation TE en incidence normale et pour un angle de 11°. On comprend que la structure est très multimode à cette longueur d'onde. En incidence normale, le champ pompe ne pénètre pas sous le plot de métal, et on retrouve les lobes observés dans le cas de la cavité non structurée en regard de l'interface air/GaAs. La distribution du champ en incidence oblique montre à l'inverse un guidage à travers la structure, résultant certainement d'un effet collectif de mise en phase de l'excitation de ces modes.

Ce résultat est issu de l'étude plus général de l'effet d'une variation de l'angle d'incidence sur la réflectivité de la structure pour la pompe, ainsi que l'évolution de la moyenne de l'intensité pompe dans la couche de semiconducteur. La figure 9.12 (a) présente les résultats de cette étude à 0°et 45°. Pour des incidences très précises, on constate une augmentation subite et soudaine de l'intensité, comme l'insert de la figure le montre. La sélectivité angulaire de ces résonances est très importante : le pic étudié a une largeur de 0.1°. Mais c'est avant tout la possibilité d'injecter des photons de pompe qui nous intéresse, la qualité du couplage n'est pas un facteur limitant, car on considèrera pouvoir envoyer toujours suffisamment de photons pompe sur la structure.

Comme le champ pompe est dans ces conditions présent dans toute la couche de

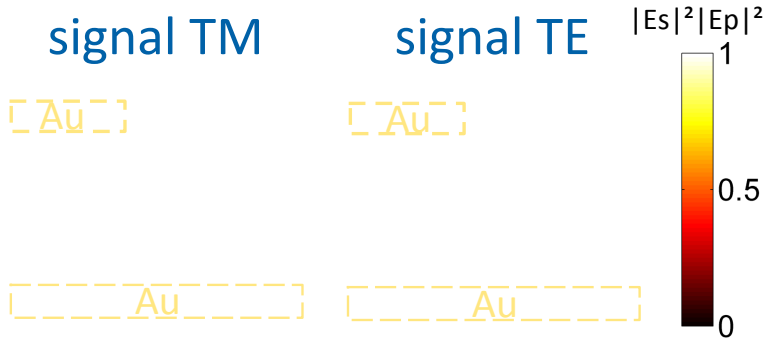


FIGURE 9.13 – Recouvrement des champs pompe à 1064 nm (en incidence oblique à 11 et en polarisation TM) avec signal à 3390 nm (en incidence normale) (a) Signal en TM (b) ou signal en TE.

semiconducteur, l'inclusion du champ signal dans le champ pompe est assurée. la figure 9.15 présente le produit $|E_s|^2|E_p|^2$ dans la structure. Le recouvrement présente une géométrie analogue à la résonance du mode fondamental de la structure vue dans le cas dégénéré, la pompe ne limitant pas la coïncidence des sources dans le milieu actif.

9.4.2 Performances : gain non-dégénéré et tolérance angulaire

Nous allons évaluer le gain d'absorption fourni par cette structure. Nous le définissons comme le facteur de gain sur la moyenne du produit des intensités signal et pompe par rapport à une couche qui serait simplement anti-reflet pour la pompe et le signal. Cette situation n'est évidemment pas réaliste, mais elle traduit plus efficacement la capacité de la structure à confiner l'énergie : cela revient en effet à normaliser notre intensité par rapport à la densité d'énergie incidente. Les résultats de l'étude du gain et de la tolérance angulaire sont présentés sur la figure 9.14.

Globalement la structure confine donc le champ IR sous les plots métalliques d'or dans un volume éloigné des interfaces. Le produit des intensités vaut jusqu'à 165 en TE, et 75 en TM. Le gain moyen sur simplement l'intensité signal atteint 10 en TE, 14 en TM. Le gain pour une onde non polarisée est alors de 120.

Les deux résonances réagissent différemment à l'augmentation de l'angle d'incidence. En effet, alors que le gain en TM reste supérieur à 80% de sa valeur maximale dans un intervalle proche de [-25°, +25°], l'intervalle de tolérance angulaire n'est plus que de quelques degrés polarisation TE (voir figure 9.12). Mais la superposition quand bien même partielle de ces deux résonances sur ce petit intervalle en incidence normale du signal est une bonne nouvelle pour ce qui est de la capacité de la structure à canaliser un maximum de photons IR vers la couche active.

Nous faisons ici une première estimation du photocourant généré dans la structure

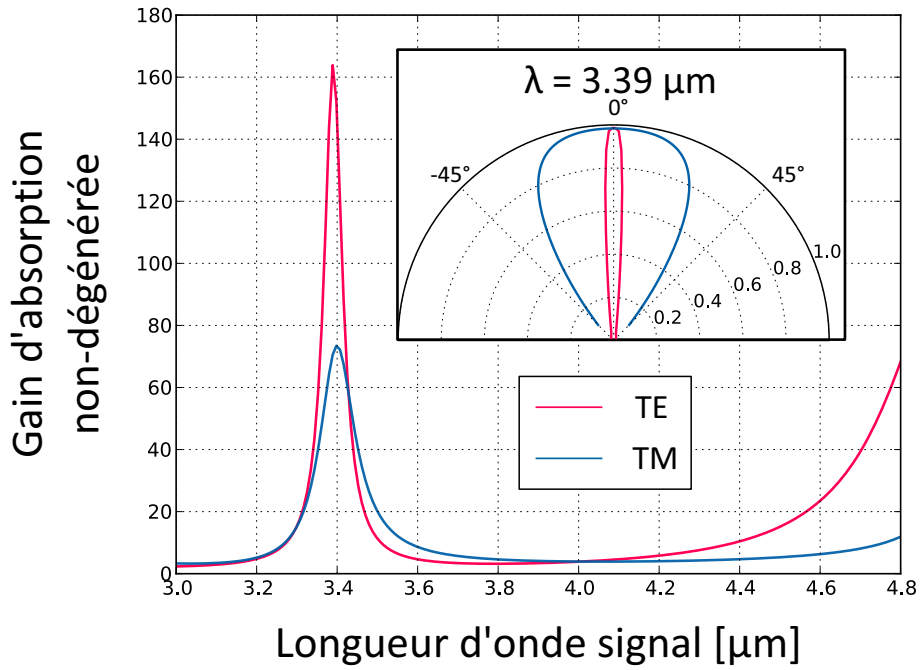


FIGURE 9.14 – Performances de la structure SOS2PID en polarisations TE et TM : Évolution du facteur de gain d'absorption non-dégénérée sur la bande II. En insert, tolérancement angulaire de la résonance à 3.39 μm.

sélectionnée. Nous pouvons l'écrire :

$$i_{ND-2PA}^{ph} = \eta_{int} \frac{e\lambda_s}{2hc} \frac{L}{S_s \cap S_p} \beta_s^{ND-2PA} P_s P_p \tag{9.8}$$

où P est la puissance optique incidente, S est la surface de focalisation de la lumière, L la longueur d'interaction (soit le produit $G_{ND-2PA} h_{InP}$ dans notre cas, car le gain introduit par la structure peut être assimilé à une augmentation de la longueur d'interaction du milieu). En l'occurrence, l'épaisseur de la couche étant de 580 nm, le facteur de gain rend notre photodétecteur équivalent à une couche d'InP munie d'un anti-reflet d'une épaisseur de 48 microns. Nous obtenons :

$$i_{ND-2PA}^{ph} = \eta_{int} \frac{e\lambda}{2hc} \frac{G_{ND2PA} h_{InP}}{S} \beta_{ND-2PA} P_s P_p \tag{9.9}$$

Comme précédemment, nous prenons un rendement intrinsèque η_{int} unitaire. L'absorption étant croisée, chaque photon absorbé du signal correspond effectivement à un photoélectron collecté. Pour la fabrication des premiers dispositifs, nous reprenons le masque utilisé pour 2PHOT02, c'est-à-dire que la taille des dispositifs sera à nouveau un carré de 20 μm de côté. On considèrera que c'est sur cette surface que signal et pompe se recouvrent. On choisit $\beta_{ND2PA}^{3.39\ \mu\mathrm{m}} = 100$ cm/GW, à partir des simulations effectuées dans les premiers chapitres de cette thèse. InP profite en effet d'un gap plus petit que GaAs, ce qui augmente le coefficient d'absorption tout en rapprochant l'énergie de la pompe de la largeur de la bande interdite.

On trouve pour 1 mW de puissance moyenne pour la pompe et le signal, un photocourant généré de 200 pA. Ce niveau de photocourant généré étant supérieur à celui détecté dans le cas dégénéré, nous avons bon espoir d'apercevoir les effets de l'absorption non-dégénérée. Il faudra toutefois comparer le niveau de photocourant au bruit d'obscurité de la structure pour vérifier si le RSB est garant d'une détection un tant soit peu efficace. Ceci ne peut se faire qu'en conditions expérimentales, car il faudra aussi prendre en compte les effets potentiels du processus PASRH, dont nous ne pouvons quantitativement prévoir l'importance, ni sur le photocourant utile ni sur le bruit.

9.5 Caractérisation expérimentale : Évolution du banc INRI

L'utilisation de deux longueurs d'ondes distinctes contraint à faire évoluer le banc INRI vers une configuration à deux couleurs. La solution retenue consiste à réutiliser un des bras d'INRI et remplacer un des détecteurs InGaAs par la source de pompe, que l'on pourra fibrer si besoin. Un élément dichroïque ou un cube séparateur de polarisation aura pour objectif de fournir à la structure des photons issus des deux sources.

Le point le plus important de l'évolution du banc est probablement sa capacité à fournir un faisceau de pompe oblique. Pour cela, j'ai proposé d'excentrer le faisceau issu

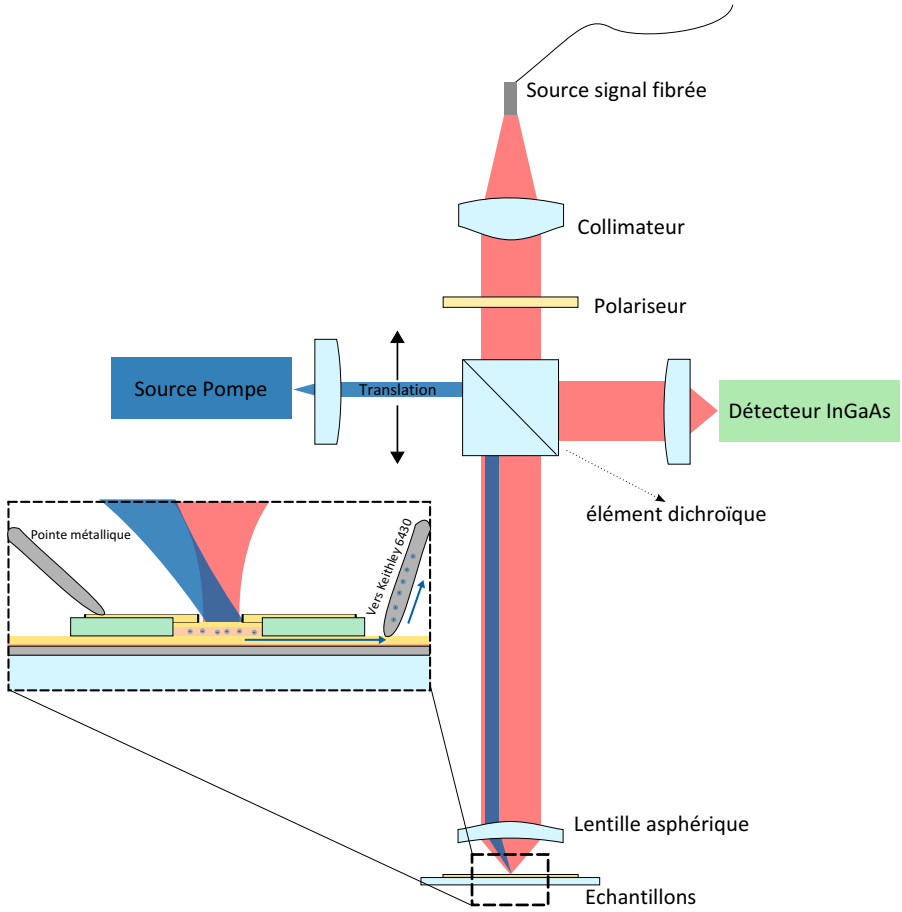


FIGURE 9.15 – Configuration du banc INRI pour le travail à deux couleurs.

de la source pompe par rapport à la séparatrice. Cela a pour conséquence de fournir un faisceau collimaté, mais excentré à la lentille de focalisation. Le faisceau émergent est alors toujours gaussien, mais possède une incidence moyenne oblique. Il est donc possible de trouver le point de rencontre de ces deux faisceaux : c'est l'endroit où l'on doit placer les échantillons SOS2PID. A l'aide d'un petit montage optomécanique, on autorise la translation du faisceau pompe perpendiculairement à l'axe optique. En influant sur l'excentrement de ce pinceau de lumière, on modifie l'angle moyen d'incidence du faisceau focalisé sur les structures. La partie électrique du montage reste inchangée.

Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre des concepts propres au travail sur l'absorption non-dégénérée dans les nanostructures. Le travail à deux longueurs d'onde très différentes nous oblige à faire des compromis dans le dimensionnement des structures et à exploiter

des mécanismes de résonance différents pour confiner autant que possible le signal d'une part, et permettre le recouvrement par la pompe d'autre part.

Nous avons identifié une architecture qui se base sur les conclusions tirées de l'étude en situation dégénérée. Nous avons conservé la résonance alors identifiée et redimensionné la structure pour un fonctionnement en bande II. Mais la cavité ainsi conçue est fortement multimode pour la pompe à 1064 nm. J'ai proposé d'exploiter l'angle d'incidence de la pompe pour permettre son guidage à travers toute la structure et permettre le recouvrement du signal.

A l'heure où je rédige ces lignes, la fabrication des échantillons est en cours. Elle repose sur les mêmes procédés technologiques que les structures 2PHOT02, que je n'ai donc pas redéveloppés. Le banc INRI a également évolué pour permettre le travail à deux longueurs d'onde (INRI2), et un contrôle de l'angle d'incidence moyen de la pompe en utilisant l'excentrement du faisceau par rapport à l'axe optique du montage.

Conclusion

Mon travail de thèse portait sur l'absorption à deux photons pour la détection infrarouge. Comme processus d'optique non-linéaire du troisième ordre, il présente un rendement intrinsèquement peu efficace. Cependant, en permettant la détection de photons de faible énergie dans des matériaux semiconducteurs à gap visible, l'absorption à deux photons permet en théorie de s'affranchir de la nécessité de refroidir le capteur à des températures cryogéniques pour maintenir un haut niveau de performance. L'objectif de ma thèse était donc d'explorer les opportunités offertes par l'absorption à deux photons comme solution alternative aux schémas traditionnels de détection quantique infrarouge. Ce dialogue permanent entre un processus optique fondamental et un cadre applicatif précis se retrouve au cœur de ma démarche : différents formalismes théoriques, différentes configurations expérimentales, différentes perspectives de travail jalonnent mon travail, à l'image du vaste champ d'étude que représente la physique de la détection.

Dans un premier temps, je me suis ainsi intéressé à la compréhension du processus d'absorption à deux photons dans les semiconducteurs. J'ai emprunté différents chemins pour décrire les comportements de ce phénomène, et mettre en avant les concepts d'absorption à deux photons dégénérée (D-2PA) et non-dégénérée (ND-2PA). Au cours de la ND-2PA, deux photons d'énergies notablement différentes sont absorbés par le milieu actif : le premier, un photon de pompe, possède une énergie proche de la largeur du gap du matériau. Le second, un photon IR de signal, complète la transition. L'utilisation d'une source de pompe pour détecter un signal IR par ND-2PA ne peut se faire sans D-2PA sur la pompe. J'ai alors proposé plusieurs pistes pour comprendre comment la D-2PA influe sur le rapport signal à bruit de détection du signal IR par ND-2PA. En particulier, j'ai souligné l'influence de la statistique d'émission des photons de pompe sur le niveau de D-2PA et sur ses fluctuations, proposant de les réduire par l'utilisation de flux de photons à statistique sub-poissonienne.

J'ai mené par la suite des expériences de détection à deux photons en utilisant des dispositifs commerciaux, une photocathode en GaAs et des photodiodes à jonction PIN, en Si et en GaAs. Il a été possible d'observer plusieurs régimes de fonctionnement dans la détection de photons d'énergie sub-gap. Tout d'abord, un régime non-linéaire, conforme à nos descriptions des processus d'absorption à deux photons. Mais également un régime d'absorption linéaire à un photon assisté par des défauts profonds dans le gap du

matériau. Ce régime est observé même pour des photons dont l'énergie s'éloigne considérablement du gap et se rapproche du mi-gap. Un modèle d'effet Shockley-Read-Hall photo-assisté (PASRH) a été proposé pour expliquer ce comportement. Il relie l'existence de ces transitions parasites à un photon au niveau de courant d'obscurité dans la jonction semiconductrice du détecteur. J'ai montré qu'en refroidissant le capteur, il est possible d'obtenir un régime d'absorption à deux photons sans parasitage par le PASRH. Il reste qu'en pratique et pour des applications de détection à température ambiante, le PASRH est une limite contraignante pour la D-2PA et la ND-2PA.

La dernière partie de ce manuscrit a présenté le travail mené autour de nanostructures métalliques résonantes développées spécifiquement pour des applications de photodétection à deux photons. Elles intègrent l'essentiel des connaissances que j'ai acquises au fur et à mesure de ma thèse. L'architecture étudiée est celle d'une fine jonction PIN de semiconducteur, recouverte par un réseau 1D de lamelles d'or, et reposant sur un miroir métallique d'or en face arrière. Cette structure permet le confinement du champ électromagnétique loin des interfaces de la couche de semiconducteur. Le confinement de ce champ s'accompagne d'un gain sur l'absorption à deux photons. Ce concept d'architecture a d'abord été développé pour caractériser la D-2PA dans du GaAs autour de $1.55\ \mu\mathrm{m}$. Après fabrication en salle blanche, j'ai validé le fonctionnement attendu de ces photodétecteurs en testant leurs propriétés opto-électroniques sur le banc de caractérisation INRI, que j'ai développé à cette occasion. J'ai étendu la configuration précédente au cas de l'absorption non-dégénérée d'une pompe à $1.064\ \mu\mathrm{m}$ et d'un signal à $3.39\ \mu\mathrm{m}$ dans une couche d'InP, et fait évoluer le banc INRI vers une version intégrant elle aussi le travail à deux longueurs d'onde. J'ai proposé deux concepts de résonateurs différents. A l'heure où je rédige ces lignes, les échantillons destinés à la ND-2PA d'une de ces architectures sont en cours de fabrication.

Les résultats obtenus témoignent à la fois du chemin parcouru et du travail qu'il reste à accomplir. Les enjeux de la détection de photons sub-gap et les contraintes rencontrées en pratique par la D2PA et la ND2PA dans les photodétecteurs conventionnels ont été établis. Les nanostructures métalliques résonantes ont ouvert une voie crédible vers une utilisation de l'absorption à deux photons pour la détection infrarouge à température ambiante surpassant ces contraintes. Le développement de stratégies avancées de détection par ND-2PA basées sur cette approche fait l'objet d'une prochaine thèse de doctorat. Ce travail sera mené par Baptiste Fix et débutera en octobre 2015 au sein du laboratoire MINAO.

Annexe A : statistiques quantiques de l'absorption non-dégénérée

Lors de notre exploration de la détection à deux photons, nous avons souligné l'importance de la statistique de réception des photons de pompe pour l'absorption dégénérée de la pompe : une source incohérente comme un corps noir présente des groupements de photons qui facilitent l'absorption de paires de photons pompe. Cette propriété est absente des sources cohérentes comme le laser dont la statistique d'émission des photons est poissonienne. On concluait sur l'intérêt d'utiliser une source de photons dégroupés limitant l'absorption de la pompe.

Comme les sources signal et pompe sont statistiquement indépendantes, le même type de raisonnement montre que la statistique respective de chacune des sources n'a alors pas d'influence notable sur l'absorption non-dégénérée. Ce résultat n'est pas tout à fait exact, dans la mesure où les événements d'absorption vont peu à peu faire évoluer la statistique temporelle des deux faisceaux au cours de leur propagation et de leur atténuation dans le milieu [Simaan 75a]. Dans cette annexe, nous nous intéressons donc brièvement à cette configuration, en nous éloignant du cadre réaliste de la détection, les effets que je cherche à explorer ici nécessitant de considérer que l'absorption à deux photons est quantitative. On maintiendra l'hypothèse d'un pompage fort, c'est à dire d'un faisceau contenant bien plus de photons que l'autre.

Équations de taux

Pour se placer dans un cadre simple, nous considérons un système de N atomes à deux niveaux, dont une fraction N_1 est dans l'état fondamentale et N_2 dans un état excité, de telle sorte que :

$$N_1 + N_2 = N \tag{10}$$

Seules les transitions à deux photons non-dégénérés sont résonantes. Le nombre de photons de chacun des faisceaux est donné par n et m qui sont donc des quantités statistiques, auxquelles on associe une probabilité conjointe P_{nm}, probabilité qui va évoluer

dans le temps avec les processus d'absorption. Ainsi, on peut exprimer la probabilité par unité de temps de réduire le nombre de photons à $n-1$ et $m-1$ comme :

$$N_1 \eta n m \tag{11}$$

où η contient implicitement tous les paramètres influant sur la probabilité de l'événement, comme les moments dipolaires ou les énergies propres mises en jeu dans la transition. La probabilité P_{nm} diminue donc au taux de :

$$N_1 \eta n m P_{nm} \tag{12}$$

De même, pour des faisceaux contenant initialement $n+1$ et $m+1$ photons, la probabilité P_{nm} va augmenter au taux de :

$$N_1 \eta (n+1)(m+1) P_{n+1,m+1} \tag{13}$$

En toute rigueur, il faudrait prendre en compte également les processus d'émission à deux photons, également susceptibles d'affecter le nombre de photons. Mais comme ces événements reposent sur la population d'atomes dans l'état excité que l'on considérera toujours négligeable, nous n'en tiendrons pas compte : on peut donc écrire $n_1 = N$. Finalement :

$$\frac{dP_{nm}}{dt} = -N\eta n m P_{nm} + N\eta (n+1)(m+1) P_{n+1,m+1} \tag{14}$$

On suppose que la distribution de probabilité est normalisée :

$$\sum_{nm} P_{nm} = 1 \tag{15}$$

et on s'intéresse à l'évolution du nombre de photons dans les faisceaux, soit aux moyennes des variables n et m :

$$\langle m \rangle = \sum_{nm} m P_{nm} \tag{16}$$

$$\langle n \rangle = \sum_{nm} n P_{nm} \tag{17}$$

Écrivons une équation d'évolution :

$$\frac{d\langle m\rangle}{dt} = \sum_{nm} m\frac{dP_{nm}}{dt} \tag{18}$$

$$= -N\eta \sum_{nm} \left(mnmP_{nm} - m(n+1)(m+1)P_{n+1,m+1}\right) \tag{19}$$

$$= -N\eta \sum_{nm} \left((m-1+1)nmP_{nm} - m(n+1)(m+1)P_{n+1,m+1}\right) \tag{20}$$

$$= -N\eta \left[\sum_{nm}(m-1)nmP_{nm} - \sum_{nm} m(n+1)(m+1)P_{n+1,m+1} + \sum_{nm} nmP_{nm}\right] \tag{21}$$

$$\tag{22}$$

Grâce à un changement d'indice, on peut montrer que les deux premières sommes s'annulent, laissant seul le troisième et dernier terme, ce qui nous donne :

$$\frac{d\langle m\rangle}{dt} = -N\eta \sum_{nm} nmP_{nm} = -N\eta\langle nm\rangle \tag{23}$$

Pour poursuivre le calcul, nous notons tut d'abord qu'à $t = 0$, les deux faisceaux sont statistiquement indépendants, ce qui se traduit par la possibilité de factoriser la probabilité jointe en un produit des distribution respectives des deux sources :

$$P_{nm}(0) = Q_n(0)R_m(0) \tag{24}$$

De plus, nous nous plaçons dans une configuration où l'un des deux faisceaux (la pompe) est bien plus intense que l'autre (le signal), et contient donc un bien plus grand nombre de photons, on écrit donc :

$$\langle n_0\rangle \gg \langle m_0\rangle \tag{25}$$

où n_0 et m_0 sont les valeurs moyennes du nombre de photons initialement dans les faisceaux. Ainsi, on obtient la valeur à $t = 0$ du taux de variation de m :

$$\frac{d\langle m\rangle}{dt}(t=0) = -N\eta m_0 n_0 \tag{26}$$

En continuant à différentier la relation 23 et en utilisant l'équation d'évolution de P_{nm}, on obtient la dérivée seconde de l'évolution de m :

$$\frac{d^2\langle m\rangle}{dt} = (N\eta)^2 \sum_{nm} nm(n+m-1)P_{nm} \tag{27}$$

En utilisant l'approximation 25, on obtient sa valeur initiale :

$$\frac{d^2\langle m\rangle}{dt}(t=0) = (N\eta)^2 m_0 \sum_{n} n^2 Q_n(0) \tag{28}$$

On peut continuer d'obtenir les dérivations successives pour montrer qu'on obtient :

$$\frac{d^r\langle m\rangle}{dt}(t=0) = (-N\eta)^r m_0 \sum_n n^r Q_n(0) \tag{29}$$

On peut donc écrire le développement de Taylor autour de $t = 0$ de l'évolution de la moyenne de m :

$$\langle m\rangle = m_0 + \sum_{r=1}^{\infty} \frac{d^r\langle m\rangle}{dt}(t=0)\frac{t^r}{r!} \quad = m_0(1 + \sum_n \sum_{r=1}^{\infty} \frac{(-N\eta nt)^r}{r!} Q_n(0) = m_0 \sum_n \exp(-nN\eta t) Q_n(0) \tag{30}$$

On dispose maintenant d'une équation d'évolution pour le faisceau signal : elle dépend de la statistique initiale du faisceau pompe, mais pas de sa propre statistique. Le choix de la source utilisée pour pomper le milieu absorbant va donc avoir une influence sur les processus d'absorption non dégénérée.

Effets de différentes statistiques de pompe

On décrit ici les différentes statistiques de photons qu'il est possible de choisir pour la pompe. Les distributions sont écrites disposant de la même moyenne initiale de nombre de photons n_0. Les fluctuations associées seront par contre différentes.

Source incohérente : le corps noir

La distribution de photons suit une statistique de Bose Einstein, soit :

$$Q_n(0) = \frac{n_0^n}{n_0 + 1^{n+1}} \tag{31}$$

On obtient :

$$\langle m\rangle = \frac{m_0}{1 + n_0 - n_0 \exp(-N\eta t)} \tag{32}$$

Source cohérente : un laser

La distribution est cette fois-ci poissonienne :

$$Q_n(0) = \frac{n_0^n}{n!} \exp(-n_0) \tag{33}$$

soit :

$$\langle m\rangle = m_0 \exp(n_0[\exp(-N\eta t) - 1]) \tag{34}$$

Source antibunchée : LED sous courant stabilisé

La distribution est binomiale, et dépend de l'efficacité de conversion de la LED η_{LED}. Lorsque cette efficacité est très faible, on converge vers une loi de Poisson. On choisira donc à l'inverse une efficacité très élevée. De plus, pour une pompe intense, on converge vers une loi normale.

$$Q_n(0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sqrt{n_0(1-\eta_{LED})}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{n_0-n}{n_0(1-\eta_{LED})}\right)^2} \tag{35}$$

Dans le cas général, il n'est pas possible d'écrire analytiquement l'évolution de $\langle m \rangle$.Dans le cas où $\eta_{LED} = 1$, l'état obtenu est un état de Fock contenant n_0 photons, et on obtient :

$$\langle m \rangle = m_0 \exp(-n_0 N \eta t) \tag{36}$$

On reprend sur la figure 16 les différentes situations décrites ci-dessus. On note en particulier qu'il n'y a pas de différences quantitatives évidentes entre le cas d'une statistique de source poissonienne ou sub-poissonienne. Bien qu'il est possible de montrer que le cas sub-poissonien est toujours plus efficace que le cas poissonien, cette différence est négligeable. Le cas du corps noir est plus distinct des précédents. La présence de groupement de photons provoque l'apparition d'anticorrélations entre le faisceau signal et la pompe : làoù les photons de pompe se regroupent, il y a absorption des photons signal, le faisceau signal se vide donc de ses photons lorsque le faisceau pompe est plus intense. Ces irrégularités dans les rencontres des photons déteriorent l'efficacité de l'absorption non-dégénérée du signal. Dans le cas poissonien et sub-poissonien, des photons de pompe sont mis à disposition à toute date pour assister l'absorption des photons signal.

Conclusion

Cette annexe présente un rapide résultat sur les influences statistiques de la pompe sur l'absorption du signal. L'utilisation d'une source de pompe cohérente ou de statistique sub-poissonienne est à préconiser par rapport au corps noir. Cependant, les résultats présentés ici ont avant tout une dimension qualitative, dans la mesure où les différences à constater selon le choix de la statistique de pompe ne sont appréciables que lorsque l'absorption non-dégénérée devient suffisamment quantitative pour induire une modification de la statistique du flux de photon signal.

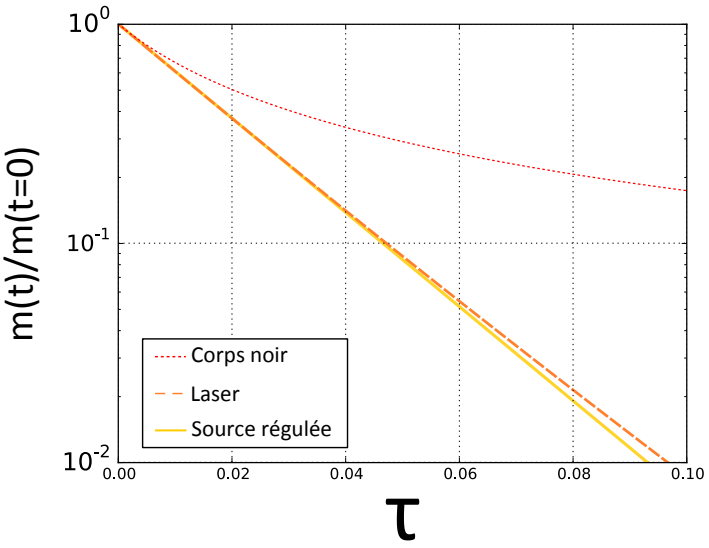


FIGURE 16 – Évolution du nombre de photons présents dans le faisceau signal en fonction de $\tau = N\eta t$, représentant le temps, pour différentes statistiques de pompe.

Annexe B : Concepts avancés de structures pour la détection non-dégénérée

Cette annexe présente quelques concepts supplémentaires de nanostructures pour la détection à deux photons non-dégénérée tirant partie de propriétés plus avancées des résonances étudiées dans le corps du manuscrit.

Les structures étudiées exploitent d'une part l'épaisseur de semiconducteur pour former une cavité résonante pour la pompe, et d'autre part les dimensions du réseau afin de créer des résonances MIM pour le signal. De plus, le dispositif final exploite le réseau comme électrodes permettant de polariser la jonction, en appliquant une différence de tension vis à vis de la face arrière.

Dans cette partie, j'ai cherché à travailler sur les dimensions de ces deux moitiés complémentaires de réseau afin de générer des résonances MIM différentes tout en maintenant le comportement de la pompe identique. Ce faisant, on peut générer plusieurs résonances découplées spectralement pour le signal tout en conservant la même pompe. Cela revient à utiliser de manière plus efficace la bande passante du semiconducteur, qui à pompe fixée, peut absorber un large intervalle spectral de longueurs d'onde signal.

Tri de photons

On alterne des rubans de métal de largeur différente. On crée ainsi deux longueurs d'onde de résonance pour le signal (voir figure 17 et table 6). L'épaisseur de semiconducteur est de l'ordre d'une centaine de nanomètres. En polarisation TM, le champ pompe se retrouve localisé sous chacun des rubans, indépendamment de leur largeur respective. Cette propriété permet d'« allumer »la détection des deux longueurs d'onde signal simultanément (voir figure 18).

Les dimensions choisies pour les rubans permettent d'obtenir deux résonances MIM, à 3.8μm et 4.6μm. Chacune de ces longueurs d'onde correspond à un des deux rubans. Les rubans étant séparés les uns des autres de 200 nm, les photons sont donc « triés »et

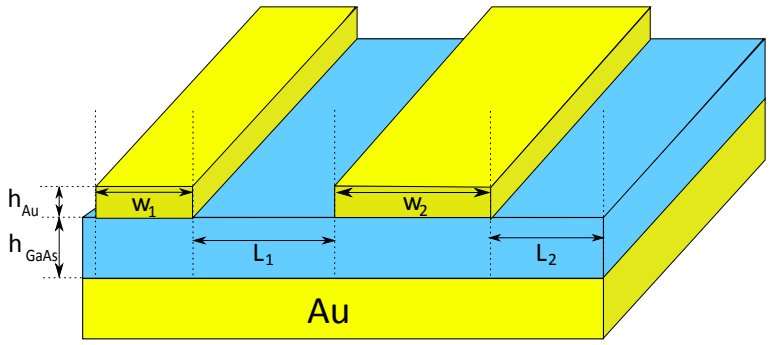


FIGURE 17 – Schéma de principe d'une architecture bi-résonante, obtenue en alternant des rubans d'or de largeurs différentes.

Paramètre	w_1	L_1	w_2	L_2	h_{Au}	h_{GaAs}
Dimension [nm]	350	200	450	200	35	114

TABLEAU 6 – Dimensions de la structure à rubans alternés.

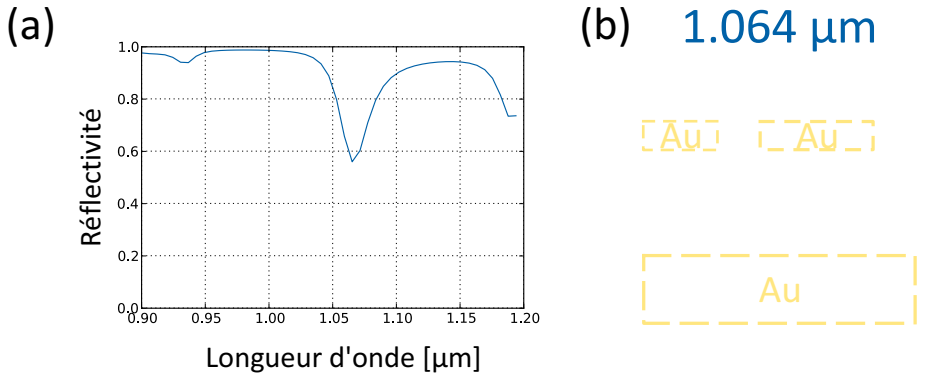


FIGURE 18 – Caractéristiques de résonance de la pompe à 1064 nm en polarisation TM pour l'architecture bi-résonante simulée. (a) Spectre de réflectivité, montrant une résonance à 1064 nm. (b) Distribution du champ électrique. Le champ est localisé sous les rubans d'or.

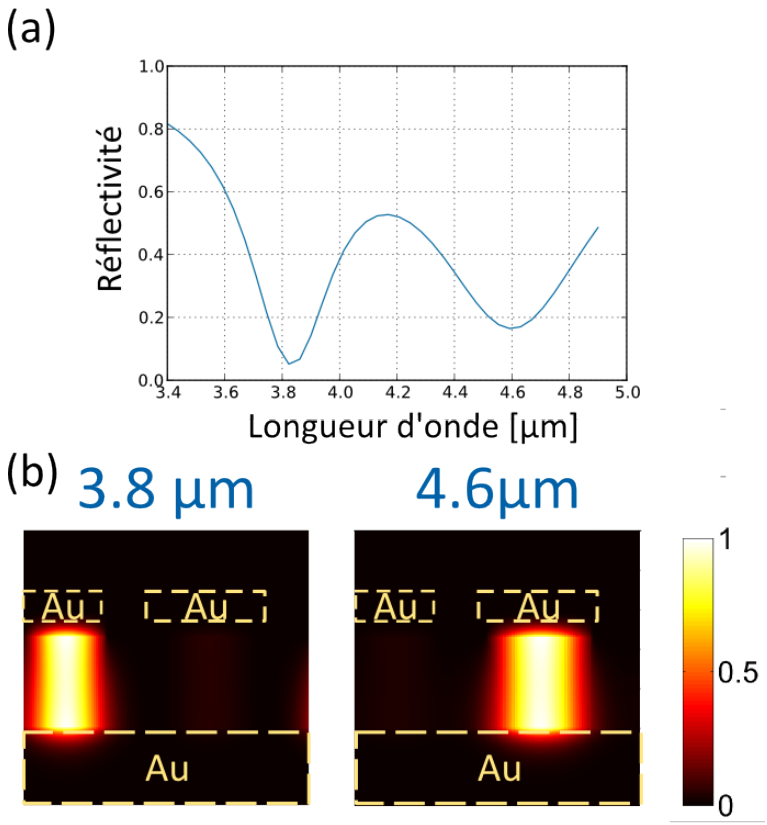


FIGURE 19 – Caractéristiques du signal pour l'architecture résonante. (a) Spectre de réflectivité de la structure, présentant deux chutes à 3.8μm et 4.6μm. (b) Distribution du champ magnétique à ces deux longueurs d'onde. Chaque résonance est associée à un ruban d'or.

répartis spatialement sur le résonateur qui leur est associé (voir figure 19).

Des concepts de photodétecteurs à un photon exploitant le principe du tri de photons ont déjà vu le jour. Aux longueurs d'onde de résonance, le milieu semiconducteur du MIM est alors absorbant, et son indice varie sur la bande spectrale de détection. En proposant d'utiliser l'absorption non-dégénérée pour effectuer du tri de photons, les résonances MIM considérées se situent dans la bande interdite du semiconducteur, c'est-à-dire dans une zone de transparence, éloignée des résonances du matériau lui-même. L'indice varie peu, et il est possible de travailler avec une même couche de semiconducteur pour concevoir de multiples résonateurs fonctionnant dans une large bande spectrale.

Paramètre	Dimension (nm)
w_1	340
L_1	250
w_2	450
L_2	150
w_3	320
L_3	150
w_4	420
L_4	250
h_{Au}	35
h_{GaAs}	113

TABLEAU 7 – Dimensions d'une architecture de détecteur à 4 rubans, pour une détection large bande.

Détection large bande

Il est possible d'étendre le concept précédent en essayant cette fois non pas de séparer spectralement les résonateurs, mais de les juxtaposer pour augmenter la bande passante de photodétection. Dans cette nouvelle architecture, chaque moitié de réseau alterne deux tailles de rubans différentes, créant ainsi une succession de 4 rubans métalliques de largeur variable(voir table 7).

De manière analogue au cas précédent, la pompe reste localisée sous chacun des rubans, l'épaisseur de semiconducteur étant identique à l'architecture pour le tri de photons(voir figure 20). Pour les longueurs d'onde signal, les rubans sont associés deux à deux pour étendre la largeur des résonances de la structure à deux rubans. Le spectre de réflectivité présente alors deux « bandes »de détection, la première entre 3.6μm et 3.9μm, la seconde entre 4.4μm et 4.9μm (voir figure 21). Alors que la bande passante de nos structures de photodétection était auparavant strictement limitée par la largeur des résonances associées aux résonateurs, cette solution tire un meilleur parti du caractère individuel et localisé des résonances MIM d'une part, et de la structure de bandes du semiconducteur d'autre part pour proposer une bande passante étendue,

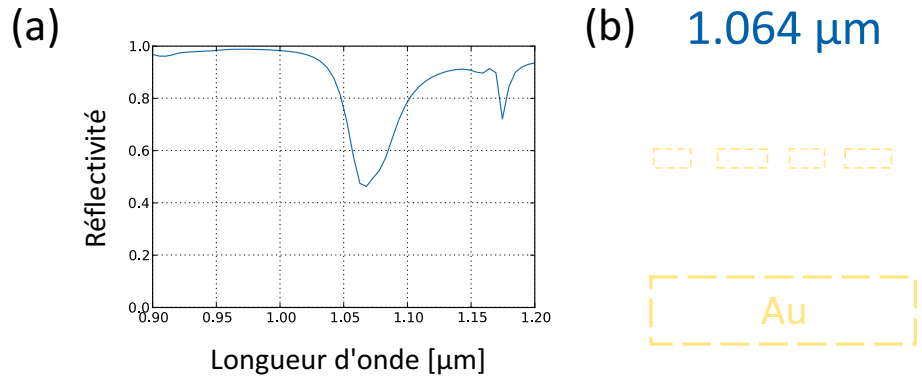


FIGURE 20 – Résonance de la pompe à 1064 nm pour l'architecture bi-bande. (a) Réflectivité de la structure en incidence normale et en polarisation TM. (b) Distribution du champ électrique de la pompe à 1064 nm. A résonance, le champ pompe est présent simultanément sous les 4 rubans de largeur différente.

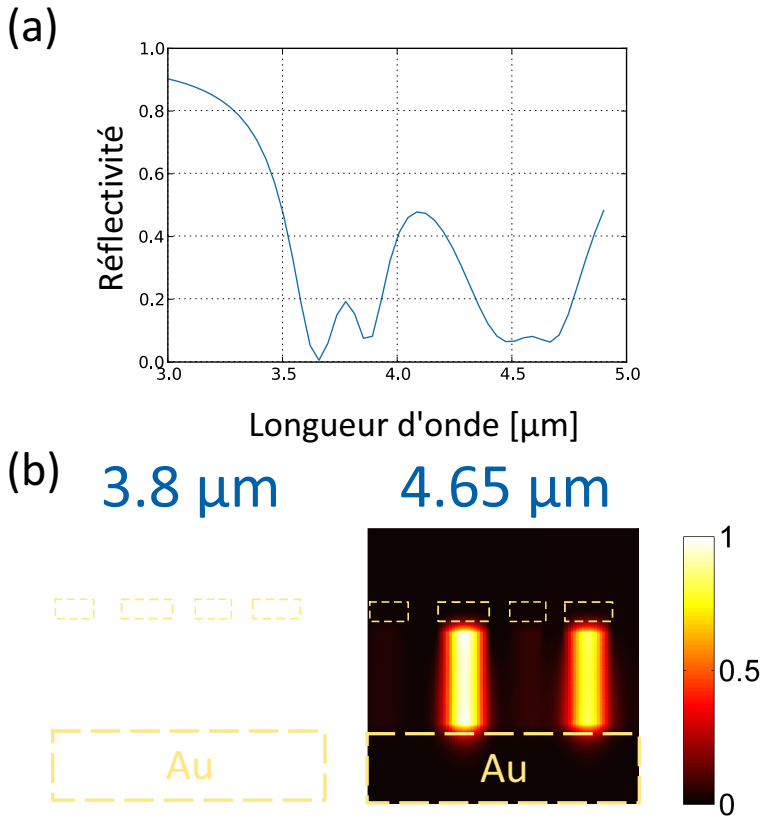


FIGURE 21 – Caractéristique de résonance du signal pour l'architecture pour la détection large bande. (a) Spectre de réflectivité de la structure en incidence normale et en polarisation TM. On distingue deux intervalles spectraux présentant une réflectivité inférieure à 20 % : [3.6μm, 3.9μm] et [4.4μm, 4.8μm]. (b) Distribution du champ magnétique dans la structure pour deux longueurs d'onde de signal, 3.8μm et 4.65μm, en polarisation TM. Le comportement des rubans les distinguent deux à deux.

Bibliographie

[Akbari 10] Ali Akbari, R. Niall Tait & Pierre Berini. *Surface plasmon waveguide Schottky detector.* Opt. Express, vol. 18, no. 8, pages 8505–8514, Apr 2010.

[Aversa 94] Claudio Aversa, J. E. Sipe, M. Sheik-Bahae & E. W. Van Stryland. *Third-order optical nonlinearities in semiconductors : The two-band model.* Phys. Rev. B, vol. 50, pages 18073–18082, Dec 1994.

[Basov 66] NG Basov, AZ Grasyuk, IG Zubarev, VA Katulin & ON Krokhin. *Semiconductor quantum generator with two-photon optical excitation.* Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics, vol. 23, page 366, 1966.

[Blanc 64] Joseph Blanc, Richard H Bube & Leonard R Weisberg. *Behavior of lattice defects in GaAs.* Journal of Physics and Chemistry of Solids, vol. 25, no. 2, pages 225–240, 1964.

[Bloembergen 59] N. Bloembergen *Solid State Infrared Quantum Counters.* Phys. Rev. Lett., vol. 2, no. 1, pages 67–72, Mar 1984.

[Boitier 09] Fabien Boitier, Jean-Baptiste Dherbecourt, Antoine Godard & Emmanuel Rosencher. *Infrared quantum counting by nondegenerate two photon conductivity in GaAs.* Applied Physics Letters, vol. 94, no. 8, page 081112, 2009.

[Boitier 11] Fabien Boitier. *Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs.* PhD thesis, Ecole Polytechnique X, 2011.

[Bosacchi 78] B Bosacchi, JS Bessey & FC Jain. *Two-photon absorption of neodymium laser radiation in gallium arsenide.* Journal of Applied Physics, vol. 49, no. 8, pages 4609–4611, 1978.

[Bouchon 10] Patrick Bouchon, Fabrice Pardo, Riad Haïdar & Jean-Luc Pelouard. *Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation.* J. Opt. Soc. Am. A, vol. 27, no. 4, pages 696–702, Apr 2010.

[Braunstein 62] Rubin Braunstein. *Nonlinear optical effects.* Physical Review, vol. 125, no. 2, page 475, 1962.

[Braunstein 64] R. Braunstein & N. Ockman. *Optical Double-Photon Absorption in CdS.* Phys. Rev., vol. 134, pages 84–85, Feb 1959.

[Brossel 54] Jean Brossel, Bernard Cagnac & Alfred Kastler. *Résonance magnétique sur des atomes orientés optiquement.* J. Phys. Radium, vol. 15, no. 1, pages 6–8, 1954.

[Brown 56] R Hanbury Brown & RQ Twiss. *A test of a new type of stellar interferometer on Sirius.* Nature, vol. 178, no. 4541, pages 1046–1048, 1956.

[Brown 57] R. Hanbury Brown & R. Q. Twiss. *Interferometry of the Intensity Fluctuations in Light. I. Basic Theory : The Correlation between Photons in Coherent Beams of Radiation.* Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, vol. 242, no. 1230, pages 300–324, 1957.

[Bube 60] Richard H. Bube. *Photoelectronic Analysis of High Resistivity Crystals : (a) GaAs, (b) Sb2S3.* Journal of Applied Physics, vol. 31, no. 2, 1960.

[Cagnac, B. 73] Cagnac, B., Grynberg, G. & Biraben, F. *Spectroscopie d'absorption multiphotonique sans effet Doppler.* J. Phys. France, vol. 34, no. 10, pages 845–858, 1973.

[Dam 10] Jeppe Seidelin Dam, Christian Pedersen & Peter Tidemand-Lichtenberg. *High-resolution two-dimensional image upconversion of incoherent light.* Optics letters, vol. 35, no. 22, pages 3796–3798, 2010.

[Davidovich 96] Luiz Davidovich. *Sub-Poissonian processes in quantum optics.* Reviews of Modern Physics, vol. 68, no. 1, page 127, 1996.

[Duchesne 09] D. Duchesne, L. Razzari, L. Halloran, R. Morandotti, A. J. Spring Thorpe, D. N. Christodoulides & D. J. Moss. *Two-photon photodetector in a multiquantum well GaAs laser structure at 1.55μm.* Opt. Express, vol. 17, no. 7, pages 5298–5310, Mar 2009.

[Dvorak 94] M.D. Dvorak, W.A. Schroeder, D.R. Andersen, A.L. Smirl & B.S. Wherrett. *Measurement of the anisotropy of two-photon absorption coefficients in zincblende semiconductors.* Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 30, no. 2, pages 256 –268, feb 1994.

[Einstein 05] A. Einstein. *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt.* Annalen der Physik, vol. 322, no. 6, pages 132–148, 1905.

[Fabre 92] Claude Fabre. *Squeezed states of light.* Physics reports, vol. 219, no. 3, pages 215–225, 1992.

[Fishman 11] Dmitry A Fishman, Claudiu M Cirloganu, Scott Webster, Lazaro A Padilha, Morgan Monroe, David J Hagan & Eric W Van Stryland. *Sensitive mid-infrared detection in wide-bandgap semiconductors using extreme non-degenerate two-photon absorption.* Nature Photonics, vol. 5, no. 9, pages 561–565, 2011.

[Folliot 02a] H. Folliot, M. Lynch, A. L. Bradley, L. A. Dunbar, J. Hegarty, J. F. Donegan, L. P. Barry, J. S. Roberts & G. Hill. *Two-photon absorption*

photocurrent enhancement in bulk AlGaAs semiconductor microcavities. Applied Physics Letters, vol. 80, no. 8, 2002.

[Folliot 02b] H. Folliot, M. Lynch, A. L. Bradley, T. Krug, L. A. Dunbar, J. Hegarty, J. F. Donegan & L. P. Barry. *Two-photon-induced photoconductivity enhancement in semiconductor microcavities : a theoretical investigation.* J. Opt. Soc. Am. B, vol. 19, no. 10, pages 2396–2402, Oct 2002.

[Franken 61] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters & G. Weinreich. *Generation of Optical Harmonics.* Phys. Rev. Lett., vol. 7, pages 118–119, Aug 1961.

[Gini 96] Emilio Gini & Hans Melchior. *The refractive index of InP and its temperature dependence in the wavelength range from 1.2 µm to 1.6 µm.* In Indium Phosphide and Related Materials, 1996. IPRM'96., Eighth International Conference on, pages 594–597. IEEE, 1996.

[Giordmaine 67] J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro & K. W. Wecht. *TWO PHOTON EXCITATION OF FLUORESCENCE BY PICOSECOND LIGHT PULSES.* Applied Physics Letters, vol. 11, no. 7, 1967.

[Glauber 64] R Glauber. *Optique et electronique quantique.* In Les Houches Lectures (1964). Gordon and Breach New York, 1964.

[Glenn 70] W. Glenn. *Theory of the two-photon absorption-fluorescence method of pulsewidth measurement.* Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 6, no. 8, pages 510–515, Aug 1970.

[Göppert-Mayer 31] Maria Göppert-Mayer. *Ãœber Elementarakte mit zwei Quantensprüngen.* Annalen der Physik, vol. 401, no. 3, pages 273–294, 1931.

[Grove 67] Andrew S Grove. Physics and technology of semiconductor devices. John Wiley & Sons Inc, 1967.

[Grynberg 76] Gilbert Grynberg. *Spectroscopie d'absorption à deux photons sans élargissement Doppler. Application à l'étude du sodium et du néon.* PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 1976.

[Hayat 08] Alex Hayat, Pavel Ginzburg & Meir Orenstein. *Infrared single-photon detection by two-photon absorption in silicon.* Phys. Rev. B, vol. 77, page 125219, Mar 2008.

[Hertz 87] H Hertz. *On the photoelectric effect.* Ann Phys, vol. 31, pages 983–1000, 1887.

[Hughes 50a] Vernon Hughes & Ludwig Grabner. *Energy Levels, Selection Rules, and Line Intensities for Molecular Beam Electric Resonance Experiments with Diatomic Molecules.* Phys. Rev., vol. 79, pages 829–836, Sep 1950.

[Hughes 50b] Vernon Hughes & Ludwig Grabner. *The Radiofrequency Spectrum of* Rb^{85} *F and* Rb^{87} *F by the Electric Resonance Method.* Phys. Rev., vol. 79, pages 314–322, Jul 1950.

[Hurlbut 07] W. C. Hurlbut, Yun-Shik Lee, K. L. Vodopyanov, P. S. Kuo & M. M. Fejer. *Multiphoton absorption and nonlinear refraction of GaAs in the mid-infrared.* Opt. Lett., vol. 32, no. 6, pages 668–670, Mar 2007.

[Hutchings 94] D. C. Hutchings & B. S. Wherrett. *Theory of anisotropy of two-photon absorption in zinc-blende semiconductors.* Phys. Rev. B, vol. 49, pages 2418–2426, Jan 1994.

[Jayaraman 72] S. Jayaraman & C. H. Lee. *Observation of Two Photon Conductivity in GaAs with Nanosecond and Picosecond Light Pulses.* Applied Physics Letters, vol. 20, no. 10, 1972.

[Kaiser 61] W. Kaiser & C. G. B. Garrett. *Two-Photon Excitation in* $CaF_2 : Eu^{2+}$. Phys. Rev. Lett., vol. 7, pages 229–231, Sep 1961.

[Kikuchi 98] K. Kikuchi. *Optical sampling system at 1.5 μm using two photon absorption in Si avalanche photodiode.* Electronics Letters, vol. 34, no. 13, pages 1354–1355, Jun 1998.

[Kleinman 62] David A Kleinman. *Laser and two-photon processes.* Physical Review, vol. 125, no. 1, page 87, 1962.

[Knights 11] AP Knights, JK Doylend, DF Logan, JJ Ackert, PE Jessop, P Velha, M Sorel & RM De La Rue. *Defect mediated detection of wavelengths around 1550 nm in a ring resonant structure.* In SPIE OPTO, pages 794308–794308. International Society for Optics and Photonics, 2011.

[Koechlin 13] Charlie Koechlin, Patrick Bouchon, Fabrice Pardo, Jean-Luc Pelouard & Riad Haïdar. *Analytical description of subwavelength plasmonic MIM resonators and of their combination.* Optics express, vol. 21, no. 6, pages 7025–7032, 2013.

[Kusch 54] P. Kusch. *Some Observations of Double- and Triple-Quantum Transitions.* Phys. Rev., vol. 93, pages 1022–1025, Mar 1954.

[Kusch 56] P. Kusch. *Further Observations of Multiple-Quantum Transitions. Saturation Effects in Radio-Frequency Transitions.* Phys. Rev., vol. 101, pages 627–636, Jan 1956.

[Lambropoulos 66] P Lambropoulos, Chihiro Kikuchi & Richard K Osborn. *Coherence and two-photon absorption.* Physical Review, vol. 144, no. 4, page 1081, 1966.

[Le Perchec 09] J. Le Perchec, Y. Desieres & R. Espiau de Lamaestre. *Plasmon-based photosensors comprising a very thin semiconducting region.* Applied Physics Letters, vol. 94, no. 18, pages –, 2009.

[Le Perchec 12] J. Le Perchec, Y. Desieres, N. Rochat & R. Espiau de Lamaestre. *Subwavelength optical absorber with an integrated photon sorter.* Applied Physics Letters, vol. 100, no. 11, pages –, 2012.

[Lee 74] ChiH. Lee & S. Jayaraman. *Measurement of ultrashort optical pulses by two-photon photoconductivity techniques.* Opto-electronics, vol. 6, no. 1, pages 115–120, 1974.

[Liang 02] T. K. Liang, H. K. Tsang, I. E. Day, J. Drake, A. P. Knights & M. Asghari. *Silicon waveguide two-photon absorption detector at 1.5 μm wa-*

velength for autocorrelation measurements. Applied Physics Letters, vol. 81, no. 7, 2002.

[Liang 06] T.K. Liang, L.R. Nunes, M. Tsuchiya, K.S. Abedin, T. Miyazaki, D. Van Thourhout, W. Bogaerts, P. Dumon, R. Baets & H.K. Tsang. *High speed logic gate using two-photon absorption in silicon waveguides.* Optics Communications, vol. 265, no. 1, pages 171 – 174, 2006.

[Logan 09] Dylan F Logan, Paul E Jessop & Andrew P Knights. *Modeling defect enhanced detection at 1550 nm in integrated silicon waveguide photodetectors.* Journal of Lightwave Technology, vol. 27, no. 7, pages 930–937, 2009.

[Loudon 62] R Loudon. *Theory of non-linear optical processes in semiconductors and insulators.* Proceedings of the Physical Society, vol. 80, no. 4, page 952, 1962.

[Maiman 60] T. H.. Maiman. *Stimulated Optical Radiation in Ruby.* Nature, vol. 187, pages 493–494, Aug 1960.

[Millikan 16] R. A. Millikan. *A Direct Photoelectric Determination of Planck's "h".* Phys. Rev., vol. 7, pages 355–388, Mar 1916.

[Norton 99] Paul R. Norton. *Infrared detectors in the next millennium*, 1999.

[Oksman 72] Ya A Oksman, AA Semenov, OM SMIRNOV & VN SMIRNOV. *MANY-PHOTON ABSORPTION IN WIDE-GAP SEMICONDUCTORS*, 1972.

[Palczewska 14] Grazyna Palczewska, Frans Vinberg, Patrycjusz Stremplewski, Martin P. Bircher, David Salom, Katarzyna Komar, Jianye Zhang, Michele Cascella, Maciej Wojtkowski, Vladimir J. Kefalov & Krzysztof Palczewski. *Human infrared vision is triggered by two-photon chromophore isomerization.* Proceedings of the National Academy of Sciences, vol. 111, no. 50, pages E5445–E5454, 2014.

[Patel 71] C. K. N. Patel. *HOW TO MEASURE SUBNANOSECOND LASER PULSES AT 10.6μm.* Applied Physics Letters, vol. 18, no. 1, 1971.

[Paul 82] H Paul. *Photon antibunching.* Reviews of Modern Physics, vol. 54, no. 4, page 1061, 1982.

[Planck 59] Max Planck. The theory of heat radiation. Courier Corporation, 1959.

[Portier 14] Benjamin Portier, Benjamin Vest, Fabrice Pardo, Nicolas PÃ©rÃ©-Laperne, Emilie Steveler, Julien Jaeck, Christophe Dupuis, Nathalie Bardou, Aristide Lemaître, Emmanuel Rosencher, Riad HaÃ¯dar & Jean-Luc Pelouard. *Resonant metallic nanostructure for enhanced two-photon absorption in a thin GaAs p-i-n diode.* Applied Physics Letters, vol. 105, no. 1, pages –, 2014.

[Rakić 98] Aleksandar D. Rakić, Aleksandra B. Djurišić, Jovan M. Elazar & Marian L. Majewski. *Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices.* Appl. Opt., vol. 37, no. 22, pages 5271–5283, Aug 1998.

[Rogalski 09] A. Rogalski, J. Antoszewski & L. Faraone. *Third-generation infrared photodetector arrays.* Journal of Applied Physics, vol. 105, no. 9, pages –, 2009.

[Rose 63] Albert Rose. Concepts in photoconductivity and allied problems. Numeéro 19. Interscience publishers, 1963.

[Rosencher 02] E Rosencher & B Vinter. *Optoélectronique, Dunod*, 2002.

[Roth 02] Jeffrey M. Roth, T. E. Murphy & Chris Xu. *Ultrasensitive and high-dynamic-range two-photon absorption in a GaAs photomultiplier tube.* Opt. Lett., vol. 27, no. 23, pages 2076–2078, Dec 2002.

[Said 92] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T. H. Wei, J. Wang, J. Young & E. W. Van Stryland. *Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe.* J. Opt. Soc. Am. B, vol. 9, no. 3, pages 405–414, Mar 1992.

[Sarkissian 15] Raymond Sarkissian & John Oapos ;Brien. *Cross two photon absorption in a silicon photonic crystal waveguide fiber taper coupler with a physical junction.* Journal of Applied Physics, vol. 117, no. 3, pages –, 2015.

[Saïssy 78] A. Saïssy, A. Azema, J. Botineau & F. Gires. *Absolute measurement of the 1.06 μm two-photon absorption coefficient in GaAs.* Applied physics, vol. 15, no. 1, pages 99–102, 1978.

[Sheik-Bahae 90] Mansoor Sheik-Bahae, Ali A Said, T-H Wei, David J Hagan & Eric W Van Stryland. *Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam.* Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 26, no. 4, pages 760–769, 1990.

[Sheik-Bahae 91] M. Sheik-Bahae, D.C. Hutchings, D.J. Hagan & E.W. Van Stryland. *Dispersion of bound electron nonlinear refraction in solids.* Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 27, no. 6, pages 1296 –1309, jun 1991.

[Sheik-Bahae 92] M Sheik-Bahae, J Wang, R DeSalvo, DJ Hagan & EW Van Stryland. *Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color Z scan.* Optics letters, vol. 17, no. 4, pages 258–260, 1992.

[Shiga 67] F Shiga & S Imamura. *Experiment on relation between two-photon absorption and coherence of light.* Physics Letters A, vol. 25, no. 10, pages 706–707, 1967.

[Simaan 75a] HD Simaan & R Loudon. *Quantum statistics of double-beam two-photon absorption.* Journal of Physics A : Mathematical and General, vol. 8, no. 7, page 1140, 1975.

[Simaan 75b] HD Simaan & R Loudon. *Quantum statistics of single-beam two-photon absorption.* Journal of Physics A : Mathematical and General, vol. 8, no. 4, page 539, 1975.

[Skauli 03] T. Skauli, P. S. Kuo, K. L. Vodopyanov, T. J. Pinguet, O. Levi, L. A. Eyres, J. S. Harris, M. M. Fejer, B. Gerard, L. Becouarn & E. Lallier.

Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics. Journal of Applied Physics, vol. 94, no. 10, 2003.

[Sonnenberg 64] H Sonnenberg, H Heffner & W Spicer. *TWO-PHOTON PHOTOELECTRIC EFFECT IN Cs3Sb1.* Applied Physics Letters, vol. 5, no. 5, pages 95–96, 1964.

[Stegeman 88] G.I. Stegeman, E.M. Wright, N. Finlayson, R. Zanoni & C.T. Seaton. *Third order nonlinear integrated optics.* Lightwave Technology, Journal of, vol. 6, no. 6, pages 953–970, Jun 1988.

[Stryland 85] Eric W. Van Stryland, M. A. Woodall, H. Vanherzeele & M. J. Soileau. *Energy band-gap dependence of two-photon absorption.* Opt. Lett., vol. 10, no. 10, pages 490–492, Oct 1985.

[Takagi 92] Yoshihiro Takagi, Shunji Imamura, Tohru Kobayashi & Keitaro Yoshihara. *Multiple- and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors.* Opt. Lett., vol. 17, no. 9, pages 658–660, May 1992.

[Takakura 01] Y. Takakura. *Optical Resonance in a Narrow Slit in a Thick Metallic Screen.* Phys. Rev. Lett., vol. 86, pages 5601–5603, Jun 2001.

[Tanabe 10] Takasumi Tanabe, Hisashi Sumikura, Hideaki Taniyama, Akihiko Shinya & Masaya Notomi. *All-silicon sub-Gb/s telecom detector with low dark current and high quantum efficiency on chip.* Applied Physics Letters, vol. 96, no. 10, pages –, 2010.

[Tapster 87] PR Tapster, JG Rarity & JS Satchell. *Generation of sub-Poissonian light by high-efficiency light-emitting diodes.* EPL (Europhysics Letters), vol. 4, no. 3, page 293, 1987.

[Teich 69] M. C. Teich & Paul Diament. *Twoâ€ Photon Counting Statistics for Laser and Chaotic Radiation.* Journal of Applied Physics, vol. 40, no. 2, 1969.

[Teich 89] Malvin C Teich & Bahaa EA Saleh. *Squeezed state of light.* Quantum Optics : Journal of the European Optical Society Part B, vol. 1, no. 2, page 153, 1989.

[Teich 90] Malvin C Teich & Bahaa EA Saleh. *Squeezed and antibunched light.* Phys. Today, vol. 43, no. 6, page 26, 1990.

[Van Stryland 85] Eric W. Van Stryland, H. Vanherzeele, M. A. Woodall, M. J. Soileau, Arthur L. Smirl, Shekhar Guha & Thomas F. Boggess. *Two Photon Absorption, Nonlinear Refraction, And Optical Limiting In Semiconductors.* Optical Engineering, vol. 24, no. 4, pages 244613–244613–, 1985.

[Vasilenko L.S. 70] Shishaev A.V . Vasilenko L.S. Chebotaev V.P. *Line Shape of Two-Photon Absorption in a Standing-Wave Field in a Gas.* JETP Lett., vol. 12, page 113, Aug 1970.

[Vest 13] B Vest, E Lucas, J Jaeck, R Haidar & E Rosencher. *Silicon sub-bandgap photon linear detection in two-photon experiments : A photo-assisted Shockley-Read-Hall mechanism.* Applied Physics Letters, vol. 102, no. 3, page 031105, 2013.

[Weber 68] HEINZ P Weber & R Dandliker. *Intensity interferometry by two-photon excitation of fluorescence.* Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 4, no. 12, pages 1009–1013, 1968.

[Wherrett 84] B. S. Wherrett. *Scaling rules for multiphoton interband absorption in semiconductors.* J. Opt. Soc. Am. B, vol. 1, no. 1, pages 67–72, Mar 1984.

[Xu 02] Chris Xu, Jeffrey M Roth, Wayne H Knox & Keren Bergman. *Ultra-sensitive autocorrelation of 1.5 μm light with single photon counting silicon avalanche photodiode.* Electronics letters, vol. 38, no. 2, pages 86–88, 2002.

[Zheludev 07] Nikolay Zheludev. *The life and times of the LED : a 100-year history.* Nature Photonics, vol. 1, no. 4, pages 189–192, 2007.

[Zou 90] XT Zou & L Mandel. *Photon-antibunching and sub-Poissonian photon statistics.* Physical Review A, vol. 41, no. 1, page 475, 1990.

EPILOGUE

It was in the reign of George III
That the aforesaid personages lived and
quarreled ;
Good or Bad, Handsome or Ugly, Rich Or Poor
They Are All Equal Now

Barry Lyndon, de Stanley Kubrick

Absorption à deux photons pour la détection infrarouge
Une alternative aux schémas classiques de détection quantique

Résumé

Les travaux de cette thèse portent sur l'étude de l'absorption à deux photons non-dégénérée comme solution de détection infrarouge dans des matériaux à gap visible. Leur utilisation n'impose pas le recours au refroidissement du détecteur.

Dans un premier temps, nous étudions différentes descriptions du processus d'absorption à deux photons pour les appliquer au cadre de la détection de lumière. Des expériences de caractérisation ont ensuite été menées sur des détecteurs commerciaux. Elles ont mis en évidence la compétition entre processus d'absorption linéaire et non-linéaire de photons d'énergie sub-gap dans les semiconducteurs.

Dans un second temps, nous avons travaillé à la conception de photodétecteurs non-refroidis intégrant des cavités résonantes nanostructurées. En confinant les photons dans un volume réduit, ces structures permettent d'améliorer de plusieurs ordres de grandeur le rendement quantique de détection. Les performances des dispositifs conçus ont pu être démontrées à la fois numériquement, et expérimentalement, après fabrication en salle blanche des photodétecteurs et caractérisation de leurs propriétés optoélectroniques.

Le travail mené veut se présenter comme une alternative originale et innovante aux méthodes classiques de détection quantique infrarouge refroidie.

Mots clés : détection, optique non-linéaire, nanosciences

Two-photon absorption for infrared detection
An alternative to conventional detection schemes

Abstract

This work was focused on the investigation of non-degenerate two-photon absorption (ND-2PA) as a solution for detecting infrared photons in visible bandgap materials. This allows high performance operation at high temperatures.

Firstly, we investigated the different descriptions of two-photon absorption and applied them in the theoretical frame of photodetection. We have then characterised several commercial photodetectors, thus highlighting the competition between linear and non-linear processes of sub-bandgap photon absorption, as well as the need to compensate the intrinsic inefficiency of two-photon absorption by using non-conventional photodetectors.

Secondly, we designed uncooled photodetectors based on two-photon absorption inside a semiconductor embedded in a resonnant metallic nanostructure. Due to strong field enhancement, non-linear processes are increased by several orders of magnitude. These performances were both proven numerically and experimentally, after fabrication of sample devices in a clean room environment, and characterisation of their optoelectronics properties.

This work is a first step toward an innovative method for infrared photodetection at high operating temperatures.

Keywords: detection, non-linear optics, nanosciences

Département d'Optique Théorique et Appliquée
ONERA – Chemin de la Hunière et des Joncherettes – 91120 PALAISEAU – France