EXPÉRIENCES D'OPTIQUE NON LINÉAIRE DANS LES SEMICONDUCTEURS III-V

R. KUSZELEWICZ

*Centre National d'Etudes des Télécommunications, 196, Avenue
Henri Ravera, F-92220 Bagneux, France*

1. INTRODUCTION

Les effets non linéaires en optique sont à la base d'un très grand nombre d'applications potentielles. L'une des applications les plus prometteuses réside dans le développement de dispositifs optiques pour le traitement du signal [1,2]. A ces fins, la connaissance préalable des mécanismes de ces non linéarités et la recherche des matériaux les plus performants est essentielle.

Dans cette perspective, les matériaux semiconducteurs III-V offrent un intérêt particulier. De par leurs non linéarités importantes ils constituent des matériaux de choix pour les études de dispositifs optoélectroniques tels que les portes logiques, les diodes lasers, les modulateurs et les photodétecteurs qui reposent sur des phénomènes tels que la bistabilité optique, la conjugaison de phase ou la photorefractivité. Leur fabrication a nécessité le développement de techniques d'épithaxie sophistiquées qui ont permis la réalisation de structures synthétiques nouvelles comme les Multi-Puits Quantiques (MPQ) dont l'épaisseur peut être contrôlée à la monocouche atomique près [3]. Cette maîtrise de la fabrication est à la base d'une véritable ingénierie de structures possédant des propriétés optiques et électroniques originales [4,5].

Parallèlement, l'affinement des moyens d'investigation (lasers femtosecondes accordables) donne accès aux mécanismes de collision et de relaxation des porteurs ainsi qu'à leurs échelles de temps caractéristiques, en créant des distributions d'électrons et de trous fortement hors-équilibre. Cette connaissance des mécanismes intimes est essentielle quand on sait que le temps de réponse d'un dispositif dépend étroitement de la dynamique de relaxation des porteurs photoexcités. A cet égard, nous verrons le rôle important que joue la recombinaison stimulée dans les MPQ lorsque la lumière est guidée par la structure, le long des interfaces.

2. LES DIFFERENTS TYPES DE NON LINEARITES OPTIQUES

Un matériau manifeste un comportement non linéaire lorsque la lumière interagit de façon intense avec ses états excités. Le calcul prévoit alors, qu'en plus des fréquences optiques incidentes, des fréquences correspondant à leur somme ou leur différence peuvent également être générées si l'énergie des photons correspondants est proche de celle d'une transition du milieu.

Les expériences ont permis de distinguer deux grandes classes de mécanismes [6]. Dans la première classe de phénomènes appelée interactions paramétriques, le matériau agit comme un catalyseur de l'interaction entre ondes lumineuses. Aucun échange net d'énergie n'est alors enregistré entre la lumière et la matière. L'énergie totale des photons incidents est redistribuée sous forme d'autres photons. La raison essentielle est que ces processus n'impliquent que des transitions virtuelles. Il en découle une quasi-instantanéité de ces interactions. La seconde classe de processus, met en jeu des transitions réelles entre états propres du matériau. Ceci se traduit par un échange d'énergie impliquant des mécanismes dissipatifs. Les temps caractéristiques de ces non linéarités dépendent alors de la dynamique de relaxation des porteurs photoexcités.

Bien que rapidité et non dissipation soient des arguments décisifs lorsqu'on envisage des applications, on utilise plus volontiers les interactions non paramétriques tant le renforcement des non linéarités liées à cette classe d'interactions est important et faible est le coût énergétique. Alors que les processus paramétriques sont utilisés dans des contextes de mélange de fréquences, génération de seconde harmonique, ou amplification paramétrique, les non linéarités dynamiques trouvent leur application dans la conjugaison de phase, la bistabilité optique ou la réalisation de portes logiques. Elles sont généralement décrites à l'aide d'un formalisme utilisant un tenseur de susceptibilité d'ordre 3, $\chi^{(3)}$, bien qu'il faille souvent se servir des termes impairs d'ordre supérieur ($\chi^{(5)}$, $\chi^{(7)}$) pour rendre compte de non linéarités plus importantes, comme dans le cas de la saturation de l'absorption. Cependant à faible intensité, un développement en terme de $\chi^{(3)}$ est souvent suffisant.

Enfin, et ces cas seront étudiés dans les chapitres suivants, d'autres mécanismes différents de la saturation peuvent générer des non linéarités dynamiques dans les semiconducteurs. Mentionnons, les contributions du plasma électrons-trous à l'indice non linéaire [7] et l'écrantage des excitons par les porteurs libres [8].

Il est remarquable de constater combien sont disparates les valeurs de $\chi^{(3)}$ selon les matériaux. De $2 \cdot 10^{-15}$ e.s.u. pour LiF à $1 \cdot 10^{-10}$ e.s.u. pour Ge pour les processus paramétriques [9], des valeurs de $\chi^{(3)}$ effectifs de 1. e.s.u. ont été rapportées [10] pour des processus dynamiques dans InSb. Pour une étude détaillée, nous renvoyons à l'analyse de Wherrett [11].

3. LES THEORIES DESCRIPTIVES DES NON LINEARITES DYNAMIQUES

3.1. THEORIES DE LA REPONSE NON LINEAIRE

Un cadre bien adapté à la description phénoménologique de la réponse optique non linéaire d'un matériau consiste à considérer les *relations constitutives* reliant la polarisation au champ électrique appliqué. Ceci s'opère dans une approche perturbative, par un développement en série des puissances du champ électrique [12].

Deux approches équivalentes sont également possibles selon que l'on se place dans une perspective temporelle ou spectrale. Dans la première approche, la réponse la plus générale peut être écrite à l'ordre r en termes de la polarisation du milieu $\bar{P}^{(r)}(t)$ en fonction du champ $\bar{E}(t)$ comme :

$$\bar{P}^{(r)}(t) = \int dt_1 \int dt_2 \dots \int dt_r \bar{R}^{(r)}(t - t_1, t - t_2, \dots, t - t_r) | \bar{E}(t_1) \bar{E}(t_2) \dots \bar{E}(t_r) \quad (1)$$

où $\bar{R}^{(r)}(t)$ est un tenseur de rang $r+1$ et $|$ correspond au produit scalaire d'ordre r . $\bar{R}^{(r)}(t)$ est la réponse temporelle du matériau, invariante par translation dans le temps [6,12], à une série de r impulsions de Dirac $\delta(t)$ aux instants t_j ($1 \leq j \leq r$). La seconde description dans le domaine des fréquences utilise les composantes de Fourier $\bar{E}(\omega)$ du champ $\bar{E}(t)$ où

$$\bar{E}(\omega) = \int dt e^{i\omega t} \bar{E}(t) \quad (2)$$

Les propriétés du matériau sont alors décrites par son tenseur de susceptibilité non linéaire et la polarisation du milieu s'écrit, à l'ordre r :

$$\bar{P}^{(r)}(t) = \int d\omega_1 \int d\omega_2 \dots \int d\omega_r \bar{\chi}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) | \bar{E}(\omega_1) \bar{E}(\omega_2) \dots \bar{E}(\omega_r) . e^{-i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_r)t} \quad (3)$$

Les tenseurs de la réponse non linéaire et de susceptibilité non linéaire sont bien entendu reliés par une relation de Fourier généralisée [13].

Bien que ces deux descriptions soient en principe équivalentes le formalisme de la susceptibilité non linéaire décrit mieux les réponses à des ondes monochromatiques, tandis que le formalisme de la réponse impulsionnelle est mieux adapté au cas des impulsions ultra-brèves. Dans la pratique expérimentale, les impulsions, même les plus brèves ont un spectre de Fourier borné, centré autour d'une fréquence qui peut correspondre à une transition du matériau. C'est pourquoi l'approche spectrale n'est jamais absente de la description de la réponse non linéaire à une impulsion même très brève.

Le formalisme que nous avons décrit s'applique à l'ensemble des situations où l'approche perturbative est significative. Dans ce contexte, un certain nombre de cas spécifiques se dégagent cependant, sur la base des valeurs relatives des échelles de temps caractéristiques mises en jeu dans les processus non linéaires transitoires. L'onde lumineuse se caractérise par la durée T_p de l'impulsion et par son temps de cohérence T_c typiquement égal à l'inverse de sa largeur spectrale. Dans le milieu matériel, un état excité possède une durée de vie T_1 relative aux populations et un temps de déphasage T_2 traduisant le temps de perte de cohérence de la polarisation induite et du champ électromagnétique inducteur. Bien

que correspondant au contexte d'un système atomique à 2 niveaux [14], cette description s'applique également à la structure de bande d'un semiconducteur à gap direct et servira de base à la discussion ci-après. Finalement nous appellerons Δ le déphasage à la résonance et Ω la fréquence de Rabi proportionnelle à l'amplitude du champ électrique et au moment dipolaire de la transition. Nous ferons l'hypothèse complémentaire que les impulsions lumineuses sont "Transform limit" et que $T_2 \ll T_1$.

a) $T_p \ll T_2$: impulsion ultra courte.

C'est le domaine des phénomènes transitoires cohérents (écho de photons, superradiance, transparence auto-induite....).

b) $T_2 \ll T_p < T_1$.

C'est le régime des non linéarités dynamiques où l'évolution des cohérences est quasi-stationnaire vis-à-vis du champ électrique, tandis que la réponse non linéaire est régie par l'évolution des populations excitées. Une description en terme de tenseur de susceptibilité effective dépendant des populations est possible, qui dans le formalisme de la matrice densité s'écrit :

$$P(t) = \chi_{eff}(t)E(t) = \chi^{(1)} \frac{\Delta\rho(t)}{\Delta\rho^0} E(t) \quad (4)$$

où $\Delta\rho(t)$ est la différence des populations entre états excité et fondamental. Ainsi $\chi_{eff}(t)$ donne une mesure directe de la cinétique des populations.

c) $T_2 \ll T_1 < T_p$.

Situation quasi-stationnaire où les populations sont en équilibre permanent avec l'excitation lumineuse. A la résonance exacte $\Delta = 0$ la réponse non linéaire est caractéristique d'un mécanisme de saturation.

$$P_{NL} = \frac{P_L}{(1 + I/I_s)} \quad (5)$$

où

$$\frac{I}{I_s} = T_1 T_2 \Omega^2$$

Remarquons qu'au vu de ces 3 situations, la première est décrite dans le domaine temporel, la troisième dans le domaine spectral tandis que la seconde incorpore dans un même formalisme ces deux descriptions.

3.2. EXPRESSIONS DE L'ABSORPTION ET DE L'INDICE NON LINEAIRE

Les non linéarités dynamiques dans les semiconducteurs à gap direct ont été particulièrement étudiées dans la mesure où elles donnent lieu à d'importantes modifications des propriétés optiques, avec de faibles niveaux d'excitation. Les mécanismes variés qui en sont responsables ont été particulièrement sondés dans le contexte de la bistabilité optique ou celui de la conjugaison de phase par mélange à 4 ondes [15].

Pour un semiconducteur à gap direct à 2 bandes paraboliques, la susceptibilité est calculée à l'aide des outils descriptifs et l'on définit la densité jointe d'états $\rho(E)$ comme la densité de systèmes à 2 niveaux couplés optiquement par un photon d'énergie E [16].

Ainsi l'on peut exprimer la susceptibilité $\chi(\omega) = \chi_r(\omega) + i \chi_i(\omega)$ par :

$$\chi_r(\omega) = A \int_0^\infty d\omega' \rho(\hbar\omega') [1 - f_e(\omega') - f_h(\omega')] \frac{(\omega - \omega')T_2^2}{T_2^2(\omega - \omega')^2 + 1} \quad (6)$$

$$\chi_i(\omega) = A \int_0^\infty d\omega' \rho(\hbar\omega') [1 - f_e(\omega') - f_h(\omega')] \frac{T_2}{T_2^2(\omega - \omega')^2 + 1} \quad (7)$$

A est une constante de proportionnalité caractéristique du matériau, $f_e(\omega)$ et $f_h(\omega)$ sont les fonctions d'occupation des électrons de conduction et des trous de valence respectivement, ces dernières introduisant les mécanismes de la non linéarité par l'intermédiaire des populations de porteurs dépendantes du champ. En bordure de gap $\chi_r(\omega)$ décrit l'indice de réfraction [10], qui peut être traduit par un terme de susceptibilité d'ordre 3, $\chi_{eff}^{(3)}$. La polarisation induite peut alors s'exprimer par une dépendance cubique envers le champ électrique et l'indice de réfraction total comme un indice dépendant linéairement de l'intensité.

Dans les situations de quasi équilibre f_e et f_h peuvent être décrites par la distribution de Fermi-Dirac, avec une température propre (généralement différente de celle du réseau), T_{FD} . Dans la plupart des cas, $\hbar/T_2 \ll kT_{FD}$, et l'absorption peut se mettre sous la forme :

$$\alpha(\omega, t) = \alpha_0(\omega) [1 - f_e(E_e, t) - f_h(E_h, t)] \quad (8)$$

où $\alpha_0(\omega)$ est le coefficient d'absorption du matériau non excité. Alors α/α_0 donne directement accès au facteur de population f_e et f_h .

Cette approximation souffre une exception lorsque les impulsions optiques sont plus brèves que le temps de collision porteur-porteur. D'autres formes fonctionnelles doivent alors être envisagées pour

f_e et f_h . Ceci est le cas lorsque, excités en lumière polarisée, les porteurs sont créés dans des états préférentiels où leur impulsion est perpendiculaire au champ électrique excitateur. Ce mécanisme génère une anisotropie de la distribution dans l'espace des $\vec{k}$.

En terme d'occupation des états et de leur saturation on peut utiliser entre χ_e et χ_h les relations de Kramers-Krönig. En bordure de gap on peut ainsi relier la variation d'indice non linéaire à l'absorption linéaire du matériau par la relation dérivée [17]:

$$\Delta n(\omega) = \frac{c}{\pi} \int_0^\infty \frac{\Delta \alpha(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad (9)$$

Cette méthode offre un moyen d'accès indirect à la mesure des indices non linéaires à partir de la mesure de l'absorption. Les expériences seront décrites au chapitre 5.

4. ETUDE DES MECANISMES DE RELAXATION

Le développement des sources picosecondes et femtosecondes a rendu possible l'étude directe, dans le domaine temporel, des collisions entre porteurs et de la relaxation du vecteur d'onde des électrons et des trous à l'intérieur de leurs bandes respectives. Ceci s'obtient en créant une population d'électrons et de trous fortement hors équilibre à l'aide d'impulsions lumineuses intenses ultra-brèves. Cette situation découle des règles de sélection dans l'espace des $\vec{k}$ qui restreint considérablement le nombre d'états couplés optiquement (fig.1). En conséquence, la dynamique de la saturation de l'absorption dépend des taux de diffusion hors (et vers) ces états couplés optiquement, par l'intermédiaire des interactions porteurs-porteurs.

Fig.1: Représentation schématique des processus contrôlant la dynamique de la saturation bande à bande dans un semiconducteur à gap direct.

Fig.2: Schéma de l'évolution temporelle des porteurs photoexcités.

Ces interactions conduisent progressivement à une distribution thermalisée à la température T_e généralement supérieure à celle du réseau (fig.2). Par la suite, par le biais d'interactions électrons-phonons, le plasma se refroidit et évolue vers la température du réseau. Les expériences les plus couramment utilisées sont de type "pompe et sonde". Un faisceau intense monochromatique (pompe) excite fortement le matériau et y génère une forte densité de porteurs excités. Un second faisceau (sonde) de faible intensité vient "lire" les modifications des propriétés optiques. Le faisceau de sonde peut avoir une longueur d'onde différente ou être large spectre, de même qu'il peut être retardé afin d'étudier l'évolution temporelle de ces modifications.

4.1. ETUDES FEMTOSECONDES DE LA RELAXATION D'ORIENTATION

Les expériences de saturation de l'absorption par des impulsions lumineuses femtosecondes permettent d'observer la relaxation orientationnelle d'une population d'électrons et de trous dont le vecteur d'onde possède initialement une distribution anisotrope. Ce phénomène est généré par un champ électrique polarisé linéairement qui sélectionne les électrons et les trous dont le vecteur d'onde est perpendiculaire à la polarisation dans la gamme d'énergie correspondant au spectre de l'onde incidente. Lorsque les durées d'impulsions sont plus brèves que le temps moyen de collision entre porteurs, on sature préférentiellement les paires satisfaisant à cette règle de sélection. Il en découle une anisotropie de la transmission d'une seconde impulsion sonde selon qu'elle est polarisée parallèlement ou perpendiculairement à l'onde de pompe intense. Lorsque la polarisation de la sonde est à 45° de celle de la pompe, l'atténuation différentielle induit une rotation de la polarisation de l'onde de sonde transmise que l'on peut mesurer en fonction de son retard. La décroissance du signal de polarisation différentielle traduit directement la relaxation orientationnelle des paires photoexcitées. Réalisée à basse température (15°K) dans GaAs massif [18], cette expérience révèle un temps de relaxation orientationnel de 190 fs (fig.3).

Fig.3: Evolution temporelle du signal de polarisation correspondant à une anisotropie induite de la saturation de l'absorption produite par des impulsions de pompe polarisées [d'après réf.18].

Fig.4: Spectre de transmission résolu en temps faisant apparaître un trou spectral autour de la fréquence de pompe produit par une distribution de porteurs non thermalisée [d'après réf.19].

4.2. TROU SPECTRAL DYNAMIQUE DANS LA SATURATION D'ABSORPTION.

Une autre manifestation du caractère femtoseconde de la thermalisation des paires photoexcitées s'obtient en observant l'évolution temporelle du spectre d'absorption d'une sonde large bande [19]. Si le spectre de fréquence de l'onde de pompe est suffisamment étroit (situation "Transform Limit"), on génère une distribution quasi monoénergétique de porteurs au voisinage de la fréquence de pompe qui se manifeste par une saturation sélective de ces états (fig.4). Cette distribution s'élargit aux instants ultérieurs du fait des collisions entre porteurs, puis se thermalise. Cette représentation est confirmée par l'observation d'une saturation préférentielle autour de la fréquence de la pompe qui révèle des informations relatives aux premières étapes de la relaxation. Dans GaAs massif et dans les MPQ à base de GaAs, cet effet est accentué lorsque l'excès d'énergie des photons par rapport au gap est inférieur à l'énergie d'un phonon optique. Ceci supprime un mécanisme possible de relaxation et l'interaction porteur-porteur reste le mécanisme principal. Une analyse du profil temporel permet de séparer la relaxation ultrarapide d'une population athermale de celle plus lente de la même population thermalisée et permet ainsi la détermination du temps de déphasage T_2 des électrons et des trous.

Dans GaAs massif à 15 K [19] on mesure ainsi $T_2 = 300$ fs pour un excès d'énergie de 19 meV. Cet effet s'observe également dans les multipuits quantiques à base de GaAs [20] et donne la valeur $T_2 = 150$ fs [21] dans des conditions expérimentales identiques à celles du GaAs massif. Ceci traduit une réduction de l'effet d'écrantage du plasma électrons-trous qui se manifeste par une plus forte interaction porteurs-porteurs caractéristique des structures 2D.

4.3. SATURATION DE L'ABSORPTION EN REGIME PICOSECONDE

En régime d'excitation picoseconde, à l'existence d'une distribution de porteurs thermalisée à haute température succède un processus dynamique de relaxation vers une distribution à la température du réseau. L'analyse des spectres d'absorption transitoires permet de suivre le processus de refroidissement des porteurs chauds vers la température du réseau.

En régime de forte excitation, de nombreuses interactions entre les porteurs existent. On peut distinguer principalement deux types de mécanismes:

a) Occupation des états.

La génération de nombreux porteurs dans la bande de conduction se traduit, du fait du caractère fermionique des électrons, par une occupation préférentielle des états de bord de bande, en vertu du principe d'exclusion de Pauli. Les manifestations en deviennent importantes lorsque le terme de population $f_e + f_h$ est voisin de 1 (eq. 8). La notion de gap devient alors différente selon qu'on l'aborde en termes d'absorption - i.e. l'énergie nécessaire à la promotion d'un (N+1) ième électron dans la bande de conduction - ou en terme d'émission - énergie minimale des photons émis spontanément. En terme d'absorption ceci se traduit par une élévation du gap apparent du (N+1)^{ème} électron (effet Burstein dynamique).

b) Effets à N corps

La présence d'une forte densité de porteurs excités modifie également la description des états électroniques, occupés ou non, par rapport à celle du matériau faiblement excité. L'environnement de chaque porteur est alors modifié par la présence d'un grand nombre de charges électriques supplémentaires dont l'effet est d'écranter l'interaction Coulombienne entre électrons et trous, et de modifier ainsi les propriétés spectrales de l'absorption des excitons (Blue Shift). L'autre effet sensible, lié aux interactions Coulombiennes d'échange et de corrélation entre électrons provoque une diminution apparente (renormalisation) du gap du matériau [22]. Ceci se traduit par un décalage vers le rouge (Red Shift) des spectres d'absorption et de photoluminescence aux fortes densités d'excitation.

Rendre compte de ces mécanismes complexes ainsi que de leurs effets conjugués nécessite des théories sophistiquées faisant appel à des calculs auto-consistants du problème à N-corps [23,24]. Les résultats sont souvent difficiles à traduire en concepts physiques. Une expérience de type pompe-sonde sur un échantillon constitué de 60 périodes de GaAs (117 Å) et / $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ (79 Å) permet de mettre en évidence ces mécanismes particuliers [25].

Fig.5: Spectres d'absorption non linéaires à 15 K d'un multi-puits quantiques excité sur E_2H_2 pour 4 intensités d'excitation: trait plein: régime linéaire, pointillé: $8.5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, trait-point: $30 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, tiret: $80 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ [d'après ref.25]

Les résonances excitoniques sont utilisées comme marqueurs dans la mesure où les raies excitoniques des MPQ sont extrêmement fines et permettent la détermination précise de leur position spectrale. Les raies E_1H_1 , E_1L_1 et E_2H_2 sont étudiées en fonction de l'intensité de la pompe, de sa longueur d'onde (fig.5), et du retard d'une sonde balayable spectralement. Cet échantillon excité successivement sur E_1H_1 puis E_2H_2 montre l'effet prédominant de l'occupation des états par rapport aux autres mécanismes. L'expérience montre également que lorsque la pompe excite le matériau sur E_1H_1 , les états E_2H_2 étant inoccupés, les effets de renormalisation et d'écrantage deviennent perceptibles et se soldent par un effet prépondérant de la renormalisation (Red Shift).

L'évolution temporelle de ces mécanismes de saturation révèle que la dynamique de renormalisation-écrantage est essentiellement liée à la décroissance de la population de E_1H_1 . Ces expériences montrent que sous forte excitation, la modification des propriétés optiques d'un semiconducteur est liée non seulement aux modifications des populations de porteurs mais également à une restructuration des propriétés électroniques du matériau du fait de la modification des interactions entre porteurs.

4.4. EFFET DE LA RECOMBINAISON STIMULEE DANS LES MPQ

Dans les MPQ à faible température, un autre effet a pu être observé en relation avec la dynamique ultrarapide de la saturation d'absorption. Alors que les processus de relaxation interbande ont une durée caractéristique de l'ordre de la nanoseconde, il a été observé dans des échantillons dont les puits sont relativement étroits (75 Å), une restauration anormalement rapide de l'absorption, qui ne peut être attribuée qu'à un mécanisme différent de recombinaison des porteurs photoexcités [26]. Ainsi, fig.6, on peut voir que la densité de porteurs décroît d'un facteur 2 en 10 ps à 15 K alors qu'à température ambiante la recombinaison est beaucoup plus lente. Ceci a été attribué à un mécanisme de recombinaison stimulée, généré par l'amplification de l'émission spontanée guidée le long des puits, après des expériences résolues en temps, de luminescence sur la tranche de l'échantillon [26,27]. La dépendance en température est particulièrement importante entre 80 et 140 K (fig.7). Une telle dépendance ne peut être décrite dans le cadre des théories usuelles du gain dans les puits quantiques [28], ce qui accrédite l'hypothèse d'un renforcement excitonique de la recombinaison stimulée en-dessous de 120 K [29,30].

Fig.6: Evolution temporelle de la densité de porteurs photoexcités dans une structure multi-puits quantiques, pour deux valeurs de la température T_L [d'après réf.26].

Fig.7: Influence de la température de l'échantillon sur la régénération de l'absorption dans des puits quantiques de 75 Å d'épaisseur.

5. EXPERIENCES DE DETERMINATION DE L'INDICE NON LINEAIRE

La connaissance des indices de réfraction non linéaire dans les zones spectrales voisines du gap d'un semiconducteur est d'un intérêt majeur pour les dispositifs interférométriques, tels que les Fabry-Perot non linéaires. D'un point de vue théorique plusieurs tentatives de description ont été entreprises. L'une consiste à calculer à partir des mécanismes élémentaires d'occupation des états, d'écrantage etc., les contributions à l'indice de réfraction [31] au-dessous du gap. Une autre démarche consiste à calculer l'indice à partir de la connaissance du spectre d'absorption, par transformation de Kramers-Kronig (eq. 9). Les mesures expérimentales de l'absorption sont effectivement plus faciles que celles, directes, de l'indice de réfraction, qui requièrent des méthodes interférométriques de grande précision. Ainsi Koch et al. [32] comparent un modèle de calcul de l'absorption incluant l'interaction coulombienne, la renormalisation du gap et l'occupation des états, à des mesures expérimentales. Les

valeurs de l'indice, déduites par transformation de Kramer-Krönig de cet ensemble de données, sont comparées aux mesures et conduisent à des accords satisfaisants. Le désaccord étant principalement introduit par la limitation de l'intervalle d'intégration de la fréquence.

Peu d'expériences de mesure directe ont été réalisées : Miller et al. [10] déduisent l'indice de la mesure de la défocalisation d'un faisceau gaussien par un matériau non linéaire (InSb). On utilise également dans un dispositif interférométrique (Fabry-Pérot non linéaire) la mesure de la variation de l'intervalle spectral libre en fonction de l'intensité incidente. Le milieu actif est constitué d'un MPQ de GaAs (299 Å) [33]. Ces mesures sont comparées à la transformée de Kramers-Krönig d'un spectre d'absorption du même matériau. Un très bon accord est obtenu aux intensités faibles mais les désaccords croissent avec l'intensité.

6. EXPERIENCES DE BISTABILITE OPTIQUE

Le terme de bistabilité optique [1] sera pris dans son acception la plus large, c'est à dire que cette propriété ne sera pas conférée aux seuls dispositifs présentant une forte non linéarité.

Dans ces dispositifs, l'exploitation d'une non linéarité optique est conjuguée à un effet de contre-réaction positive, procuré par une cavité, un circuit électronique, voire le matériau lui-même par l'intermédiaire d'un mécanisme différent de celui qui génère la non linéarité. De par les propriétés non linéaires qui ont été décrites dans les chapitres précédents, les semiconducteurs III-V ont trouvé de nombreuses applications dans des dispositifs pour le traitement optique du signal: bistables tout-optiques, dispositifs hybrides ou portes logiques. De plus, la maîtrise des technologies d'intégration par microlithographie a ouvert, sur ces matériaux des perspectives de réalisation de microstructures où la faible consommation d'énergie pourra se conjuguer avec l'obtention d'un haut degré de parallélisme. En effet, la réduction de la taille des éléments entraîne une réduction des puissances de commande en rapport avec les volumes excités.

6.1 PORTE OPTIQUES A DEUX LONGUEURS D'ONDE

Avec ce type de dispositifs, on réalise l'opération de modulation tout-optique, qui ne requiert pas toutefois du matériau, une caractéristique à hystérésis. Le faisceau de contrôle excite le matériau, ce qui entraîne une modification de la réponse à un faisceau signal de longueur d'onde plus faible. La caractéristique de cette réponse peut être fortement non linéaire. Les mécanismes de saturation de l'absorption permettent de réaliser une telle opération, mais cet effet présente l'inconvénient de nécessiter une amplification du signal entre deux dispositifs en cascade.

Une idée intéressante a été proposée voici quelques années à l'université d'Arizona [34]. Elle consiste à utiliser une cavité Fabry-Perot non linéaire dans une configuration où les faisceaux de contrôle sont à une longueur d'onde de forte absorption, tandis que le faisceau signal, de plus basse longueur d'onde se situe dans la zone de transparence du matériau et au voisinage d'une résonance du Fabry-Perot. La non linéarité, dans ce dispositif est celle de l'indice de réfraction au voisinage du gap. Le faisceau de

contrôle induit donc un déplacement de la position spectrale du pic de résonance et commute le dispositif d'un état de forte réflexion vers un état de forte transmission. Cette configuration n'imposant pas de limitations à l'intensité du faisceau signal, elle permet une amplification de ce dernier. De plus, en mettant à profit la forme des pics de résonance, on réalise quelques fonctions logiques élémentaires: NOR, OR, AND, NAND ou XOR, par ajustement du déphasage initial de la cavité par rapport à la longueur d'onde de lecture. Le mode de fonctionnement le plus commode est de type impulsionnel avec des durées plus courtes que le temps de vie des états excités dans le matériau. Le taux de répétition doit tenir compte de la relaxation dans le matériau.

L'inconvénient majeur de ce mode d'opération est de nécessiter une conversion de longueur d'onde lorsque l'on souhaite les cascader. J. Collet et al. [35] remédient à cette difficulté en proposant un dispositif utilisant l'écrantage excitonique dans CdSe (mais applicable au III-V). Le faisceau de contrôle possède une fréquence double de celle du faisceau signal qui se situe juste en dessous de la bande interdite. La renormalisation du gap induite par le faisceau de contrôle provoque une augmentation brutale de l'absorption du faisceau signal avec un temps de montée inférieur à 1 ns. Ils réalisent ainsi une porte NOR, dont la cascabilité est assurée par le doublement sur un cristal de KDP du faisceau signal. Cette solution introduit néanmoins une étape supplémentaire dans le processus de mise en cascade.

6.2 DISPOSITIFS HYBRIDES

Les systèmes hybrides permettent d'obtenir une réponse optique bistable en associant un matériau optique non linéaire à un dispositif de contre-réaction opto-électronique. La première démonstration expérimentale a été effectuée par P.W. Smith et G.H. Turner [36] qui associaient un résonateur Fabry-Pérot avec contre-réaction par photodétecteur, un amplificateur et un cristal électrooptique intra-cavité. Des démonstrations ultérieures ont pu être effectuées, notamment au CNET [37], sur un modulateur au niobate de lithium à ondes guidées, avec de très faibles puissances électriques et optiques. Leurs faibles aptitudes à la miniaturisation en font néanmoins de mauvais candidats pour des dispositifs à fort parallélisme.

Beaucoup plus récemment, une étape significative a été franchie avec la réalisation de structures bistables appelées SEED (Self-Electrooptic Effect Device), utilisant l'effet d'électro-absorption dans les puits quantiques et réalisés pour la première fois à A.T. & T.-Bell [38] (voir le cours thématique de J.P. Pocholle). L'effet électro-absorptif se manifeste par un décalage spectral de la position des raies excitoniques sous l'effet d'un champ statique, et constitue l'un des ingrédients de la structure SEED. L'autre ingrédient, le photodétecteur, permet la modulation du champ électrique sous l'effet de la lumière, par l'incorporation de la structure MPQ dans une photodiode de type PIN. L'effet de contre-réaction est obtenu par l'insertion du dispositif dans un circuit alimenté par une tension continue. La bistabilité est observée au voisinage du centre de la raie excitonique. La puissance de fonctionnement et le temps de commutation dépendent de la constante RC du circuit et sont inversement proportionnels. Une valeur typique est de 5 mW pour une commutation de 2 μ s. Signalons enfin que ces dispositifs se prêtent bien à une intégration sous forme matricielle, puisque le fonctionnement simultané d'une matrice 6x6 de tels éléments a été rapporté récemment [39].

6.3 BISTABLES EMETTEURS

Les bistables émetteurs furent chronologiquement les premiers étudiés. Cette particularité tient au fait que ces systèmes utilisent des lasers à semiconducteurs et ont suivi de près le développement de ces derniers. Corollairement ils possèdent, par construction, l'avantage d'amplifier naturellement les signaux présentés à l'entrée. Plusieurs principes de fonctionnement ont été étudiés.

Certains systèmes combinent dans un même montage deux sections, l'une amplificatrice, alimentée au dessus du seuil d'oscillation laser, l'autre plus faiblement alimentée joue le rôle d'absorbant saturable. La caractéristique intensité-puissance de sortie présente un cycle d'hystérésis témoignant du caractère bistable de certaines régions de fonctionnement. La commutation peut être obtenue par voies optiques ou électriques ce qui facilite les interfaces et les conversions dans les systèmes hybrides. L'inconvénient majeur réside dans la nécessité de maintenir le courant d'injection dans la section absorbante à une valeur très proche du seuil [40] - typiquement 99% ou 99.9% - pour se situer dans les conditions d'observation de la bistabilité. Ceci limite sérieusement les applications pratiques d'un tel dispositif.

Une autre configuration émettrice consiste à utiliser ces lasers comme des étalons Fabry-Pérot dont le milieu actif présente du gain. La non linéarité dispersive est générée par la forte concentration de porteurs induite par la lumière. De très faibles puissances optique de commande sont alors suffisantes: quelques microns dans un laser InP/InGaAsP (i.e. 3 fJ en 1 ns) [41]. Cependant dans ce cas encore, l'ajustement des paramètres de contrôle est très critique.

Fig.8: Schéma de principe d'un dispositif à lasers couplés en intensité.

Une troisième solution proposée dès 1964 par Lasher et Fowler [42] a été démontrée au CNET avec des lasers à colorants [43] et développée sur lasers à semiconducteurs. Son principe (fig.8) réside dans le fait que le couplage mutuel de deux lasers sans condition particulière de résonance (i.e. dissipatif et non cohérent) induit, par inhibition réciproque, un comportement bistable.

L'originalité de ce système est de posséder un fonctionnement totalement symétrique qui se traduit par l'existence de deux entrées, deux sorties complémentaires, et des caractéristiques de basculement "ON" et "OFF" identiques. L'avantage que l'on peut tirer d'une telle configuration est qu'elle se satisfait du même signal de commutation quel que soit l'état activé. La distinction s'opère par l'adressage sur l'une ou l'autre composante laser. Ceci lui confère naturellement des propriétés d'inversion logique. Les temps de basculement peuvent être très courts (100ps) [44], mais les possibilités d'intégration sont sérieusement limitées par la taille minimale d'une diode laser et par les contraintes de dissipation thermique.

6.4 BISTABLES INTERFEROMETRIQUES A BASE DE FABRY-PEROT NON LINEAIRES.

Les éléments les plus prometteurs, à l'heure actuelle sont constitués d'une structure Fabry-Perot contenant un matériau à réponse non linéaire élevée. Cette approche se prête particulièrement à des extrapolations de traitement du signal en parallèle. Les mécanismes de la non linéarité sont de type dynamique et mettent en jeu la création d'états excités conduisant à des modifications de l'indice de

réfraction. Les matériaux III-V et en particulier ceux dérivés de l'Arseniure de Gallium présentent un grand intérêt aux longueurs d'onde voisines du gap. La non linéarité dispersive qui apparaît sur la queue d'Urbach de l'absorption est d'autant plus intéressante que l'absorption résiduelle y est faible, bien qu'elle soit à l'origine de la non linéarité. Une optimisation doit donc résulter d'un choix judicieux de la longueur d'onde de fonctionnement.

Fig.9: Caractéristiques de fonctionnement d'un microrésonateur Fabry-Pérot intégré. Un contraste de 2:1 est observé pour une puissance seuil de 4 mW.

Fig.10: Microphotographie d'une matrice 25X25 de microrésonateurs Fabry-Pérot intégrés de 5 micromètres de côté, réalisés par gravure ionique réactive.

Les premières observations de la bistabilité optique dans GaAs remontent à 1979 [45]. Une couche mince de ce matériau était "sandwichée" entre deux miroirs diélectriques. Le seuil de bistabilité était de l'ordre de 100 mW à la température de l'azote liquide. Des diminutions importantes de la puissance de seuil ont été observées en utilisant des structures comprenant des miroirs intégrés obtenus par l'alternance de couches quart d'onde de semiconducteurs III-V [46]. C'est la démarche qui est actuellement poursuivie au Laboratoire de Bagneux du CNET. La structure complète est réalisée par épitaxie organo-métallique sur substrat de GaAs. Elle comprend typiquement, une couche active de 2 μm de GaAs ou de MPQ GaAs/AlGaAs qu'encadrent deux miroirs multicouches GaAs/AlAs de 134 nm de période. L'épaisseur totale est d'environ 4 μm . Sa caractéristique d'intensité réfléchie en fonction de l'intensité incidente (fig.9) présente une hystérésis pour une longueur d'onde voisine de 880 nm (850 nm pour les MPQ). Pour un faisceau focalisé sur 6 μm , la structure constituée de GaAs présente un seuil de basculement de 4 mW [47]. Ces caractéristiques rendent le dispositif compatible, tant en puissance qu'en longueur d'onde, avec les faisceaux émis par les lasers à semiconducteurs.

La persistance, à température ambiante, des structures excitoniques dans les puits quantiques GaAs/GaAlAs a suscité un grand intérêt autour de ces matériaux. Il faut toutefois préciser que les excitons bidimensionnels des matériaux à puits quantiques ne sont pas aussi facilement dissociés par les porteurs de charge que les excitons tridimensionnels des matériaux massifs. Il en résulte une intensité de saturation un peu plus grande: environ 1 kW/cm² pour des puits quantiques de 100 Å de GaAs. Cette valeur est pratiquement la plus faible jamais observée dans un solide à température ambiante. En ce qui concerne les non linéarités dispersives utilisées dans les bistables interférométriques, l'intérêt des puits quantiques

a été l'objet d'une certaine controverse ces dernières années. Les mesures les plus récentes parues sur ce sujet montrent que la non linéarité dispersive des puits quantiques en GaAs de 76 Å d'épaisseur est environ 3 fois plus élevée que celle du matériau massif. Ceci est partiellement compensé par une absorption résiduelle plus importante. Les expériences menées à ce jour n'ont pas encore permis de trancher la question.

Les performances dynamiques de ces étalons participent de deux mécanismes distincts. La vitesse basculement "ON" est gouvernée par la durée de l'impulsion optique de déclenche et peut être très rapide (1 à 3 ns). En revanche, le temps de basculement "OFF" dépend principalement de la durée de vie des porteurs photoexcités, généralement de 10 à 20 ns. Une solution consiste à créer des centres de recombinaison non radiative, par bombardement protonique puis recuit, permettant d'abaisser cette durée de vie jusqu'à 150 ps. Une autre, réside dans l'exploitation des défauts de surface qui ont été générés lors de la gravure de microrésonateurs à partir de ces structures et qui permettent d'abaisser cette durée de vie jusqu'à 150 ps [48]. Cependant, la puissance de commande devient prohibitive et les effets de mémoire extrêmement courts. Ces dispositifs ne sont alors utilisables qu'en tant que portes logiques. Une possibilité plus attrayante consiste à diminuer la durée de vie au moment opportun en mettant en jeu la recombinaison stimulée, initiée par un faisceau externe supplémentaire [26].

Ces structures monolithiques offrent un accès optique perpendiculaire au substrat et il est parfaitement possible de définir par photolithographie une matrice bidimensionnelle de tels éléments (fig. 10). Chacun de ces éléments de quelques microns de côté, possède la structure d'un microrésonateur et l'ensemble peut fonctionner en parallèle. La réduction des dimensions latérales, hormis le fait qu'elle introduit un facteur d'échelle dans les énergies mises en jeu, présente deux avantages supplémentaires [46]: elle permet d'une part le confinement électrique des porteurs et à ce titre allonge leur durée de vie dans la zone excitée; d'autre part elle réalise les conditions d'un véritable guidage de la lumière. Ces deux conditions favorisent un abaissement substantiel des puissances de seuil.

7. CONCLUSION.

Ce survol des mécanismes des non linéarités optiques dans les semiconducteurs s'est opéré dans le cadre général de la fonction de réponse optique. Différentes approches ont été dégagées dans le domaine temporel ou spectral selon les valeurs relatives des temps caractéristiques du matériau excité et de l'impulsion optique, par la description des différents régimes transitoires de l'excitation.

Nous avons pu identifier, sur la base de résultats expérimentaux, différents mécanismes participant à la saturation de l'absorption et responsables de sa dynamique. En particulier, aux limites actuelles de la résolution temporelle, l'étude de ces phénomènes permet d'accéder à la cinétique précoce des porteurs photoexcités.

Nous avons également fait un rapide tour d'horizon des principales méthodes de détermination de l'indice non linéaire en bordure de bande interdite.

Finalement, nous avons pu apprécier les différents partis et les avantages potentiels que l'on pouvait tirer de l'exploitation de ces non linéarités dynamiques, en matière de traitement du signal, par le biais de dispositifs utilisant la même famille de matériaux.

Au delà des applications particulières, il semble aujourd'hui que la réalisation de matrices de portes logiques, à haut degré de parallélisme ouvre des perspectives fort intéressantes pour la commutation directe de faisceaux lumineux.

REMERCIEMENTS.

Une grande partie des travaux mentionnés dans ce cours ont été réalisés au CNET - Laboratoire de Bagneux ou en collaboration avec le groupe d'Optique Non Linéaire de l'ENSTA. Je voudrais remercier tous mes collaborateurs et tout particulièrement J.L. Oudar et A. Levenson pour des discussions approfondies qui ont éclairé ma compréhension du sujet.

REFERENCES

1. H. M. Gibbs, "Optical bistability: Controlling light by light", Academic, New-York (1985).
2. S. D. Smith, "Optical bistability, photonic logic, and optical computation", *Appl. Opt.* **25**, 1550 (1986).
3. R. Dingle, "Confined carrier quantum states in ultrathin semiconductor heterostructures", in *Festkörperprobleme XV*, p. 21, H. J. Queisser ed., Pergamon/Vieweg Braunschweig (1975).
4. L. Esaki, "The evolution of quantum structures", *J. Phys. (Paris)*, **C 5**, 1 (1987).
5. D. S. Chemla and D. A. B. Miller, "Room-temperature excitonic nonlinear optical effects in semiconductor quantum-well structures", *JOSA B* **2**, 1155 (1985).
6. J. L. Oudar, "Transient nonlinear optical effects in semiconductors", in "Nonlinear optics: materials and devices", p. 91, C. Flytzanis and J. L. Oudar, eds., Springer, Berlin (1986).
7. R. K. Jain and M. B. Klein in "Optical phase conjugation" p.307, R. A. Fisher, ed., Academic, New-york (1982).
8. J. Shah, R. F. Leheny and W. Wiegmann, *Phys. Rev. B* **16**, 1577 (1977).
9. J. Jerphagnon, S. K. Kurtz and J. L. Oudar, "Nonlinear dielectric susceptibilities", *Landolt-Börnstein, New Series, Group III*, **18**, 456 (1984).
10. D. A. B. Miller, C. T. Seaton, M. E. Prise, and S. D. Smith, "Band-gap resonant nonlinear refraction in III-V semiconductors", *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 197 (1981).
11. B. S. Wherrett, "Semiconductor optical bistability: towards the optical computer", in "Nonlinear optics: materials and devices", p. 180, C. Flytzanis and J. L. Oudar, eds., Springer, Berlin (1986).
12. P. N. Butcher, "Nonlinear optical phenomena", Columbus (1965).
13. A. Maruani, J. L. Oudar, E. Batifol and D. S. Chemla, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1372 (1978).

14. L. Allen and J. H. Eberly, "Optical resonance and two-level atoms" Wiley, New-York (1975).
15. R.K. Jain, *Optical Engineering*, 21, 199 (1982).
16. G. Harbeke, in "Optical Properties of Solids", pp.28-43, edited by F. Abelès, North-Holland (1972).
17. B.G. Levich, "Theoretical Physics", Vol. 2, North-Holland (Amsterdam) (1971).
18. J. L. Oudar, A. Migus, D. Hulin, G. Grillon, J. Etchepare and A. Antonetti, *Phys. Rev. Lett.* 53, 384 (1984).
19. J. L. Oudar, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti and F. Alexandre, *Phys. Rev. Lett.* 55, 2074 (1985).
20. W. H. Knox, C. Hirlimann, D. A. B. Miller, J. Shah, D. S. Chemla and C. V. Shank, *Phys. Rev. Lett.* 56, 1191 (1986).
21. J. L. Oudar, J. Dubard, F. Alexandre, D. Hulin, A. Migus and A. Antonetti, *J. Phys. (Paris)*, C5, 511 (1987).
22. T. M. Rice, in *Solid State Physics*, 32, pp. 1-86, edited by H. Ehrenreich, F. Seitz, and D. Turnbull, Academic, New York (1977).
23. H. Haug and S. Schmitt-Rink, *Prog. in Quantum Electronics* 9, 3 (1984).
24. R. Zimmermann, *Phys. Status Solidi B* 146, 371 (1988).
25. J.A. Levenson, I. Abram, R. Raj, G. Dolique, J.L. Oudar et F. Alexandre *Phys. Rev. B* 38, 13443 (1988).
26. J. Dubard, J. L. Oudar, F. Alexandre, D. Hulin and A. Orszag, *Appl. Phys. Lett.*, 50, 821 (1987); erratum *ibid.* 50, 1696 (1987).
27. D. Hulin, M. Joffre, A. Migus, J. L. Oudar, J. Dubard and F. Alexandre, *J. Phys. (Paris)*, C5, 267 (1987).
28. N. K. Dutta, *Electron. Lett.* 18, 451 (1982).
29. S. Schmitt-Rink, C. Ell and H. Haug, *Phys. Rev. B* 33, 1183 (1986).
30. J. L. Oudar and J. A. Levenson, *XVIth Internat. Conf. on Quantum Electron.*, paper ThB7, Tokyo (July 1988).
31. B.S. Wherrett et N.A. Higgins, *Proc. R. Soc. Lond. A* 379, 67-90 (1982).
32. S.W. Koch, N. Peyghambarian et H.M. Gibbs, *J. Appl. Phys.*, 63, R1 (1987).
33. Y.H. Lee, A. Chavez-Pirson, B.K. Rhee, H.M. Gibbs, A.C. Gossard et W. Wiegmann, *Appl. Phys. Lett.*, 49, 1505 (1986).
34. J.L. Jewell, M.C. Rushford et H.M. Gibbs, *Appl. Phys. Lett.*, 44, 172 (1984).
35. J. Collet et T. Amand, *Revue Phys. Appl.*, 22, 1281 (1987).
36. P.W. Smith et E.H. Turner, *Appl. Phys. Lett.*, 30, 280 (1977).
37. A. Carengo et L. Ménigaux, *Appl. Phys. Lett.*, 37, 880 (1980).
38. D.A.B. Miller, D.S. Chemla, T.C. Damen et al., *Appl. Phys. Lett.*, 45, 13 (1984).
39. G. Livescu, D.A.B. Miller, J.E. Henri, A.C. Gossard et J.H. English, *Opt. Lett.*, vol. 13, 4, 297 (1988).
40. H. Kawagushi, *Appl. Phys. Lett.*, 41, 702 (1982).
41. M. Dagenais and W. F. Sharfin, *Appl. Phys. Lett.* 46, 819 (1985).
42. G.J. Lasher et A.B. Fowler, *IBM J. of Res. and dev.*, 8, 471, (1964)
43. J.L. Oudar et R. Kuszelewicz, *Appl. Phys. Lett.*, 45, 831 (1984).
44. R. Kuszelewicz et J.L. Oudar, *IEEE J. of Quant. Electron.* QE-23, 411 (1987).

- 45. H.M. Gibbs, S.L. Mc Call, T.N.C. Venkatesan, A.C. Gossard, A. Passner et W. Wiegmann, *Appl. Phys. Lett.*, 35, 451 (1979).
- 46. R. Kuszelewicz, J.L. Oudar, R. Azoulay, J.C. Michel et J. Brandon, *J. de Physique (Paris), Colloque C2*, 193 (1988).
- 47. R. Kuszelewicz, J.L. Oudar, J.C. Michel et R. Azoulay, *Appl. Phys. Lett.*, 53, 2138 (1988)
- 48. J.L. Jewell, A. Scherer, S.L. Mc Call, A.C. Gossard et J.H. English, *Appl. Phys. Lett.*, 51, 94 (1987).