



HAL
open science

Étude des propriétés optiques et dynamiques des boîtes quantiques InAsP/InP(001); Application à la réalisation de sources de photons uniques et lasers à cristaux photoniques émettant à $1.5 \mu\text{m}$

Richard Hostein

► **To cite this version:**

Richard Hostein. Étude des propriétés optiques et dynamiques des boîtes quantiques InAsP/InP(001); Application à la réalisation de sources de photons uniques et lasers à cristaux photoniques émettant à $1.5 \mu\text{m}$. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2009. Français. NNT: . tel-00439577v2

HAL Id: tel-00439577

<https://theses.hal.science/tel-00439577v2>

Submitted on 8 Dec 2009

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

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

**THESE DE DOCTORAT
de l'Université Paris VI**

Spécialité : La physique de la particule au solide - Ecole Doctorale 389

pour l'obtention du grade de Docteur de l'Université Paris VI

présentée et soutenue publiquement par :

Richard HOSTEIN

le 12 Novembre 2009

**Étude des propriétés optiques et dynamiques des
boîtes quantiques InAsP/InP [001]
Application à la réalisation de sources de photons
uniques et lasers à cristaux photoniques émettant à
1.5 μm**

devant le jury composé de :

Yves Guldner	Président
Jean-Philippe Poizat	Rapporteur
Christian Seassal	Rapporteur
Jean-François Roch	Examineur
Alexios Beveratos	Encadrant (Invité)
Izo Abram	Directeur de thèse

Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier Jean-Philippe Poizat et Christian Seassal d'avoir accepté de rapporter ce mémoire. Je remercie également Yves Guldner et Jean-François Roch pour m'avoir fait l'honneur de faire partie de mon jury. Je remercie également mon directeur de thèse Izo Abram pour avoir supervisé ce travail.

Cette thèse s'est déroulée au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures à Marcoussis et je remercie Jean-Yves Marzin de m'y avoir accueilli. Je remercie également le comité C'Nano Ile de France pour le financement de ma bourse de thèse.

J'ai été accueilli au sein de l'équipe 'Optique Quantique des Semiconducteurs' par Isabelle Robert-Philip et Alexios Beveratos. Je remercie chaleureusement Alexios pour m'avoir encadré et pour avoir suivi mon travail pendant ces trois ans. Tu n'as jamais manqué d'idées du point de vue expérimental ainsi que dans l'interprétation des mesures, même dans les pires moments. Travailler avec toi fut extrêmement enrichissant, professionnellement et humainement. Il est difficile de résumer ainsi trois ans de travail avec toi, et j'espère te rencontrer un jour en final du concours de celui qui aligne le plus rapidement une manip d'optique (de la main gauche)...j'aurais ma revanche ! Merci également à Isabelle R. de m'avoir fait confiance et de m'avoir accueilli en stage de Master. Tu as ensuite gardé un œil sur mes travaux tout au long de ma thèse, et tu m'as apporté une aide précieuse lorsque j'étais à cours d'interprétation ainsi que durant la rédaction de ce mémoire. Merci également pour toutes les discussions extrascientifiques au labo et en dehors.

S'il y a bien une chose dont je n'ai jamais manqué pendant ces trois ans, ce sont les échantillons. Merci à toi Isabelle Sagnes d'avoir fait en sorte que jamais je ne me sois retrouvé au chômage technique ! Travailler avec toi fut une expérience très enrichissante et encore une fois difficile à résumer en trois lignes. Ton dynamisme, tes connaissances en épitaxie, ta curiosité (et ta bonne humeur !) ont énormément apportés à ce mémoire. Je me souviendrai d'une question qui revenait de temps en temps : 'Bon alors, c'est des boîtes ou c'est pas des boîtes... ?' Je pense que la réponse n'est plus très loin !

Je remercie chaleureusement tous mes compagnons du bureau D2-101 (et les membres du bureau voisin pour leurs blagues hors du commun...). Merci à Stéphane Laurent de m'avoir introduit dans le monde de la μ -PL durant mon stage. Merci à toi Adrien Michon pour tes blagues folles, ton humeur douteux, et bien sûr pour tes échantillons de BQs, surtout le 220 ! J'espère continuer avec toi les ZooKeeper Contest. Merci également à toi Rémy Braive. Trois ans dans le même bureau à supporter la semoule et autres ! Ca fait

beaucoup d'histoires à raconter. Merci pour ta présence pendant les nuits blanches ainsi que pour tes talents de gravure qui ont permis les études sur les nanolasers. Merci également à Matthieu Larqué d'avoir essayé de m'apprendre Labview (un jour, je vais y arriver), d'avoir développé le pilotage de la manip et d'avoir effectué les simulations FDTD. Merci également à tous les stagiaires et nouveaux thésards, Léonard, Alexandre, Bruno (que le Moria spirit soit avec toi!), et bien sur David Elvira. Merci pour ta motivation, ta curiosité scientifique et ta bonne humeur. Tu m'as beaucoup apporté sur le plan professionnel et personnel. Quand tu veux on retravaille ensemble, et bon courage pour ta thèse!

Je remercie également toutes les personnes avec qui j'ai pu travailler au quotidien. Merci à Grégoire Beaudoin à qui je dois également les fameux échantillons de boîtes quantiques (et pour les nouveaux albums électro) et Noëlle Gogneau pour les échantillons nanoépitaxiés. Merci également à Luc le Graciet pour la partie lithographie électronique. Merci à Gilles Patriarche et Ludovic Largeau pour les caractérisations TEM. Merci également à Aristide Lemaître pour son aide sur le microbillage et merci à Paul Voisin, Pascale Senellart et Jean-Yves Marzin pour les discussions scientifiques.

Je tiens à remercier Gilbert Chanconie et Laurent Merzeau pour les travaux de mécanique qui furent omniprésents lors de l'installation de la manip, ainsi que Patrick Hisope pour la gestion des bidons d'hélium.

Je remercie également toutes les personnes du laboratoire que je n'ai pas encore mentionnées : Robert K., Sylvain, Tiffany, Nadia, Jean-Marie et Xavier pour tous ces repas endiablés, Alejandro pour toutes les discussions amicales, Fabrice, Ariel, et les autres que j'oublie...

Un gros BIG UP à la colloc! Dr. Gula (le John), Laurent, Ben, Ombi, François, Claire, Harold, Rémy (sans cheveux...), Ane, Le Gwenn, et les nouveaux. Merci à vous d'avoir fait semblant de comprendre toutes mes histoires de photons! Merci pour toutes ces années passées ensemble. Vive la Maison du Bonheur!

Je remercie tous mes amis et membre du groupe 4, et il y en a...Canard, Buzz, Babar, La Pomme, Matoy, Brice, le Snake, Thioum, Del, Lyly, Doro, David (et oui tu es là aussi!) et tous les autres. Merci énormément pour votre soutien! **G4 Forever**.

Un grand merci à toute ma famille pour m'avoir soutenu et permis de pouvoir faire ces études. Je vous dois énormément pour cela... Merci également d'avoir organisé le pot final, je pense que tout le monde a apprécié! Un gros bisou à Julien et Lorène.

Enfin, mes derniers mots vont à Maia. Un grand merci pour tout. Ce n'était pas facile de me supporter pendant la rédaction... Merci pour tout ce que tu m'apportes au quotidien.

A Edmond Diemer

Résumé

Résumé Le siècle dernier a vu l'accomplissement de la mécanique quantique, du traitement de l'information et de l'optique intégrée. Aujourd'hui, ces trois domaines se rencontrent pour donner naissance à l'optique intégrée pour les communications quantiques. Un des enjeux aujourd'hui dans ce domaine est le développement de sources de photons uniques et de lasers compacts aux longueurs d'onde des télécommunications. Les émetteurs étudiés dans ce travail de thèse sont des boîtes quantiques InAsP/InP [001] obtenues par Epitaxie en Phase Vapeur aux OrganoMétalliques (EPVOM). Il a été démontré, par l'intermédiaire de mesures spectrales et des mesures de durée de vie, que ces émetteurs présentent les caractéristiques nécessaires en vue des applications visées. Plus particulièrement, la mise en évidence expérimentale d'un dégroupement de photons, à partir d'une boîte unique, valide la possibilité de réaliser une source de photons uniques. En parallèle, des études sur les lasers à cristaux photoniques de faible volume modal et fort facteur de qualité, utilisant les mêmes boîtes quantiques à température ambiante, ont montré des propriétés originales, particulièrement sur la physique au niveau du seuil laser. La différence de comportement au niveau du seuil, par rapport aux lasers conventionnels, s'explique dans nos structures par le fort taux de couplage de l'émission spontanée dans le mode laser.

Mots clés Boîtes quantiques InAsP/InP, Semiconducteur III/V, Spectroscopie, Source de photons uniques, Cristal photonique, Laser

Optical properties and time-resolved photoluminescence of InAsP/InP [001] quantum dots; Application to the realization of single photon sources and photonic cristal lasers emitting at telecommunication wavelength.

Abstract The last century saw the advent of quantum mechanics, information processing and integrated optics. These fields lead to the integrated optics for quantum communication. One of the challenges is the development of single photon sources and compact lasers operating at telecommunication wavelength, for quantum cryptography and quantum information applications. In this work, we present an optical study of InAsP/InP [001] quantum dots, obtained by MetalOrganic Vapour Phase Epitaxy (MOVPE). It has been demonstrated, through spectral measurements and time-resolved photoluminescence experiments, that these quantum dots present the characteristics necessary for the applications mentioned. Specifically, we have performed measurements with single dots and we clearly

observed a photon antibunching. This quantum behaviour, validates the feasibility of a single photons source at telecommunication wavelength. In parallel, studies on photonic crystal lasers, with low modal volume and high quality factor, using the same quantum dots at room temperature, showed original properties, specially near the threshold region of the lasing transition. The difference between conventionnal lasers and our structures is explained with the high spontaneous emission coupling through the cavity mode.

Key words InAsP/InP quantum dots, III/V Semiconductor, Spectroscopy, Single photon source, Photonic crystal, Laser

Table des matières

Remerciements	3
Résumé	7
Introduction	13
1 Contexte général	17
1.1 Introduction à la cryptographie quantique	17
1.1.1 Principe de la cryptographie	17
1.1.2 Cryptographie quantique	19
1.2 Source de photon unique efficace pour des applications à la cryptographie quantique	22
1.2.1 Quelle source/protocole pour quelle utilisation ?	22
1.2.2 Les critères nécessaires pour une source de photons uniques	24
1.2.3 Catalogue des sources existantes	25
1.3 Nanolasers à émission spontanée pour la nanophotonique	31
1.3.1 Stratégie pour augmenter le facteur β	31
1.3.2 Milieu à gain et type de cavité	32
1.3.3 Catalogue et résumé	33
1.3.4 Emission de photons uniques par une boîte quantique	34
1.3.5 Epitaxie des boîtes quantiques InAs(P)/InP	37
1.4 Conclusion	41
2 Croissance des boîtes InAsP/InP par EPVOM ; Dispositif expérimental	43
2.1 Etudes des propriétés optiques et structurales des boîtes : Outils d'analyse, dispositifs expérimentaux	43
2.1.1 Microscopie électronique en transmission (TEM)	44
2.1.2 Microscope à transformée de Fourier dans l'infra-rouge (FTIR)	44
2.1.3 Expérience de micro-photoluminescence résolue en temps : Dispositif expérimental	45
2.2 Croissance des boîtes quantiques InAsP/InP	48
2.2.1 Mécanismes de croissance	48
2.2.2 Effet des conditions de croissance et d'encapsulation sur la lumines- cence des boîtes	49
2.2.3 Propriétés structurales des boîtes quantiques ; analyse TEM	52

2.2.4	Différences et investigation en cours sur les échantillons de nouvelle génération	55
2.3	Evolution de la photoluminescence sur un ensemble de boîtes quantiques . .	57
2.3.1	Evolution spectrale en fonction de la température	57
2.3.2	Durée de vie et force oscillateur	60
2.3.3	Durée de vie en fonction de la longueur d'onde d'émission. Force d'oscillateur	69
2.3.4	Comportement des échantillons obtenus après maintenance	71
2.4	Conclusion	72
3	Spectroscopie sur boîtes uniques	75
3.1	Description des échantillons de référence ; Fabrication des mésas	75
3.1.1	Choix de l'échantillon	75
3.1.2	Fabrication des mésas	78
3.1.3	Zoologie des spectres sur mésas	78
3.2	Etudes spectrales	84
3.2.1	Présentation des modèles	85
3.2.2	Etude en fonction de la température	87
3.2.3	Etude en fonction de la puissance de pompe	93
3.3	Etude de la dynamique d'émission	97
3.3.1	Dynamique d'émission dans une boîte et un puits quantique	97
3.3.2	Evolution des durées de vie en fonction de la puissance d'excitation . .	99
3.3.3	Evolution des durées de vie en fonction de la température	105
3.3.4	Conclusions	106
3.4	Mesures de corrélations sur boîte quantique unique	107
3.4.1	Fonction d'autocorrélation, quelques rappels	107
3.4.2	Montage d'Hanbury Brown et Twiss ; Mesure de corrélation en régime d'excitation impulsif	109
3.4.3	Résultats expérimentaux	111
3.5	Conclusion	112
4	Application à la réalisation d'une source de photon unique à 1.55 μm	115
4.1	Rappel sur les effets d'électrodynamique quantique en cavité en régime de couplage faible	116
4.1.1	Emission spontanée en espace libre : Approche classique	116
4.1.2	Emission spontanée en espace libre : Approche quantique	116
4.1.3	Emission spontanée en cavité, effet Purcell	117
4.1.4	Taux de couplage au mode de la cavité : facteur β	119
4.1.5	Limites du régime en couplage faible	120
4.2	Vers une mise en œuvre d'effets d'Electrodynamique Quantique en cavité : réalisation de microcavités optiques	121
4.2.1	Confinement de la lumière	121
4.2.2	Structure de bande interdite dans un cristal photonique	122
4.2.3	Confinement mixte	127
4.2.4	Etape de fabrication	129

4.2.5	Caratérisation optique des cavités pour la réalisation d'une source de photon unique	130
4.3	Vers le contrôle de la localisation spectrale et spatiale des boîtes quantiques.	135
4.3.1	Stratégies pour l'accord spatial et spectral	135
4.3.2	Boîtes nano-épitaxiées InAs/InP	137
4.3.3	Premiers résultats optiques et persepectives pour la méthode de croissance	138
4.3.4	Vers une boîte localisée en cavité	140
4.4	Conclusion	141
5	Application à la réalisation de 'NanoLaser' à boîtes quantiques émettant à 1.55 μm	143
5.1	Lasers à émission spontanée contrôlée	143
5.1.1	Equations d'évolution en présence d'un contrôle de l'émission spontanée	144
5.1.2	Impact du couplage de l'émission spontanée au mode laser sur les caractérisques de la source	146
5.1.3	Impact sur le seuil laser	146
5.2	La cavité laser	150
5.2.1	Cavité à double hétérostructure	150
5.2.2	Paramètres du cristal photonique et exemple de spectres	151
5.3	Facteur de qualité des cavités à double-hétérostructure	152
5.3.1	Facteur de qualité de la cavité froide et largeur de raie à mi-hauteur	152
5.3.2	Principe de la spectroscopie par transformée de Fourier	153
5.3.3	Mesures expérimentales	154
5.4	Mesure de l'effet Purcell à 300 K	156
5.4.1	Facteur de Purcell et largeur homogène des émetteurs	156
5.4.2	Mesure du taux d'accélération d'émission spontanée	158
5.5	Mise en évidence d'effet laser à 300 K	160
5.5.1	Classification des lasers	160
5.5.2	Courbe "L-L" ; effets thermiques et normalisation	163
5.5.3	Mesures de corrélations et estimation de β	167
5.5.4	Interprétation des résultats, modélisation de la transition laser	170
5.5.5	Bilan sur l'étude des caractéristiques de l'émission laser	170
5.6	Conclusion et perspectives	171
	Conclusions et perspectives	175
	Publications et bibliographie	179

Introduction

Les boîtes quantiques constituent un sujet de recherche très actif depuis le début des années 1980 [1]. Dans ces objets nanométriques, le fort confinement tridimensionnel des porteurs entraîne des propriétés physiques originales comparées aux puits quantiques (confinement unidimensionnel des porteurs). Les boîtes quantiques ont notamment été proposées dans le but d'améliorer les performances des lasers à puits quantiques déjà existants [2]. Dans ces travaux, les auteurs prédisent des courants de seuil plus faibles, ainsi qu'une faible dépendance à la température de ce courant de seuil, comparée aux lasers à puits quantiques. Depuis ces prédictions, de nombreuses réalisations de lasers à boîtes quantiques ont été reportées (voir par exemple [3] pour la première réalisation d'un laser à boîtes quantiques modulé à 10 GHz). La maîtrise de la croissance des boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs par Epitaxie par Jet Moléculaire a fait de ces boîtes quantiques émettant vers $1\ \mu\text{m}$ un objet de choix dans les laboratoires.

Parallèlement à ces développements, avec l'observation des premiers effets du confinement tridimensionnel (tels que la séparation nette des niveaux d'énergie [4], l'émission quasi-monochromatique à basse température et des effets coulombiens marqués), l'idée d'utiliser une boîte quantique comme atome artificiel est apparue. Les expériences de Kimble *et al.* [5] avaient déjà démontré la possibilité de réaliser une source de photons uniques avec un atome isolé. Dans le domaine des semi-conducteurs, les premières expériences de dégroupement de photons ont eu lieu en 2001 avec les travaux de C. Santori *et al.* [6]. Une telle source est capable d'émettre à la demande des impulsions contenant un et un seul photon. En cryptographie quantique, ce type de source peut servir de base à des protocoles de communication garantissant une confidentialité parfaite [7].

Pour des applications à la cryptographie quantique et en optoélectronique, et pour pouvoir utiliser le réseau existant de fibre optique, il est nécessaire d'avoir des sources de photons uniques ou lasers émettant à $1.55\ \mu\text{m}$, longueur d'onde correspondant au minimum d'absorption des fibres optiques utilisées dans les télécommunications. Pour atteindre ces longueurs d'onde, plusieurs équipes se sont mis à étudier des boîtes quantiques InAs/InP, pouvant émettre jusqu'à $2\ \mu\text{m}$.

L'objet de ce travail est d'étudier les propriétés optiques et dynamiques de boîtes uniques d'InAs/InP, obtenue par Epitaxie en Phase Vapeur aux OrganoMétalliques (EP-VOM). Au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, l'étude de ce système a com-

mencé depuis 2004 avec les travaux d'I. Sagnes, G. Saint-Girons et A. Michon [8]. Au début de ma thèse, l'équipe du laboratoire possédait déjà la maîtrise de la croissance des boîtes et la photoluminescence des boîtes pouvait être accordée à $1.55 \mu\text{m}$. Cependant, il était nécessaire de développer un banc de mesure adapté à l'étude de boîtes individuelles en vue de la réalisation d'une source de photons uniques à $1.55 \mu\text{m}$. Mon travail de départ a constitué à monter cette expérience de micro-photoluminescence et d'étudier les propriétés optiques des boîtes à l'échelle de l'émetteur unique. Au fur et à mesure de ce travail de recherche, les propriétés de luminescence des ensembles de boîtes quantiques m'ont amené à envisager d'utiliser ces objets comme milieu à gain pour la réalisation de lasers à base de microcavité à cristaux photoniques.

Le premier chapitre de ce manuscrit sera consacré à la présentation du contexte général de ce travail de recherche. Nous introduirons pour cela les concepts de la cryptographie quantique et de source de photons uniques. Nous aborderons également l'intérêt de la réalisation de lasers à fort taux de couplage de l'émission spontanée au mode laser.

Le deuxième chapitre sera consacré à la présentation plus détaillée de la croissance des boîtes quantiques InAs/InP. Nous présenterons également les dispositifs qui nous permettent de caractériser ces objets quantiques. Nous finirons ce chapitre par une analyse détaillée des propriétés d'un ensemble de boîtes quantiques : propriétés structurales, optiques et dynamiques.

Dans le chapitre 3, nous analyserons cette fois les propriétés des boîtes quantiques à l'échelle unique. Nous mettrons en évidence expérimentalement un phénomène de cascade radiative ainsi qu'un dégroupement de photon sur une boîte unique à $1.3 \mu\text{m}$ à 4 K.

Dans le chapitre suivant, nous aborderons les effets d'électrodynamique quantique en cavité. En effet, pour réaliser une source de photon unique efficace, outre l'émetteur en lui-même, il faut pouvoir améliorer la dynamique d'émission et rediriger un maximum de la lumière émise dans un mode privilégié de collection. Ces deux effets sont possibles en insérant les émetteurs dans une cavité à cristal photonique. Après une présentation du cadre théorique, nous aborderons les stratégies utilisées au laboratoire pour réaliser de telles cavités.

Le chapitre 4 sera consacré aux lasers à boîtes quantiques à fort couplage de l'émission spontanée. Nous présenterons les motivations pour la réalisation de tels lasers ainsi que leurs propriétés physiques attendues. Enfin, nous présenterons des résultats expérimentaux sur la démonstration d'effet laser à $1.5 \mu\text{m}$ à température ambiante. Nous discuterons de la physique particulière du passage du seuil, grâce notamment à des mesures de corrélations de photons.

En conclusion, nous dresserons le bilan de cette étude et aborderons les applications futures possibles.

Chapitre 1

Contexte général

1.1 Introduction à la cryptographie quantique

Dans un premier temps, nous allons introduire les deux applications principales étudiées pendant ce travail de thèse. Ces deux applications reposent sur l'utilisation de boîtes quantiques émettant à $1.55 \mu\text{m}$. La première est la réalisation de sources de photons uniques pour une utilisation en cryptographie quantique. La seconde est la réalisation de nanolasers non-conventionnels qui présentent des propriétés originales comme la possibilité d'obtenir de fortes bandes passantes de modulation directe (jusqu'à 10 GHz [9]). Nous ferons ensuite un rappel sur les processus d'émission dans les boîtes quantiques semi-conductrices. Nous montrerons qu'elles peuvent émettre de façon déterministe des photons un par un. Nous verrons également que les boîtes sur InP présentent la caractéristique d'être peu sensibles à des défauts non radiatifs à haute température. Elles peuvent donc être utilisées comme milieu à gain dans des microstructures pour réaliser des lasers émettant à $1.55 \mu\text{m}$ à température ambiante.

1.1.1 Principe de la cryptographie



FIG. 1.1 – Extrait de la bande dessinée 'Le chat' de Philippe Geluck

Depuis environ 3000 ans, les hommes ont cherché à coder des informations afin qu'elles ne puissent être lues que par certaines personnes bien identifiées. C'est notamment

dans le domaine militaire que les manières de coder les plus diverses ont été inventées. On appelle la cryptographie l'art de transformer un message et de le rendre incompréhensible aux yeux d'un espion et lisible seulement par son interlocuteur. Aujourd'hui, les besoins en cryptographie sont devenus énormes, à la fois dans le domaine militaire mais également pour sécuriser les données numériques (économie, Internet et paiement électronique...).

Les techniques ont beaucoup évolué, passant des moyens rudimentaires pour masquer physiquement l'écriture¹, à des systèmes plus ou moins complexes de codage mathématique. Mais dans tous les cas, le schéma reste le même : Une personne (que l'on appellera Alice²) décide d'envoyer un message à Bob. Pour cela, elle code son message à l'aide d'une clé. Le message est donc codé et peut être envoyé par un canal quelconque à Bob. Ce dernier possède également une clé qui va lui permettre de décoder le message et d'obtenir finalement le message lisible d'origine.

Ce protocole est basé sur l'échange de la clé. En effet, si un espion (Eve) s'empare de la clé, il peut alors décoder le message. L'échange de cette clé représente la faille de sécurité. Dans les systèmes de cryptographie, on identifie deux grandes catégories :

- Les systèmes à clé privé symétrique ;
- Les systèmes à clé publique asymétrique.

Dans le premier cas, on parle de clés symétriques car la clé de chiffrement et la clé de déchiffrement sont identiques. Cette technique pose deux problèmes. Premièrement, il faut trouver un moyen sûr de transmettre les clés, et de plus, si le réseau s'étend à plus de deux personnes, le nombre de clé à échanger devient trop important. Cependant, il faut noter que ce système peut se révéler très sûr voire même 100% fiable si la clé est aussi longue que le message et si elle est à usage unique (code de Vernam).

Dans les systèmes à clé publique, le but est de rendre sûr le transfert de clé. Imaginons que Bob crée une clé privée et une clé publique lui correspondant. Ces clés publiques peuvent être envoyées à différentes personnes, notamment Alice, le tout par un canal classique. Ce dernier peut alors coder son message avec la clé publique et l'envoyer à Alice qui sera la seule à pouvoir le décoder avec sa propre clé privée. Dès lors, si le message était lui-même une clé, Alice et Bob se retrouvent avec deux clés que personne à aucun moment n'a pu déchiffrer. Le reste de la communication cryptée peut se faire de manière symétrique.

Le code RSA inventé en 1977 par R. Rivest, A. Shamir et L. Adleman est un code à clé publique très largement répandu dans les réseaux de télécommunications actuelles. Il est basé sur la multiplication et la factorisation en nombres premiers de grands nombres, supérieurs à 150 chiffres. Voici en quelques lignes les principales étapes du codage en RSA :

- Bob choisit deux nombres premiers p et q ;
- Il calcule ensuite le nombre $n = p \times q$ et cherche ensuite un nombre e aléatoire

¹Durant l'antiquité, l'écriture était masquée par l'utilisation d'une encre élaborée avec du jus de citron

²Dans la communauté des cryptographes, le choix d'Alice et Bob avec Eve pour espion reste une constante...

qui est premier avec $(p-1) \times (q-1)$. Le couple (n, e) constitue la clé publique.

- Il calcule ensuite le nombre d tel que $e \times d = 1 \pmod{(p-1) \times (q-1)}$. Il garde ensuite ce couple (n, d) qui constitue sa clé privée.
- Alice qui a reçue la clé publique peut encoder son message (m) en appliquant la formule $c = m^e \pmod{n}$.
- Bob reçoit ce message codé et applique alors sa clé privée : $Bob(c) = c^d \pmod{n} = m^{e \times d} \pmod{n} = m \pmod{n} = m$.

Tout le monde peut utiliser la clé publique pour crypter un message. Par exemple, Bob peut diffuser sa clé publique sur Internet ou par tout autre canal. Si Alice veut envoyer son numéro de carte bancaire à Bob, elle cherche la clé publique de Bob pour pouvoir crypter son message. Seul Bob connaît les nombres p, q et d . La seule façon pour un espion (Eve) de décoder le message est qu'elle trouve le nombre d , ce qui revient à trouver la factorisation de n par p et q .

La sécurité de ce système repose donc sur une conjecture mathématique qui stipule qu'il est très difficile de factoriser un nombre en facteur premier surtout si le nombre de départ contient un nombre de chiffres supérieurs à 100. Cette conjecture repose sur les algorithmes mathématiques connus de factorisation et sur la puissance actuelle des machines de calcul. Mais, on peut très bien imaginer que l'on puisse trouver des algorithmes plus puissants et même utiliser les *futurs* ordinateurs quantiques qui permettraient théoriquement de diminuer drastiquement les temps de calcul pour la factorisation de grands nombres en nombres premiers. Une première démonstration expérimentale de la factorisation du nombre 15 (!) en suivant un algorithme quantique a été publié en 2001 [10] et dernièrement [11] sur un circuit photonique.

Pour toutes ces raisons, une partie de la communauté scientifique s'est tournée vers un moyen sûr de transmettre une information (clé de codage). Cette fois, la méthode ne repose plus sur une conjecture mathématique mais sur les lois de la physique. Il s'agit de la cryptographie quantique.

1.1.2 Cryptographie quantique

La cryptographie quantique a pour but de fournir un protocole sûr afin de transmettre une clé de codage définie précédemment. Si jamais l'échange de cette clé est sûr, alors les deux interlocuteurs peuvent utiliser un système de communication symétrique. Plusieurs protocoles de cryptographie quantique existent [12, 13], utilisant soit des sources de photons uniques (variables discrètes) ou des sources intenses (variables continues). Le codage se fait alors sur un état quantique de la lumière tel que la polarisation, la phase, l'énergie ou même la fréquence du photon. Prenons pour illustrer nos propos le cas d'un codage de l'information sur l'état de polarisation d'un photon unique.

Nous devons disposer de deux bases distinctes pour coder l'information. Le plus simple est de choisir une base $|H\rangle$ et $|V\rangle$ de polarisations rectilignes (pour Horizontale et Verticale) et $|D\rangle = 1/\sqrt{2}|H\rangle + i/\sqrt{2}|V\rangle$ et $|G\rangle = 1/\sqrt{2}|H\rangle - i/\sqrt{2}|V\rangle$, base de polarisation

circulaire (pour Droite et Gauche) (voir figure 1.2). Ces deux bases étant orthogonales, l'information ne peut être lue que si l'on connaît la base de polarisation dans laquelle elle a été codée. Si par exemple un photon est préparé dans l'état $|\Phi\rangle = |H\rangle$ alors il aura une probabilité $1/2$ d'être détecté sur les deux états de la base $[|D\rangle, |G\rangle]$.

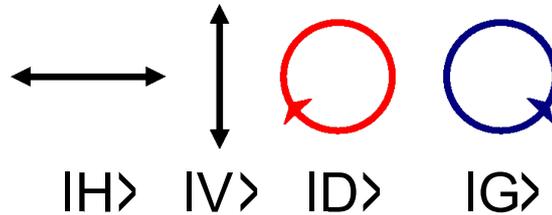


FIG. 1.2 – Schéma représentant les états de polarisation possibles des photons.

La sécurité de ce protocole réside dans le théorème de non clonage de la mécanique quantique : il n'est pas possible de copier parfaitement un état quantique inconnu (dont on ne connaît pas la base de projection). La clé étant codée de manière aléatoire sur l'une des deux bases, un espion qui serait susceptible de recueillir l'information ne saurait pas dans quelle base effectuer la mesure et ne pourrait pas renvoyer exactement la même information.

Nous présentons dans la suite le protocole de cryptographie le plus simple (BB84), défini par Charles Bennett et Gilles Brassard, qui utilise des variables discrètes codées sur des photons uniques et qui est une réalisation concrète de la méthode de cryptage définie précédemment. Ce protocole est actuellement le plus utilisé en cryptographie quantique.

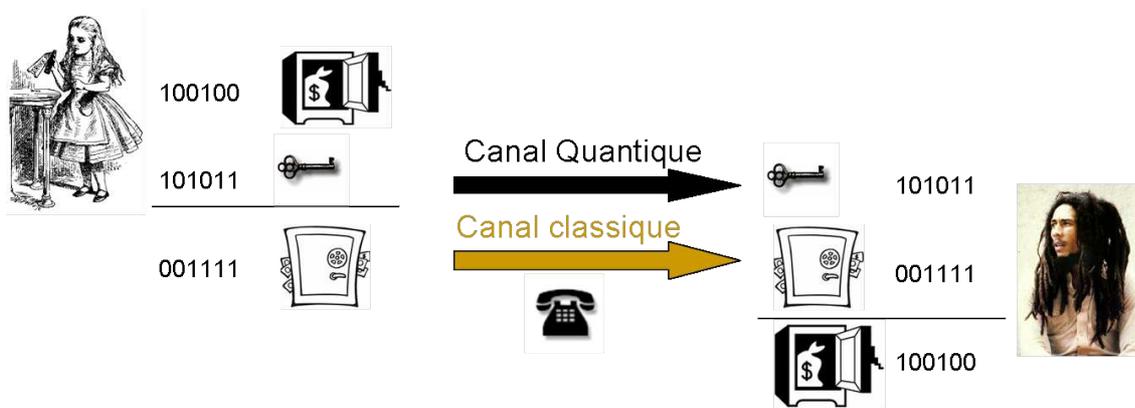


FIG. 1.3 – Illustration de principe du transfert de clé par un canal 'quantique'. Le message codé est transmis à travers un canal 'classique' (fibre optique, ondes radio, ...)

Dans ce protocole, Alice et Bob peuvent par exemple coder l'information sur la polarisation du photon. Les photons sont préparés et mesurés suivant les deux bases définies ci-dessus (voir figure 1.2). On distingue deux canaux de communication (voir figure 1.3). L'un est dit 'quantique' où l'échange de clé va se faire et l'autre dit 'classique' qui contient le message codé (mail, document, etc...). A l'intérieur du canal quantique, les deux interlocuteurs procèdent de la façon suivante :

- Alice choisit une base au hasard ainsi qu’une polarisation dans cette base et envoie le photon à Bob.
- Bob choisit aléatoirement une base de mesure. Il note le résultat de sa mesure ainsi que la base choisie.
- Au bout d’un certain nombre de bits envoyés, Alice et Bob comparent les bases utilisées et écartent les bits ayant été préparés et mesurés dans une base différente (en moyenne un évènement sur deux).
- Bob compare une partie de la clé avec celle d’Alice par un canal classique (la longueur de clé comparée est insuffisante en elle même pour déchiffrer l’ensemble de la clé). Ceci leur permet d’évaluer le taux d’erreur lors de l’échange.
- Les bits validés constituent la clé secrète qui peut être utilisée pour coder un message (code de Vernam par exemple). En l’absence d’intrus, le tableau 1.4 résume ces étapes.

Alice envoie aléatoirement des bits (0 ou 1) dans deux bases différentes	0	1	0	1	0	0	1	0	0	1	1	1
	×	+	+	×	+	×	×	+	×	+	+	×
Bob mesure aléatoirement dans la base + ou × et enregistre le bit	×	+	+	×	×	+	×	+	×	×	+	×
	0	1	-	1	1	0	1	0	-	0	1	1
Bob annonce publiquement sa base et la compare avec Alice	ok	ok	-	ok	non	non	ok	ok	-	non	ok	ok
Les bits de différentes bases sont rejetés	0	1	-	1	-	-	1	0	-	-	1	1

FIG. 1.4 – *Principe d’échange de clé par un canal quantique en l’absence d’intrus sur la ligne. Lorsque les bits sont préparés et mesurés sur la même base (correspondant aux bits 1, 2, 4, 7, 8, 11, 12 sur le tableau), ils constituent la clé aléatoire. Dans ce tableau, on considère également que la ligne possède un taux de perte. Les bits 3, 9 sont perdus.*

Il faut encore vérifier que ce protocole est sûr. Si Eve écoute le canal quantique, elle peut faire la même chose que Bob, c’est à dire intercepter les photons et faire une mesure sur l’une des deux bases. Elle doit ensuite rémettre un photon afin que Bob ne se doute de rien, mais elle a une chance sur deux d’envoyer un bit codé sur une mauvaise base. Ainsi, il y a une chance sur 4 que Bob reçoive une information erronée, ce qu’il verra en comparant ses mesures avec Alice. Ce schéma de principe est résumé sur le tableau 1.5. Dans cet exemple, le bit 2 est faux. En pratique, Alice et Bob comparent une partie de la clé, et calculent le taux d’erreurs de ce type. Si ce taux est supérieur à une certaine valeur, alors la conversation est écoutée et la clé n’est pas sûre. Il faut donc couper la communication.

A l’heure actuelle, les protocoles de cryptographie quantique ont été essentiellement réalisés à partir de l’utilisation de diodes lasers fortement atténuées [14, 15]. Bien que les impulsions cohérentes de faible intensité délivrées par ces sources ne soient que des approximations d’impulsion à un photon, le protocole de transmission peut être inconditionnellement sûr dans certains cas (correspondant en pratique à une communication à courte distance). On comprend bien que si la source a une probabilité trop importante d’émettre deux photons par impulsion, Eve pourrait très bien trouver un moyen de prélever

Alice envoie aléatoirement des bits (0 ou 1) dans deux bases différentes	0	1	0	1	0	0	1	0	0	1	1	1
	×	+	+	×	+	×	×	+	×	+	+	×
Eve intercepte et renvoie certains bits	-	×	-	-	×	-	×	-	-	+		
	-	0	-	-	1	-	1	-	-	1	-	-
Bob mesure aléatoirement dans la base + ou × et enregistre le bit	×	+	+	×	×	+	×	+	×	×	+	×
	0	0	-	1	1	0	1	0	-	0	1	1
Bob annonce publiquement sa base et la compare avec Alice												
	ok	ok	-	ok	non	non	ok	ok	-	non	ok	ok
Les bits de différentes bases sont rejetés	0	0	-	1	-	-	1	0	-	-	1	1

FIG. 1.5 – Principe d'échange de clé par un canal quantique en présence d'un intrus, Eve. Dans cet exemple, Eve intercepte certains bits (2, 5, 7, 10) avant de les renvoyer. Comme Eve ne connaît pas la base dans laquelle le bit a été préparé, le bit est renvoyé dans une base aléatoire. Lorsqu'Alice et Bob comparent un certain nombre de bits, le taux d'erreur est augmenté à cause de l'intervention d'Eve (cas du bit 2).

un seul photon et Alice et Bob ne se rendraient compte de rien. Ce type d'attaque, dite *PNS* pour Photon Number Splitting, reste néanmoins difficile à réaliser expérimentalement. En effet, Eve doit effectuer dans un premier temps une mesure quantique non destructive pour mesurer le nombre de photons dans un pulse. Si le pulse contient plus d'un photon, Eve renvoie un photon à Bob et stocke le deuxième photon dans une mémoire quantique en attendant que Bob fasse part à Alice de sa base de mesure [16]

1.2 Source de photon unique efficace pour des applications à la cryptographie quantique

1.2.1 Quelle source/protocole pour quelle utilisation ?

Pour être fiable, le protocole de cryptographie BB84, défini précédemment, requiert une probabilité d'avoir deux photons par impulsion, notée P_2 , proche de zéro ($P_2 \approx 0$). En effet, la présence d'impulsions contenant plus de deux photons ouvre une voie d'attaque à un éventuel espion. On peut néanmoins conserver la confidentialité de la communication en atténuant plus fortement le signal, ce qui a pour conséquence de réduire le débit de l'échange. Ainsi, il faut donc choisir entre un réseau fiable (avec une sécurité maximale) et un taux de transmission réaliste. Avec une source classique, une sécurité absolue correspond à un taux de transmission nul.

Il existe plusieurs type de sources et différents protocoles pour réaliser des dispositifs de cryptographie quantique. Le degré de complexité étant différent dans chaque protocole, les contraintes sont différentes et la gamme d'utilisation également. Sur la figure 1.6, sont représentées les différentes sources et protocoles actuellement utilisés en

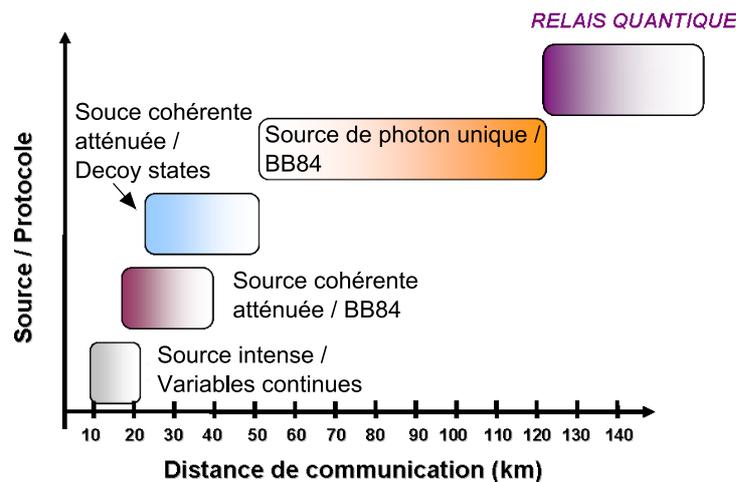


FIG. 1.6 – Sources et protocoles utilisés dans la cryptographie quantique, ainsi que les domaines d'utilisation en terme de distance maximale de communication sûre. Les limites d'utilisation ont cependant des origines différentes selon les sources utilisées. Dans le cas des sources cohérentes, la possibilité d'une attaque PNS limite la distance de communication. Dans le cas des sources de photons uniques, la limitation provient principalement du bruit des détecteurs.

cryptographie quantique. Le critère majeur que l'on retiendra est la distance maximale de communication. Par exemple, pour de très courtes distances (<10 km), il existe des protocoles de cryptographie utilisant des sources intenses et l'information se retrouve codée sur des variables continues [17]. Pour des distances de communications plus importantes, les protocoles vont reposer sur l'utilisation de variables discrètes.

Le système le plus répandu actuellement ³ repose sur l'utilisation de sources cohérentes atténuées. En règle générale, une source classique produit des photons en suivant une statistique de Poisson. Si par exemple on essaie d'atténuer une telle source dans l'optique d'obtenir un photon en moyenne, il subsiste une probabilité P_2 non nulle d'avoir deux photons dans l'impulsion. Cette probabilité vaut environ $P_2 \approx P_1^2/2$ en notant P_1 la probabilité d'en avoir seulement un seul. Ce protocole est donc sensible à des attaques PNS. Pour palier à ce défaut, on utilise des "leurre" (Decoy States). Nous n'entrerons pas dans les détails des protocoles correspondant et pour plus d'information, le lecteur peut consulter les références [18, 14, 19]. On retient principalement que ce procédé de cryptographie est fiable sur des distances plus ou moins courtes (<50 km). En effet, pour ces protocoles, Alice et Bob doivent mettre en commun davantage d'information sur leur statistique de photons reçus et envoyés que le simple choix des bases utilisées dans le protocole BB84. Or, les pertes augmentent avec la distance de communication, et au delà d'une certaine distance, la quantité d'information non sûre (une partie de la clé secrète) augmente. Au final, le débit "utile" d'information (sécurisée) tend vers 0 pour des grandes distances. Nous allons maintenant présenter le protocole de cryptographie basé sur une source de photon unique.

³Commercialisée par les sociétés ID Quantique, Smart Quantum, MagiQ, etc.

1.2.2 Les critères nécessaires pour une source de photons uniques

Actuellement, dans le domaine de la cryptographie quantique, le seul protocole permettant d'établir des communications à grande distance (>100 km) repose sur l'utilisation de sources de photons uniques. De plus, on peut très bien imaginer dépasser les 130 km en utilisant des relais quantiques. Dans ce cas, on utiliserait des sources de photons intriqués et l'idée de la mesure est la même que celle utilisée dans les expériences de téléportation quantique. Pour le moment, l'utilisation de sources de photons uniques dans les réseaux actuels de communications par fibre optiques se heurte principalement à des barrières technologiques. Nous allons exposer dans la suite de ce paragraphe quelles sont les caractéristiques attendues pour une telle source.

Afin de pouvoir intégrer une telle source dans un réseau de communication quantique, cette source de photons uniques doit répondre à un certain nombre de critères pratiques. Un protocole d'échange de clé par un canal quantique nécessite un débit supérieur au GHz. On doit donc être capable de produire des photons à la demande à des intervalles inférieurs à la nanoseconde. Dès lors, les sources de photons uniques annoncés, reposant sur la conversion paramétrique, sont limitées à cause du temps nécessaire pour détecter le premier photon "annonceur". Les débits atteints avec ce genre de source sont de l'ordre du MHz. D'autre part, la longueur d'onde des émetteurs doit se situer aux alentours de $1.55 \mu\text{m}$. Cette longueur d'onde correspond au minimum d'absorption à l'intérieur des fibres standard utilisées dans les télécommunications. De plus, la largeur spectrale des émetteur doit être faible pour éviter des recouvrements spectraux causés par la dispersion chromatique dans les fibres. Enfin, on cherchera à réaliser une source compacte, pouvant fonctionner à hautes températures ($> 77\text{K}$), et pouvant être pompée électriquement. Les caractéristiques d'une source de photons uniques idéale sont résumées dans le tableau suivant :

	Statistique d'émission	Longueur d'onde	FWHM	Débit	Température d'utilisation	Excitation
Source idéale	$P_1 \approx 100\%$ $P_2 < 0.01\%$	$1.55 \mu\text{m}$	$< \text{nm}$	$> \text{GHz}$	$> 77 \text{ K}$	électrique

FIG. 1.7 – Caractéristique d'une source de photon unique idéale pour des applications à la cryptographie quantique

Aujourd'hui, ce type de source n'existe pas. Une source de photon unique "à la demande" est une source purement quantique (voir chapitre 3.4.1). Un moyen "simple" et connu pour réaliser une telle source est l'utilisation de la transition fondamentale d'un dipôle unique. Prenons par exemple le cas d'école d'un système à deux niveaux, avec un état fondamental et un état excité ayant une durée de vie donnée τ . Supposons que l'on

excite ce dipôle par un train d'impulsions laser de durée σ très inférieure à τ (on vient peupler l'état une seule fois par impulsion) et de taux de répétition T supérieur à τ . Alors, à chaque impulsion, le dipôle se trouve dans son état excité pendant une durée τ puis retombe dans son état fondamental en émettant un photon. Il restera dans cet état jusqu'à la prochaine impulsion excitatrice. Nous allons voir dans la suite quels sont les différents moyens d'isoler un tel dipôle.

1.2.3 Catalogue des sources existantes

Il existe différentes approches pour isoler un dipôle unique. Il peut s'agir d'un atome unique, d'un ion, d'une molécule, d'un défaut dans un cristal de diamant ou bien d'une boîte quantique. Dans ce paragraphe nous reviendrons sur les principales caractéristiques de chacune de ces sources afin de dégager celle qui répond au mieux aux critères définis précédemment.

Atomes et ions

La première démonstration de source de photons uniques fut réalisée en 1977 [5] par Kimble *et al.* en utilisant un jet atomique dilué d'atomes de sodium excités par laser. Cette expérience a permis d'observer un effet de dégroupement de photon (un photon unique arrivant sur une lame semi-réfléchissante ne peut pas être détecté au même moment en transmission et en réflexion). En 1986, Grangier *et al.* mettent en évidence un phénomène de cascade radiative toujours à partir d'atomes [20]. Un atome dans un état excité peut conduire à l'émission de deux photons, dont l'émission se fait de manière séquentielle. En 1987, Diedrich *et al.* observent un dégroupement de photons à partir d'un ion piégé. Cette fois, un seul émetteur est isolé, mais ces expériences nécessitent un important dispositif expérimental, difficile à mettre en œuvre en pratique.

Molécules

Dans les années 90, les efforts se tournent vers la génération de photons uniques à partir de molécules. Aux premiers abords, les molécules semblent être un excellent candidat : leurs caractéristiques chimiques sont généralement très bien connues, et il est assez simple de préparer des échantillons à faible concentration et d'isoler des molécules dans des matrices solides. De plus il est possible de faire fonctionner ces systèmes à température ambiante. Les premières expériences de dégroupement de photons à partir de molécules uniques ont eu lieu en 1992 sur des molécules de pentacène dans une matrice de paraterphényl, refroidies à 1.5 K sous excitation continue [21]. Ce même système a aussi été utilisé en 1999 pour réaliser cette fois une source de photons uniques "à la demande" [22]. La molécule d'Oxazine 720 fut également utilisée en 1996 [23], où les auteurs reportent pour la première fois la réalisation d'une source de photons uniques à base de molécule, sous excitation impulsionnelle à une température de 10 K. Plus récemment des travaux font état de source de photons uniques "à la demande" à température ambiante [24].

Malgré tout, le principal défaut des molécules est leur manque de photostabilité à température ambiante. Toutes ces molécules subissent sous excitation optique une transfor-

mation chimique irréversible et ce après avoir émis un nombre fini de photons (de l'ordre de 10^6). Ce phénomène est connu sous le nom de photoblanchiment, et intervient généralement après quelques millisecondes d'excitation à saturation. Notons qu'à très basse température et pour certaines molécules émettrices, l'émission peut être parfaitement photostable.

Cependant, la longueur d'onde de ces émetteurs se situe dans la majorité des démonstrations aux alentours de 400-600 nm et ne convient pas à une utilisation pour des communications quantiques à longue distance.

Sources solides

Utiliser une source solide revient à isoler à l'intérieur d'un matériau solide un dipôle unique, que l'on appelle plus communément un "atome artificiel". On emploie cette dénomination car dans tous les cas, on se rapproche d'un système dont les niveaux d'énergie sont discrets tout comme un atome pris individuellement. Parmi les sources de photons uniques solide, on dénombre trois grands systèmes :

- Les centres colorés du diamant, comme par exemple le centre 'NV' correspondant à un complexe azote-lacune dans le réseau cristallin ou le centre 'NE8' associé à un complexe Nickel-Azote ;
- Les nanocristaux colloïdaux (CdSe/ZnSe par exemple) ;
- Les boîtes quantiques semi-conductrices auto-assemblées sur différents types de matériaux semi-conducteurs III/V ou II/VI.

Les centres colorés du diamant

Le diamant est naturellement riche en centres colorés. On en dénombre plusieurs milliers optiquement actifs répartis principalement dans le visible et proche infra-rouge. Ces centres colorés sont toujours produits par la présence d'un défaut dans la maille cristalline, comme par exemple la substitution d'un atome de carbone par un atome d'azote (N) et d'une liaison vacante (V) pour le centre "NV". Son avantage est sa photostabilité intrinsèque à température ambiante. Sa durée de vie de l'ordre de 11 ns permet un taux de répétition jusqu'à 10 MHz, et son efficacité quantique est proche de l'unité [25, 26]. L'existence de centres NV individuels dans le diamant massif a été mise en évidence expérimentalement en 1997 [27] et 1999 [28], mais sans observer de signature de dégroupement. Depuis, plusieurs travaux [29, 30] ont démontré expérimentalement des protocoles de cryptographie quantique en utilisant ces centres actifs. Néanmoins, l'inconvénient majeur de ce dispositif réside dans la longueur d'onde d'émission (637 nm) et le débit d'information inférieur à 10 MHz. Enfin, ces centres présentent une largeur homogène relativement grande (environ 50 nm^4) ce qui pose un problème d'étalement spectral si on envisage une transmission fibrée.

⁴sauf pour le centre Nickel qui présente une émission plus étroite mais restant cependant à une longueur d'onde $\ll 1.5 \mu\text{m}$

Les nanocristaux colloïdaux

Il existe une famille de centres émetteurs semiconducteurs, que l'on peut manipuler à température ambiante. Un exemple est les nanocristaux de CdSe. Ces cristaux de CdSe, d'environ 3 nm de diamètre, sont entourés d'une "coquille" de ZnS. Ces objets se comportent comme une boîte quantique et sont assimilables à des atomes artificiels (voir paragraphe suivant). La lumière émise présente la signature de dégroupement de photons [31, 32]. Cependant l'émission d'un nanocristal de CdSe présente un clignotement [33] de grande période (de quelques minutes à plusieurs heures) attribué à des mécanismes complexes d'ionisation et d'effets Auger [34, 35]. Notons qu'il existe néanmoins des techniques pour réduire ces clignotement comme par exemple en contrôlant l'épaisseur et la composition de la coquille de protection. La longueur d'onde d'émission de ces objets s'étend du visible jusqu'au proche Infra Rouge (IR), suivant leur taille et composition. Si le positionnement de ces nanocristaux à la surface de cristal photonique permet néanmoins d'augmenter la collection du signal [36], la mise en œuvre de ce type de source dans des réseaux fibrés de communications optique reste tout de même limitée.

Les boîtes quantiques auto-assemblées

Les boîtes quantiques semi-conductrices auto-assemblées ont été découvertes en 1985 avec les travaux précurseurs de J.Y. Marzin *et al.* [1]. Ces boîtes sont dites auto-assemblées car elles se forment spontanément à la surface d'un substrat semi-conducteur. Les boîtes quantiques sont des îlots de semi-conducteurs de faible gap et d'une hauteur quelques nm, pour un diamètre de quelques dizaines de nm, dans une matrice de semi-conducteur de plus grand gap. Nous aborderons les mécanismes de croissance des boîtes dans le chapitre 2. Ces boîtes reposent sur une fine couche bidimensionnelle de matériau de faible gap que l'on appelle couche de mouillage. On a alors formation de puits quantiques tridimensionnels. Les niveaux électroniques à l'intérieur de la boîte sont quantifiés. Les boîtes quantiques (ou quantum dots) de semi-conducteurs présentent de bonnes caractéristiques à basse température (4 K). Ces émetteurs sont en effet photostables, et le niveau excité a une durée de vie de l'ordre de la nanoseconde. Chaque désexcitation d'une paire électron-trou injectée dans la boîte produit l'émission d'un photon. Cependant, lorsqu'on excite une boîte quantique on injecte plusieurs paires électron-trou. Il a été observé que la longueur d'onde du photon dépend du nombre de paires électron-trou piégées dans la boîte. En utilisant un filtrage spectral approprié, il est donc possible d'isoler la désexcitation du niveau contenant une seule paire électron-trou (exciton) vers le niveau fondamental de la boîte vide de porteurs de charge. Il y a alors émission d'un et un seul photon. Ce mécanisme d'émission fut proposé par J.-M. Gérard *et al.* [37] et vérifié expérimentalement par E. Moreau *et al.* [38]. Nous aurons l'occasion de revenir sur les mécanismes de formation et d'émission des boîtes dans le paragraphe suivant. Nous verrons également que le processus de fabrication rend facilement possible l'insertion d'une boîte quantique à l'intérieur d'une microcavité. On est alors capable d'observer un régime de couplage fort ou faible entre la boîte quantique et la cavité [39, 40].

Ce système est étudié depuis plusieurs années au LPN, notamment les boîtes InAs/GaAs obtenues par EJM (pour Epitaxie par Jet Moléculaire). Récemment, le la-

laboratoire a développé la croissance de boîtes InAsP/InP par EPVOM (pour Epitaxie en Phase Vapeur aux OrganoMétalliques) [41, 42]. De plus, le laboratoire est doté d'équipements permettant des gravures post-croissance pour pouvoir modifier l'environnement des boîtes sur de l'InP (gravure de plots circulaires⁵, cavités à cristaux photoniques). Ce système est relativement récent et peu d'équipes dans le monde arrive à faire croître des boîtes quantiques sur InP par EPVOM. L'avantage de l'EPVOM réside dans son utilisation massive dans le milieu de l'industrie, par comparaison avec des techniques de croissance sous ultra vide comme l'EJM.

Ces boîtes InAsP/InP constituent la matière première de mes travaux de recherche. L'étude depuis près de 20 ans des boîtes quantiques InAs/GaAs a permis une très bonne compréhension de ce système. De nombreux effets quantiques ont été observés comme le dégroupement de photon pour la réalisation de sources de photons uniques [31, 6], la réalisation de sources de photons indiscernables [43], etc. Par contre, les boîtes InAsP/InP sont un système encore récent, et de nombreuses questions se posent encore sur la physique qui régit leur formation ainsi que leurs caractéristiques d'émission. Dans ce mémoire, nous chercherons donc à établir les propriétés optiques de ces boîtes à l'échelle unique. Nous verrons qu'elles peuvent servir d'élément de base pour la réalisation d'une source de photons uniques compétitive. De plus, l'étude de leurs propriétés dynamiques et de leur comportement en fonction de la température, permettront de dégager des propriétés intéressantes pour la réalisation de composants photoniques innovants, comme des nanolasers à faible seuil émettant à $1.55 \mu\text{m}$ à température ambiante.

À partir de maintenant, nous allons étudier plus en détail ce système. Avant de commencer cette étude détaillée, nous pouvons résumer les principaux avantages des boîtes quantiques InAsP/InP ci-dessous, tout en gardant en mémoire les deux applications envisagées : la réalisation d'une source de photons uniques, et l'obtention d'un milieu à gain pour des lasers à cristaux photoniques.

Principaux avantages des boîtes quantiques InAsP/InP obtenue par EPVOM :

- **Longueur d'onde** : de $1.2 \mu\text{m}$ à $2.2 \mu\text{m}$ (Rappel des principales bandes de télécommunications : C-Band de $1.530 \mu\text{m}$ à $1.565 \mu\text{m}$; E-Band de $1.36 \mu\text{m}$ à $1.46 \mu\text{m}$; O-Band de $1.26 \mu\text{m}$ à $1.36 \mu\text{m}$). Largeur spectrale à mi-hauteur (FWHM) inférieure au nanomètre.
- **Matériaux** : Croissance sur substrat InP orienté [001] facilement compatible avec les technologies des composants d'optique intégrée.
- **Technique de croissance** : EPVOM, technique industrielle.
- **Durée de vie des émetteurs** : De l'ordre de la nanoseconde, ce qui permet d'envisager des débits supérieurs au GHz en réduisant la durée de vie par effet Purcell en cavité.
- **Température d'utilisation** : Bon fonctionnement à 4K. Possibilité d'obtenir un effet de dégroupement de photons vers 77K. Peu de pertes non radiatives à

⁵appelés mésas par la suite

température ambiante sur des ensembles de boîtes.

- **Compacité** : Possibilité de graver des cavités à cristaux photoniques et de les insérer dans des systèmes d'optique intégrée.
- **Excitation** : Possibilité d'effectuer un pompage électrique.

Zoologie des objets quantiques

Avant de rentrer dans les détails des mécanismes propres aux boîtes quantiques, nous allons faire un petit rappel de terminologie. Ces dernières années, plusieurs noms communs se sont vus adjoindre l'adjectif "quantique". On parle souvent de puits quantiques, de puits quantiques à fluctuations d'interface, de boîtes quantiques (ou quantum dots), de batonnets quantiques (ou quantum dashes), d'anneaux quantiques (ou quantum rings), de fils quantiques (ou quantum rods, wires) et de manière plus vague d'îlots quantiques. La différence entre ces objets réside dans le confinement spatial des fonctions d'ondes. Nous pouvons faire un catalogue des principales propriétés de ces objets :

- **Puits quantiques** : Cet objet est un cas d'école en mécanique quantique. C'est une zone de l'espace dans laquelle le potentiel énergétique présente un minimum. Les conditions aux limites imposent une quantification de l'énergie dans une direction. En pratique, un puit quantique de semi-conducteur est une hétérostructure qui s'obtient en réduisant la dimension d'un matériau de gap faible (typiquement de l'ordre d'une dizaine de nanomètres) lui même inséré dans un matériau de gap plus élevé. La densité d'états électroniques est discrétisée et donne lieu à des bandes d'énergie. On parle de confinement 1D. Lorsque l'on injecte des porteurs (optiquement ou électriquement), ces derniers se recombinent radiativement. Spectralement, l'émission est centrée sur une longueur d'onde avec une largeur spectrale de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Un exemple de spectre est donné sur la figure 1.8.
- **Boîtes à fluctuations d'interfaces ou puits à fluctuations d'interfaces** : Lors d'une croissance idéale d'un puit quantique, les interfaces sont parfaitement lisses à l'échelle atomique. Pour certaines conditions de croissance, cette interface peut présenter des rugosités à une échelle grande devant le rayon de Bohr de l'exciton. Dans ce type de structure, l'exciton est quasi bi-dimensionnel et les fluctuations d'interface affectent le mouvement du centre de masse de cet exciton. On parle alors de boîtes quantiques naturelles ou boîtes quantiques à fluctuations d'interface. Dans la direction de croissance, le confinement est celui du puits quantique alors que dans le plan, les variations d'épaisseur du puits localisent le centre de masse de l'exciton. L'émission de ce type de boîte est spectralement fine, avec une largeur typiquement inférieure au nanomètre. Un exemple de spectre est présenté sur la figure 1.8.
- **Boîtes quantiques** : Sans autres précisions, on parlera de boîtes quantiques pour les objets déjà définis précédemment (boîtes auto-organisées). Dans le cadre de mes travaux de recherche, nous utiliserons des boîtes InAsP obtenues sur

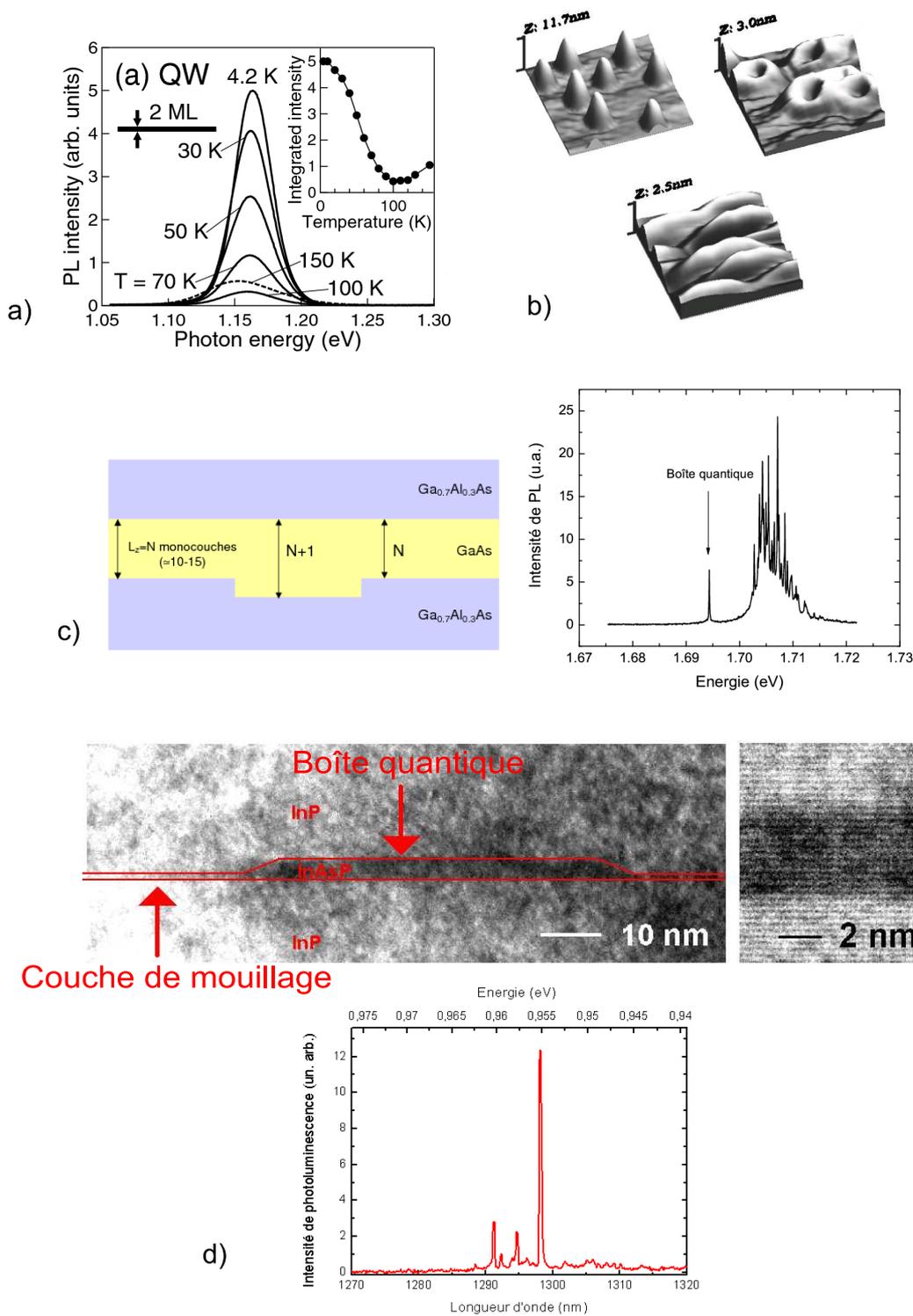


FIG. 1.8 – (a) : Exemple de spectre de photoluminescence d'un puits quantique InAs/InP [44]; (b) Images par Microscopie à Force Atomique (AFM) de boîtes, batonnets, anneaux quantiques d'InGaAs/GaAs [45] (c) Boîtes quantiques à fluctuations d'interface [46]; (d) Image par Microscopie électronique en Transmission (TEM) et spectre typique à 4 K d'une boîte quantique InAsP/InP obtenue au LPN. On distingue une couche 2D d'InAs qui correspond à la couche de mouillage. L'image de droite est une vue à plus petite échelle du centre de la boîte. Les traits horizontaux représentent les couches atomiques.

un substrat d'InP. Sur la figure 1.8 on présente un spectre typique d'une boîte *InAsP/InP*. Généralement, la signature spectrale est fine (de l'ordre de 20-30 μeV (20 pm) pour des boîtes InAs/GaAs [47] et 50 μeV (90 pm) pour des boîtes InAsP/InP à 4 K (voir Chapitre 3)).

- **Batonnets quantiques et anneaux quantiques** : Lorsque la taille des boîtes quantique dépasse plusieurs dizaines de nanomètres ($>50\text{-}60$ nm), on parle de batonnet quantique. Il n'existe pas de définition rigoureuse pour ce type d'objet. Généralement le confinement à l'intérieur de ce type d'objet est hybride entre ceux obtenus pour une boîte et pour un puits. Les spectres typiques montrent des raies d'émission de l'ordre de quelques centaines de μeV de largeur spectrale à 4 K (>0.2 nm). Lorsque la boîte présente une forme d'anneau, on parle également d'anneau quantique (ou quantum ring).

1.3 Nanolasers à émission spontanée pour la nanophotonique

Dans un laser, l'émission dominante est soit spontanée (régime sous le seuil de démarrage du laser) soit stimulée (une fois le seuil passé). L'émission spontanée joue un rôle important car c'est elle qui déclenche l'émission stimulée. Un dipôle peut émettre spontanément dans le mode laser ou bien émettre dans d'autres modes (principalement des modes de fuites qui ne participent pas à l'effet laser). Afin de quantifier le taux d'émission spontanée "utile" dans le mode laser, on introduit le facteur β , défini par la fraction d'émission spontanée dans le mode laser sur l'émission spontanée totale. Dans les lasers conventionnels, β est de l'ordre de 10^{-56} . Dans ce travail, nous allons nous intéresser à des lasers dits à fort β (typiquement de l'ordre de $10^{-1} - 1$). La physique de ces lasers diffère des lasers conventionnels en terme de seuil et de dynamique d'émission. Dans ce paragraphe, nous présenterons brièvement l'intérêt de ce type de laser et les choix technologiques retenus afin de les réaliser.

1.3.1 Stratégie pour augmenter le facteur β

Dans un laser à fort facteur β , l'émission spontanée est principalement dirigée dans le mode laser. L'émission dans les modes non lasants est une source de perte. Plus le facteur β est important et plus le seuil du laser diminue. A la limite où β tend vers 1, dès que le premier photon est émis spontanément, il participe au mode laser. On parle alors de laser sans seuil⁷. Augmenter β devrait donc permettre de réduire le courant de seuil des lasers.

Des études montrent également qu'il est possible d'obtenir de fortes bandes passantes de modulation directe dans ces sources et des temps d'allumage courts [48]. Des résultats récents démontrés au LPN dans le cadre de la thèse de R. Braive ont montré la pos-

⁶y compris pour les lasers à semiconducteurs comme les diodes lasers

⁷Dans le cas d'un laser sans seuil, il subsiste cependant deux régimes : l'un dominé par l'émission spontanée conduisant à une statistique thermique, et l'autre par l'émission stimulée correspondant à une statistique poissonnienne.

sibilité d'obtenir des taux de répétition de 10 GHz avec des boîtes quantiques InAs/GaAs insérées dans un cristal photonique [9]. Nous verrons dans le chapitre 5 que nous pouvons transposer ces résultats en utilisant des boîtes quantiques InAsP/InP à température ambiante et aux longueurs d'onde des communications optiques fibrées.

Afin d'augmenter le facteur β , nous allons tirer profit d'effets d'ElectroDynamique Quantique en Cavité (CQED). L'interaction entre un dipôle ponctuel (boîte quantique dans notre cas) et un environnement électromagnétique particulier (champ électromagnétique en cavité) peut dans certaines conditions modifier la dynamique d'émission spontanée. Ces effets CQED sont obtenus seulement dans des cavités microscopiques, de faible volume et de fort facteur de qualité. On parlera de microcavité pour les résonateurs que nous utiliserons, où le volume de la cavité sera de l'ordre de $(\lambda/n)^3$ et les facteurs de qualité de plusieurs milliers.

1.3.2 Milieu à gain et type de cavité

Milieu à gain

Pour réaliser de tels lasers, il faut un milieu à gain. Cela peut être des puits quantiques ou bien des boîtes quantiques. Les pertes non radiatives induites par les flancs gravés dans les microcavités à puits quantiques limite l'utilisation de ce type de milieu à gain pour la réalisation de nanolasers avec effet CQED. La réduction de dimensionnalité et la discrétisation de la densité d'états électroniques dans les boîtes quantiques sont un intérêt pour la réalisation pratique de lasers à semiconducteurs. On s'attend notamment à une diminution du courant de seuil, une faible sensibilité à la température ainsi qu'un gain différentiel plus élevé permettant une réponse plus rapide de ce type de laser à une modulation directe.

Au seuil laser, il y a inversion de population dans le milieu à gain. A partir de ce moment, l'émission stimulée devient prépondérante et l'émission laser devient possible. Or, dans les puits quantiques, un grand nombre de porteurs est nécessaire afin de réaliser cette inversion. A l'inverse, dans les boîtes quantiques, le seuil de transparence est atteint avec une seule paire électron-trou. Théoriquement, on s'attend à une diminution du courant de seuil d'un facteur 10 entre les puits et les boîtes quantiques [49, 50].

Un autre critère important est l'influence de la température sur le courant de seuil. Dans un puits quantique, les porteurs ont accès à un continuum d'états et leur distribution parmi ces états dépend de la température selon la loi de Boltzmann ce qui entraîne des variations de gain. Dans les boîtes quantiques correspondant à une séparation des niveaux énergétiques supérieure à kT , la courbe de gain devient moins sensible aux variations de température.

De plus, dans les puits quantiques, les porteurs acquièrent une mobilité lorsque la température augmente. La probabilité que ces porteurs se recombinent non radiativement, par exemple sur des pièges présents sur les flancs gravés, induit une augmentation du courant de seuil. Dans les boîtes quantiques, les porteurs sont localisés spatialement dans un espace réduit. Ce système est donc moins sensible aux recombinaisons non radiatives.

Type de cavités

Le paramètre dominant pour les effets de CQED est le rapport Q/V (voir chapitre 4), avec Q le facteur de qualité de la cavité et V le volume effectif du champ électromagnétique dans la cavité. Il existe plusieurs géométries de cavité pour réaliser des nanolasers. On trouve principalement des cavités de type micropilier [51], des microdisques (ou des microtores) et des cavités planaires à cristaux photoniques (voir figure 1.9).

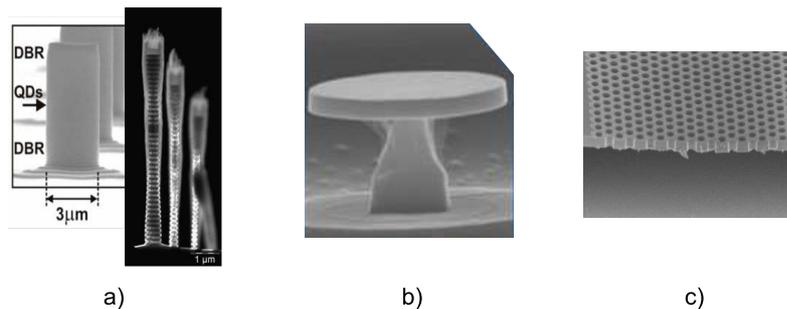


FIG. 1.9 – Exemple de cavité pour la réalisation de nanolasers. (a) : Micropilier (LPN); (b) : Microdisque (LPN); (c) : Cristal photonique sur membrane (LPN).

Les micropiliers sont constitués d'une alternance de miroirs de Bragg (DBR) qui entraîne des interférences le long du pilier. Le milieu à gain se trouve au centre du pilier, ce qui forme la cavité. Dans ce type de système on peut obtenir des rapports Q/V de l'ordre de 10^4 [52]. Dans les microdisques, le milieu actif se trouve dans le plan du disque et le confinement se fait par effet de guidage, par une succession de réflexions totales internes à la périphérie du disque. L'émission se fait par la tranche du disque ce qui limite leur éventuelle intégration dans des composants optoélectroniques. Notons qu'il est possible de venir collecter la lumière à la base du microdisque par l'intermédiaire d'un guide d'onde (REF!). On peut atteindre des rapports Q/V de l'ordre de 10^4 [53]. Le dernier système est celui que nous avons retenu au laboratoire pour la réalisation de nanolasers. Il s'agit de cavités à cristal photonique sur membrane. Le confinement est induit par des effets d'interférences dans le plan de la membrane et par guidage dans la direction perpendiculaire. L'émission a lieu principalement dans le plan de la membrane et le pompage électrique et l'intégration avec les composants de l'optoélectronique est possible. Avec ces cavités, il est possible d'atteindre des rapports Q/V de l'ordre de 10^6 sur silicium [54], notamment grâce à l'amélioration des techniques de gravure et à la géométrie novatrice de certains types de cavités (par exemple on peut citer les cavités à double-hétérostructures proposées dans [54]).

1.3.3 Catalogue et résumé

Dans ce paragraphe, nous présenterons succinctement un aperçu des différents lasers à boîtes quantiques présentant des effets CQED.

- Dans [51], Reitzenstein *et al.* présentent un laser à boîtes quantiques InGaAs/GaAs,

pompé électriquement sur des structures de type micropiliers. Les courbes d'auto-corrélations montrent une transition nette des fluctuations thermiques ($g^{(2)}(0) \approx 1.15$ au seuil) à cohérente ($g^{(2)}(0) \approx 1$).

- On reporte également la réalisation de laser à boîtes quantiques InAs/GaAs sur microdisque [48], où les auteurs annoncent des temps d'allumage de l'ordre de 7 ps.
- Concernant les cavités à cristaux photoniques, Bouwmeester *et al.* [55] reportent une analyse de la dépendance du facteur β en fonction du dessin de la cavité. La transition de l'émission thermique vers l'émission cohérente est moins abrupte quand β augmente (voir figure 1.10). Les travaux de Braive *et al.* au LPN ont montré récemment la réalisation de lasers à boîtes quantiques à fort facteur β , permettant notamment d'obtenir des bandes passantes de modulation directe de 10 GHz en utilisant des boîtes quantiques InAs/GaAs insérées dans des membranes à double-hétérostructures [9]. Aux longueurs d'onde des communications optiques, citons les travaux de Vuckovic *et al.* [56], où les auteurs utilisent des boîtes quantiques InGaAsP/InP insérées dans des cavités à cristaux photoniques et mesurent des largeurs d'impulsions de l'ordre de 10 ps. Dans [57], Bordas *et al.* mettent en évidence un effet laser à faible seuil à température ambiante en utilisant des boîtes quantiques InAs/InP à $1.5 \mu\text{m}$ à l'aide de cavités à cristaux photoniques à modes lents.

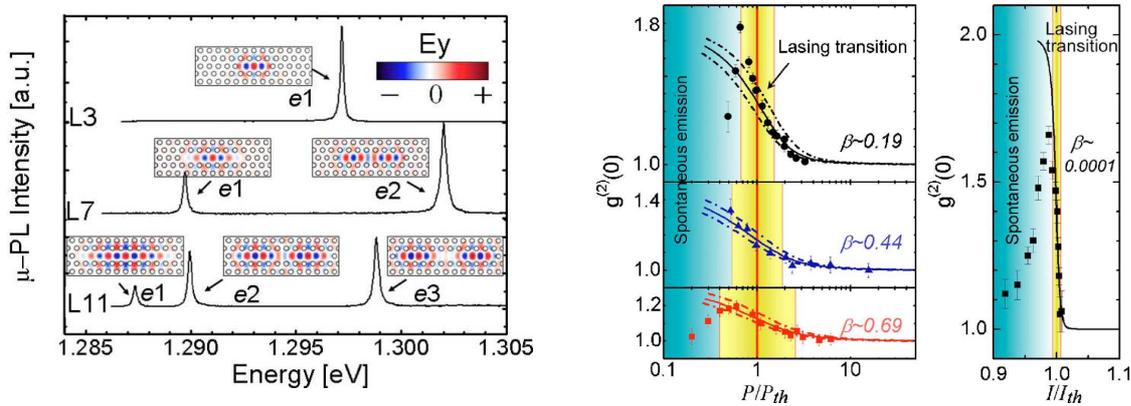


FIG. 1.10 – Résultats tirés de [55] montrant l'évolution du facteur β pour différents choix de cavités L3 ($\beta \approx 0.69$), L7 et L11. Les mesures de β sont extraites des ajustements de la courbe $g^{(2)}(0)$ en utilisant des modèles phénoménologiques

Notons que la physique de la transition laser est rarement étudiée au moyen de mesures d'autocorrélations. Les mesures du facteur β repose souvent sur des modèles phénoménologiques, tirés de la physique des puits quantiques ou d'atomes isolés, et qui sont mal adaptés aux systèmes semiconducteurs. Nous aborderons ces points plus en détails dans le chapitre 5.

1.3.4 Emission de photons uniques par une boîte quantique

Lorsque l'on désire réaliser un confinement, on vient bloquer le mouvement des porteurs de charges (électrons et trous) suivant certaines directions. Pour faire cela, on peut

envisager d'utiliser deux matériaux semiconducteurs de gaps différents. En effet, l'électron sera confiné dans le matériau de plus faible gap. A partir de ces considérations, il existe plusieurs façons d'inclure un matériau de faible gap dans un matériau de fort gap. On peut réaliser un puits quantique (couche bi-dimensionnelle de faible gap entre deux couches à plus haut gap), ou bien un fil quantique (la couche de petit gap devient un ruban) ou alors imaginer une petite boîte de petit gap incluse dans un matériau de grand gap. On réalise dans ce dernier cas une boîte quantique (confinement 0D). On peut calculer et représenter la densité d'états électroniques pour ces trois types de confinements (voir figure 1.11). Les effets quantiques proviennent des conditions aux limites, qui discrétisent les niveaux d'énergie.

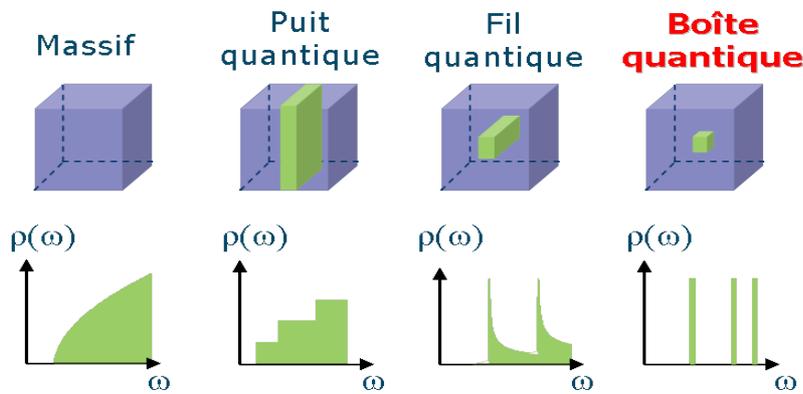


FIG. 1.11 – Densité d'états électroniques $\rho(\omega)$ en fonction de la pulsation ω pour les différents types de confinement. Dans le cas des boîtes quantiques, la densité d'états est composée d'états discrets en énergie.

Les formes de ces densités d'états ont des conséquences entre autres sur :

- Les propriétés électroniques ;
- Les probabilités de transitions optiques (absorption et émission de lumière).

Les boîtes quantiques sont souvent appelées atomes artificiels à l'état solide. On représente d'ailleurs souvent une boîte quantique comme sur la figure 1.12. En échelle verticale est représentée l'énergie et sur l'échelle horizontale une des dimensions, x , y ou z , de l'espace. Sur cette représentation, la boîte est dite dans son état fondamental. Elle est composée de plusieurs niveaux dits de valence remplis et de niveaux de conduction vides de charge.

Le protocole usuel pour produire des états de Fock à un photon à partir d'une boîte quantique individuelle a été proposé en 1999 [37]. Il fut mis en œuvre dès 2001, aussi bien sous pompage optique [6, 39] que sous pompage électrique [58] sur des systèmes InAs/GaAs. Ce protocole reste applicable pour les boîtes InAsP/InP.

La boîte est tout d'abord pompée optiquement (ou électriquement) de manière non résonante (voir figure 1.13) par une impulsion courte, de durée inférieure à la durée de vie de la transition fondamentale d'une paire électron-trou. Ainsi, la probabilité que l'exciton,

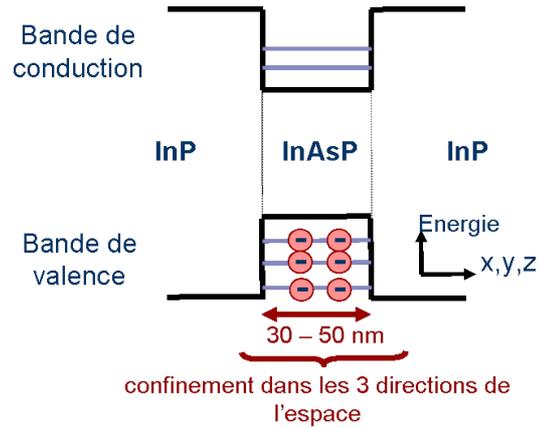


FIG. 1.12 – Représentation schématique d'une boîte quantique avec les niveaux discrets d'énergie.

créé au début de l'impulsion, relaxe avant la fin de l'excitation, est négligeable. Les porteurs injectés se répartissent alors sur les différents niveaux d'énergie de la boîte par relaxation avec des phonons. On parlera de niveau excitonique lorsque la boîte contiendra une paire électron-trou dans son niveau fondamental et de niveau biexcitonique lorsque celui-ci en contiendra deux⁸. Les énergies de ces différents niveaux sont toutes distinctes les unes des autres du fait de l'interaction coulombienne entre les charges. La relaxation radiative en cascade des différentes paires électron-trou créées conduit à l'émission successive de photons d'énergies distinctes. Elle aboutit à la configuration dans laquelle la boîte ne contient plus qu'une seule paire électron-trou. En filtrant spectralement⁹ la luminescence de la boîte à l'énergie E_X de cette dernière transition à une paire électron-trou, on obtient un photon et un seul, car seule cette transition a lieu à cette énergie. Soulignons que ce protocole aboutit à l'émission de photons uniques si la durée de vie de l'état à une paire électron-trou est bien plus longue que la durée de l'impulsion optique d'excitation et, pour une excitation non-résonante, que la durée de vie de la couche de mouillage et de la matrice d'InP.

Ce protocole peut être étendu pour produire des états de Fock à deux photons, les deux photons étant véhiculés dans deux modes distincts [38]. Il suffit de reprendre le protocole précédent qui combine excitation non-résonante et filtrage spectral, en sélectionnant spectralement non pas uniquement le photon issu de la transition à une paire électron-trou mais aussi le photon issu de la transition à deux paires électron-trou. La relaxation du système conduit alors à l'émission en cascade de deux photons (figure 1.15) : tout d'abord un premier photon d'énergie E_{XX} (correspondant à la transition biexcitonique) et puis un second photon d'énergie $E_X \neq E_{XX}$ (correspondant à la transition excitonique).

⁸Par définition, le terme "exciton" désigne une paire électron-trou dont l'extension est définie par l'interaction coulombienne attractive. Or, dans les boîtes quantiques, électron et trou sont faiblement corrélés par l'interaction coulombienne. En effet, au premier ordre, c'est la localisation de l'électron et du trou dans la boîte quantique qui forme l'état de paire électron-trou et non l'interaction Coulombienne comme par exemple dans les puits quantiques. Ce terme d'exciton reste cependant employé dans la littérature et nous continuerons à l'utiliser dans le mémoire.

⁹Dans les boîtes InAs/GaAs, l'écart en longueur d'onde entre le biexciton et l'exciton peut atteindre jusqu'à 3-4 nm, ce qui rend possible le filtrage spectral

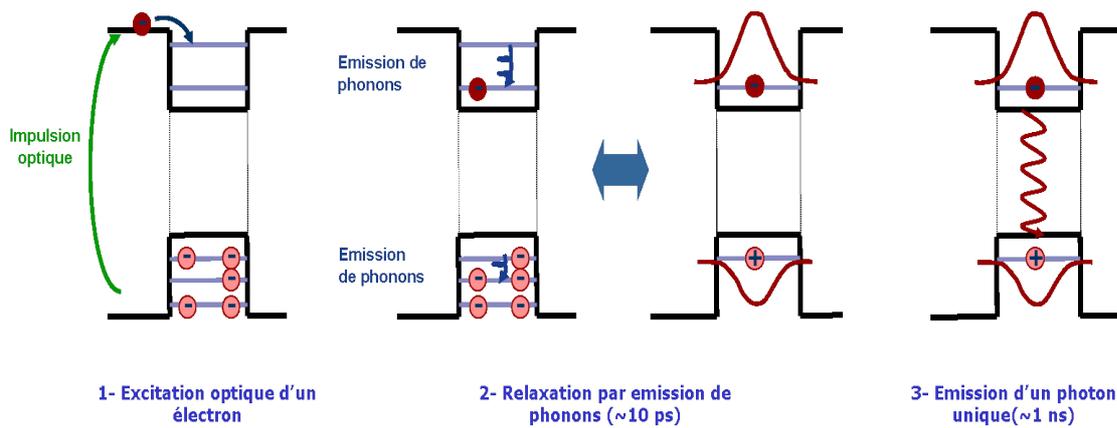


FIG. 1.13 – Principe d'émission de photons dans une boîte quantique.

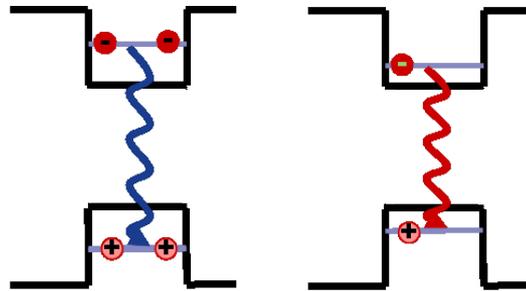


FIG. 1.14 – Principe d'émission d'un état de Fock à deux photons. Ces deux photons peuvent chacun être filtrés spectralement. L'écart en longueur d'onde varie entre 1 et 3 nm pour les boîtes InAs/GaAs

1.3.5 Epitaxie des boîtes quantiques InAs(P)/InP

Depuis le début des années 90, les travaux sur les boîtes quantiques en semiconducteur de la famille III/V se sont essentiellement portés sur le système InAs/GaAs. Le désaccord de maille relativement important entre l'InAs et le GaAs (7,2%) facilite la transition 2D–3D nécessaire pour la formation d'îlots tridimensionnels dans le régime de croissance de Stranski–Krastanow. Sur le système InAs/InP, le désaccord de maille n'est que de 3,2%, ce qui rend plus délicat la formation d'îlot. Il a fallu attendre les années 2000 pour voir apparaître un engouement pour l'utilisation de ce système pour la fabrication de boîtes quantiques. De plus, l'InP est aujourd'hui un matériau très répandu dans l'industrie des communications, notamment grâce à la réalisation de composants à puits quantiques sur substrat d'InP [001] par EPVOM. L'avantage des boîtes InAs/InP réside surtout dans la possibilité d'obtenir des longueurs d'onde d'émission comprises entre $1 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$, ce qui ouvre une large gamme d'application dans la gamme de longueur d'onde des télécoms ainsi que pour des applications à la détection de gaz de l'atmosphère, de nombreuses raies d'absorption caractéristiques étant situés autour de $2 \mu\text{m}$.

Épitaxie par Jet Moléculaire

En EJM, la croissance d'InAs sur un substrat d'InP ne donne pas dans tous les cas la formation de boîtes. De nombreux travaux ont reporté la formation d'îlots allongés (batonnets quantiques) sur un substrat orienté [001]. Le confinement dans ces structures est proche de celui observé dans les boîtes [59, 60] et elles peuvent être également utilisées comme milieu à gain.

Une autre approche consiste à utiliser des substrats désorientés d'InP [113]B de haut indice de réfraction [61]. Le coût de ses substrats et l'incompatibilité avec les substrats "classiques" orientés [001] de l'industrie des télécoms rendent cette technique peu porteuse en applications. On peut également citer des techniques qui consistent à ajouter une sous-couche en alliages quaternaires (InGaAlAs) afin de favoriser la formation de boîtes quantiques [62].

Du point de vue de la technique d'épitaxie, l'EJM reste une méthode de choix en laboratoire car elle permet un contrôle précis *in situ* (RHEED) de la croissance. Néanmoins, elle reste peu adaptée à l'industrie par rapport à l'EPVOM.

Épitaxie en Phase Vapeur aux Organométalliques

Les premiers résultats de croissance de boîtes quantiques InAs/InP par EPVOM ont été obtenus par Marchand *et al.* en 1997 [63]. Ils ont ensuite été suivis par d'autres équipes (voir par exemple [64]), et ils montrent dans l'ensemble qu'il est possible d'obtenir des boîtes quantiques et non des fils quantiques comme observé en EJM. La plupart de ces travaux fondateurs font état de l'importance des effets d'échange arsenic/phosphore (As/P) durant la formation des boîtes. Nous montrerons d'ailleurs que la composition des boîtes obtenues au laboratoire justifie l'appellation de boîte quantique InAsP/InP.

La croissance de boîtes quantiques InAsP/InP par EPVOM a débuté en 2004 au laboratoire et a fait l'objet des travaux de thèse d'Adrien Michon [8]. Ces travaux ont permis d'identifier les paramètres et les conditions de croissances requises pour l'obtention de boîtes quantiques émettant entre $1.2 \mu\text{m}$ et $2.2 \mu\text{m}$. Nous résumerons les principaux résultats sur les conditions de croissance dans le chapitre suivant. Mon travail de thèse se place dans la continuité de ces études et plus particulièrement pour étudier ces boîtes à l'échelle individuelle. Ceci a été rendu possible par le développement d'un montage de micro-photoluminescence et l'acquisition de détecteurs permettant un comptage de photons à $1.5 \mu\text{m}$.

Les problèmes de la détection à $1.5 \mu\text{m}$

Hormis des travaux théoriques, on ne recense que très peu d'études des propriétés optiques à l'échelle de la boîte unique. Cette observation est à mettre en rapport avec les outils de détection. Jusqu'à présent, nous nous intéressons seulement à la production de lumière vers $1.5 \mu\text{m}$, ce qui représente déjà une barrière technologique. Mais détecter un photon unique à $1.5 \mu\text{m}$ est aussi une barrière. Il n'existe que très peu de détecteurs suffisamment efficaces pour ce domaine spectral. Ce problème est aussi important que la génération de photons uniques à $1.5 \mu\text{m}$ et peut expliquer en partie de la différence de

résultats entre les boîtes InAs/GaAs (émettant vers 900 nm^{10}) et InAs/InP (émettant vers $1.5 \mu\text{m}$).

Le tableau 1.16 résume les principales caractéristiques des différents types de détecteurs pour des expériences de comptage de photons à $1.5 \mu\text{m}$. Notre choix s'est porté sur un détecteur supraconducteur de photons uniques (ou SSPD pour Superconducting Single-Photon Detector), qui permet un fonctionnement en continu avec des temps morts faibles (10 ns), un jitter annoncé de 50 ps et une efficacité quantique jusqu'à 5 %.

Un détecteur SSPD est composé d'un circuit de $10 \times 10 \mu\text{m}$ d'un matériaux supraconducteur, le nitrure de niobium (NbN), déposé sur un substrat de saphir. A la température d'utilisation de 3.2 K, le matériaux est supraconducteur. Une fibre optique est également positionnée au dessus de ce circuit. Le principe de fonctionnement des SSPD est le suivant (voir figure) :

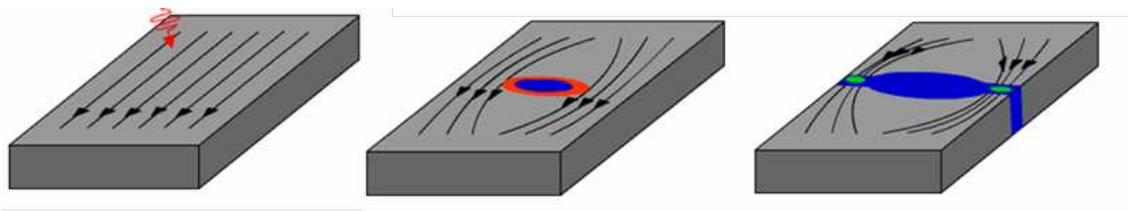


FIG. 1.15 – *Principe de fonctionnement d'un détecteur de photon unique supraconducteur. Une fois le photon absorbé, il y a création d'un point chaud à la surface du supraconducteur. Ce point chaud diffuse le long du circuit et les lignes de courant se resserent. Finalement, la densité de courant dépasse localement la densité critique et le circuit devient résistif, ce qui se traduit par un saut de tension.*

- On applique une tension de polarisation et le circuit est traversé par un courant électrique, inférieur au courant critique de transition supraconducteur ;
- Lorsqu'un photon est absorbé, il y a création d'un point chaud à la surface du circuit. Localement, le matériaux n'est plus supraconducteur ;
- Ce point chaud diffuse le long du circuit et les lignes de courant vont se resserer ;
- Lorsque la densité de courant dépasse localement la densité critique, le circuit devient résistif et on détecte un saut de tension, correspondant à l'arrivée du photon.

J'invite le lecteur à consulter les références [65], [66] et [67] pour une description plus complète de ce type de détecteur.

¹⁰Dans cette gamme de longueur d'onde et dans le visible, la technologie des photodiodes à avalanche est suffisamment mature pour qu'il existe commercialement des détecteurs de photons uniques performants.

	Détection à 1.5 μm			Détection entre 400 et 900 nm
	SSPD	APD		
Fabriquant	Scontel (continu)	Princeton Light Wave (trigger externe)	ID Quantique (trigger externe)	Détecteurs Silicium (continu)
Taux de répétition	-	1 kHz - 5 MHz	1 kHz - 10 MHz	-
Taux de comptage max.	100 MHz	100 kHz	100 kHz	20 MHz
Efficacité quantique (max)	2-5 %	13-20 %	10-20 %	35-70 %
Bruit	Moins de 100 (s^{-1})	3×10^{-5} - 10^{-4} (ns^{-1})	3×10^{-5} - 10^{-4} (ns^{-1})	100 (s^{-1})
Jitter	< 50 ps	120 ps	800 ps	50-400 ps
Réponse spectrale	1100-1600 nm	1300-1560 nm	1100-1600 nm	400-900 nm
Temps mort	10 ns	10 μs	10 μs	50 ns
Plage dynamique	10^6 (60 dB)	-	-	2×10^5 (53 dB)
Température d'utilisation	2-4 (K)	-50 ($^{\circ}\text{C}$)	-50 ($^{\circ}\text{C}$)	-50 ($^{\circ}\text{C}$) ou température ambiante

FIG. 1.16 – Tableau comparatif des différentes caractéristiques des détecteurs de photons à 1.5 μm , en distinguant les détecteurs supraconducteurs (SSPD) et les photodiodes à avalanches (APD)

1.4 Conclusion

Dans cette introduction générale, nous avons détaillé les applications possibles des boîtes quantiques InAsP/InP émettant vers $1.5 \mu\text{m}$: d'une part la possibilité de réaliser une source de photons uniques compétitive pour une propagation dans un réseau optique fibré, et d'autre part l'utilisation de ces boîtes comme milieu à gain pour la réalisation de nanolasers. Les principaux avantages des boîtes sont la large plage d'émission en longueur d'onde (allant de $1.2 \mu\text{m}$ à $2.2 \mu\text{m}$), de faibles pertes par des effets non-radiatifs à température ambiante et une technique de croissance adaptée à l'industrie sur un matériau largement répandu dans les composants d'optoélectronique : l'InP.

Pour des applications en cryptographie quantique, il est nécessaire de pouvoir isoler une boîte et de coder l'information sur chaque photon émis. Nous avons également abordé le problème de la détection à $1.5 \mu\text{m}$ qui, d'un point de vue technologique, représente autant de difficultés que d'émettre un photon unique. Dans le chapitre suivant, nous allons détailler le processus de croissance des boîtes quantiques InAsP/InP par EPVOM et dégager les propriétés optiques et dynamiques d'un ensemble de boîtes en fonction de la température. Nous verrons que ces émetteurs peuvent être utilisés comme milieu à gain dans des nanolasers à fort facteur β . L'étude détaillée de ce type de composant sera présentée au chapitre 5.

Chapitre 2

Croissance des boîtes InAsP/InP par EPVOM ; Dispositif expérimental

Dans cette partie, nous allons présenter les mécanismes de croissance des boîtes quantiques auto-organisées. Nous ferons un résumé des paramètres importants de croissance qui influent directement sur la luminescence des boîtes. Nous présenterons dans une deuxième partie les différents outils d'analyse, aussi bien structurale qu'optique. Enfin, nous présenterons une étude de la dynamique d'émission d'un ensemble de boîtes. Nous mettrons en évidence des différences entre des échantillons réalisés à différents moments avec pourtant le même jeu de paramètres nominaux de croissance. Il s'agit dans cette partie de faire une première introduction sur ces différences, ce qui donnera lieu à plusieurs discussions dans les chapitres suivants. Dans un premier temps, nous décrirons les moyens de caractérisation expérimentaux. Nous insisterons sur la description du montage de micro-photoluminescence résolue en temps que j'ai développé durant mon travail de thèse.

2.1 Etudes des propriétés optiques et structurales des boîtes : Outils d'analyse, dispositifs expérimentaux

Ce paragraphe décrit de manière générale les outils utilisés pour les expériences d'optique. Au début de ma thèse, le laboratoire possédait déjà la maîtrise de la croissance des boîtes. On pouvait contrôler l'influence des divers paramètres grâce à des études structurales au microscope électronique à transmission (TEM pour Transmission Electron Microscope). L'accès aux propriétés optiques ne pouvait se faire que sur des ensembles de boîtes. On disposait en effet d'un montage de photoluminescence où les échantillons étaient pompés optiquement par un laser continu (532 nm) par l'intermédiaire d'une lentille à grande ouverture numérique, à température ambiante ou à 77 K. On utilisait également un détecteur au germanium (Ge).

Il était nécessaire de développer un montage de micro-photoluminescence (μ -PL) afin de remonter aux propriétés optiques des boîtes à l'échelle unique lorsqu'elles sont à basse température. Durant ma thèse, j'ai monté et calibré entièrement ce montage. Bien

que le principe d'une expérience de μ -PL soit bien connu et répandu dans de nombreux laboratoires, y compris au LPN, les choses sont différentes lorsque les longueurs d'onde de travail sont proches de $1.5 \mu\text{m}$. De plus, ce banc d'étude s'est vu être constamment modifié par l'adjonction de détecteurs de photons uniques à $1.55 \mu\text{m}$, la possibilité de pompage en régime impulsif ainsi qu'un montage d'interférométrie (Michelson) permettant une spectroscopie fine des boîtes et objets émettant dans la bande des communications optiques.

Je commencerai par introduire le microscope électronique à transmission et je détaillerai ensuite le montage de macro-photoluminescence basée sur un F-TIR (pour Transformée de Fourier Infra-Rouge) commercial avant de détailler le montage de μ -PL.

2.1.1 Microscopie électronique en transmission (TEM)

Dans ce paragraphe, j'exposerai simplement le principe de la microscopie électronique en transmission. Cette méthode fait appel à une théorie complexe de la diffraction des ondes de matière associées aux électrons et j'invite le lecteur à consulter des ouvrages plus complets pour un aperçu plus détaillé de la méthode (par exemple [68], disponible en ligne).

Cette technique de microscopie repose sur l'interaction des électrons avec les matériaux à étudier. Ce dernier est bombardé par des électrons fortement accélérés ce qui permet d'obtenir une très haute résolution (de l'ordre de 0.1 nm suivant les modèles d'appareil). Avec cette technique, on est capable de réaliser des 'images' en profondeur d'un objet et non uniquement de sa surface. Les échantillons sont polis et ensuite amincis jusqu'à des épaisseurs de 100 nm environ par des attaques chimiques ou ioniques. Le faisceau d'électrons est diffracté par l'objet à étudier puis collecté par un jeu de lentilles. En choisissant les différents faisceaux diffractés, on peut alors reformer l'image de l'échantillon dans le plan image des lentilles et faire apparaître différents types de contraste, d'origine chimique ou d'origine mécanique (déformations).

L'acquisition par le laboratoire d'un nouveau microscope ('JEOL-2200FS', corrigé des aberrations géométriques) a permis de réaliser des études précises de la composition chimique des échantillons. Le mode utilisé est appelé EDX (pour Energy Dispersive X-ray). Dans ce mode d'analyse, on bombarde les atomes par des électrons très énergétiques qui arrachent des électrons de cœur de l'atome. Ces électrons peuvent ensuite se recombiner suivant des lois caractéristiques des éléments (loi de Moseley) et émettre des rayons X caractéristiques des éléments desquels ils ont été arrachés.

2.1.2 Microscope à transformée de Fourier dans l'infra-rouge (FTIR)

Afin de réaliser des spectres sur des échantillons en pleine plaque, c'est à dire sur un ensemble de boîtes quantiques, nous avons adjoint à un montage FTIR déjà existant ('Bruker', TENSOR) un module permettant d'enregistrer l'interférogramme du signal émis par l'échantillon et d'en faire la transformée de Fourier. Un détecteur InSb permet de couvrir une plage spectrale relativement grande, allant de $1.1 \mu\text{m}$ à $2.3 \mu\text{m}$.

Ici encore, le pompage optique se fait en continu avec un laser pompé par diode à 1064 nm doublé à 532 nm ('Spectra Physics', Millennia, 2 W). Les échantillons sont

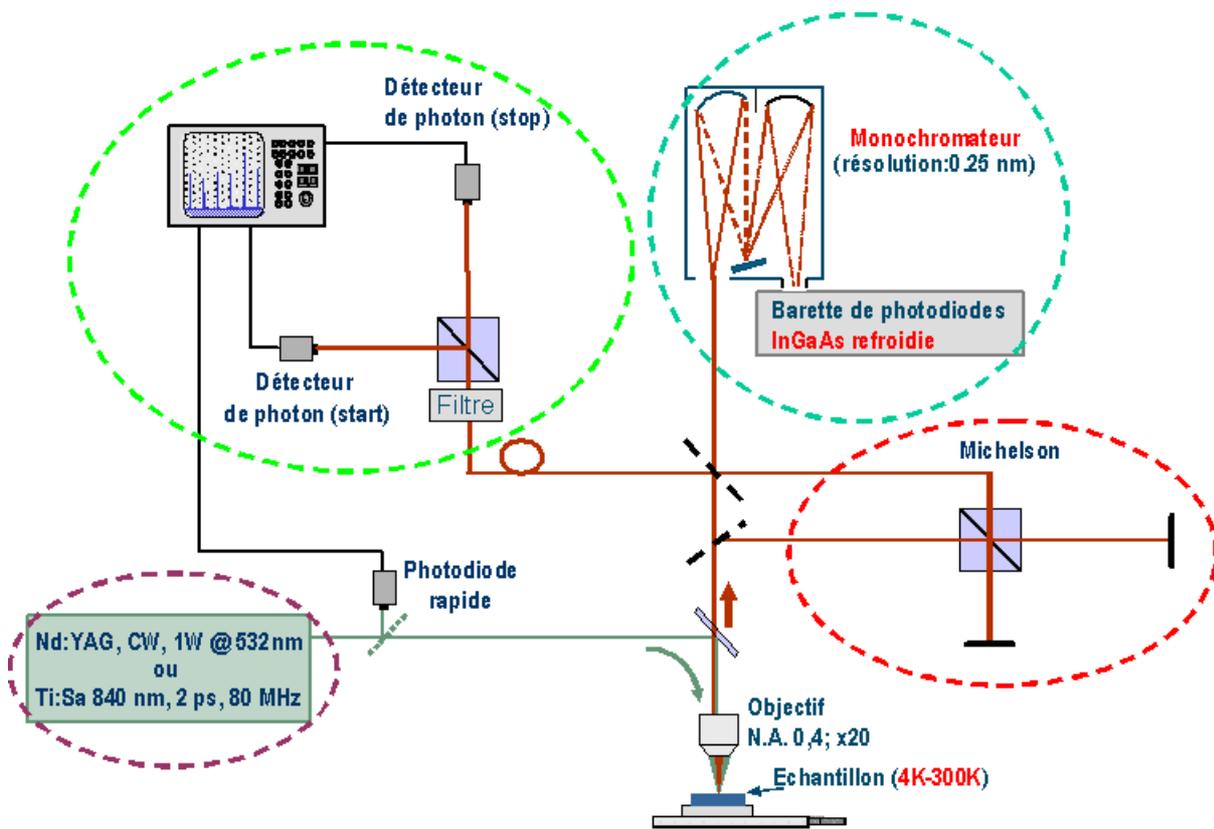


FIG. 2.1 – Schéma du banc expérimental de micro-photoluminescence.

placés à 45° du laser de pompe dans un cryostat à azote liquide permettant des études de photoluminescence à 77K. On vient collecter le signal de photoluminescence à 90° de la pompe avec une lentille de focale 50 mm. On utilise également un substrat poli double face de GaAs pour filtrer le laser. Enfin, le signal sortant du détecteur passe au travers d'une détection synchrone, le laser de pompe étant haché à une fréquence de 230 Hz.

2.1.3 Expérience de micro-photoluminescence résolue en temps : Dispositif expérimental

Afin d'étudier les propriétés de luminescence de nos nano-objets, nous avons développé un banc d'étude unique au laboratoire de μ -PL résolue en temps (figure 2.1). Les échantillons sont placés à l'intérieur d'un cryostat à flux d'hélium continu, autorisant des études en température de 4 K à 300 K. Ce cryostat est monté sur des platines Microcontrôle motorisées, commandables via une interface 'Labview' sur ordinateur. Les principaux organes du montage sont : le type de pompage, la collection du signal et sa détection, ainsi que son analyse. Nous allons détailler ces différents points.

Pompage optique

Les expériences de photoluminescence se font avec deux types de laser de pompe. Lorsque l'on parlera de pompage continu, il s'agit d'un laser continu pompé par diode à 532 nm ('Spectra Physics', Millennia, 2 W), polarisé linéairement en sortie. On contrôle ensuite

la puissance de manière précise grâce à deux lames $\lambda/2$ et deux cubes polariseurs. Dans certains cas que l'on précisera, nous avons également pompé nos échantillons en continu à des longueurs d'onde de $1.25\mu\text{m}$ à $1.45\mu\text{m}$ en utilisant un laser accordable fibré ('Tunics').

Pour les mesures résolues en temps, nous disposons également d'une entrée fibrée où l'on injecte un laser pulsé Ti-Sa ('Spectra Physics', modèle *Tsunami*) pompé à 532 nm à 8.5 W . En sortie du laser, la longueur d'onde utilisée est fixée à 840 nm et la puissance moyenne est d'environ 2 W en sortie de laser. La taille des impulsions en sortie ont été mesurées pour une valeur d'environ 5 ps , avec un taux de répétition de 80 MHz (soit une impulsion toutes les 12.2 ns). De même qu'en pompage continu, nous pouvons contrôler finement la puissance de pompe grâce à des lames $\lambda/2$ et cubes polariseurs. De plus, on dispose sur la ligne optique de pompe d'une photodiode rapide ('MenloSystems', $10\text{-}900\text{ MHz}$), qui permet de détecter les impulsions laser et de synchroniser nos mesures temporelles.

Collection et repérage des échantillons

Le faisceau est ensuite focalisé sur l'échantillon au travers d'un objectif de microscope à grande distance de travail ('Mitutoyo', M Plan Apo NIR, $\times 20$, $f=10\text{ mm}$, O.N=0.4), traité anti-reflet dans le visible et l'infrarouge. Le signal de $\mu\text{-PL}$ est ensuite collecté par ce même objectif. Le signal à $1.5\mu\text{m}$ est séparé du visible (laser) par une lame dichroïque qui réfléchit le visible et transmet l'infrarouge (longueur d'onde de coupure $\approx 700\text{ nm}$). Le faisceau est acheminé jusqu'aux détecteurs de notre choix via des miroirs traités or.

On visualise l'échantillon sur un moniteur vidéo par l'intermédiaire d'une caméra CCD. On focalise l'image de l'échantillon avec une lentille de focale 150 mm , ce qui nous permet de visualiser correctement tous les types d'échantillons étudiés pendant cette thèse (les plus petits objets étudiés étant des méssa de 400 nm de diamètre et les plus gros des cavités à cristaux photoniques de $10\mu\text{m}$ de long).

Analyse et détection du signal

On analyse la polarisation du signal collecté par l'intermédiaire d'une lame $\lambda/2$ suivie d'un cube polariseur traité à $1.5\mu\text{m}$. On filtre également le signal des résidus de laser par l'intermédiaire d'un filtre Si traité anti-reflet à $1.5\mu\text{m}$. Le signal est ensuite envoyé dans un spectromètre de focale 500 mm ('Princeton Instruments', SpectraPro 2500i monté avec un réseau de 600 tr/mm blazé à $1.6\mu\text{m}$). Enfin, en sortie de spectromètre, le signal peut être envoyé soit sur une barette de photodiode InGaAs ('Princeton Instruments', OMA V, gamme spectrale : $1.1\mu\text{m}$ à $1.6\mu\text{m}$) refroidie à l'azote (résolution sur la caméra (FWHM) : 0.315 nm), soit sur des détecteurs supraconducteurs de photons uniques (Superconducting Single Photon Detector (SSPD), 'Scontel'). On dispose également d'une caméra CCD en silicium ('Princeton Instruments', Spec-10, gamme spectrale : du visible à $1\mu\text{m}$).

Nous disposons de deux entrées fibrées (notée A et B) sur deux détecteurs supraconducteurs, chacun ayant une efficacité quantique d'environ 3% à $1.5\mu\text{m}$ avec des coups d'obscurité inférieurs à 100 coups noirs/s . Les signaux générés par les détecteurs sont envoyés sur un module de comptage de photons ('Stanford', SR400) et sur un oscilloscope numérique ('Lecroy', WavePro 735Zi, 2.5 GHz de bande passante) qui nous permet d'enregistrer des histogrammes de temps d'arrivée des photons (entre les deux voies A et B, ou entre une voie et le signal de la photodiode rapide) (voir figure 2.2 pour le schéma de

principe de mesure de durée de vie d'un émetteur). En sortie de spectromètre, le signal est donc couplé dans des fibres optiques standard télécom (monomode à $1.55 \mu\text{m}$, diamètre du cœur de $9.5 \mu\text{m}$, ref : SMF-28) par l'intermédiaire de coupleurs commerciaux. La séparation sur les deux voies se fait par un composant fibré 50/50 commercial comprenant deux ports d'entrée et deux ports de sortie.

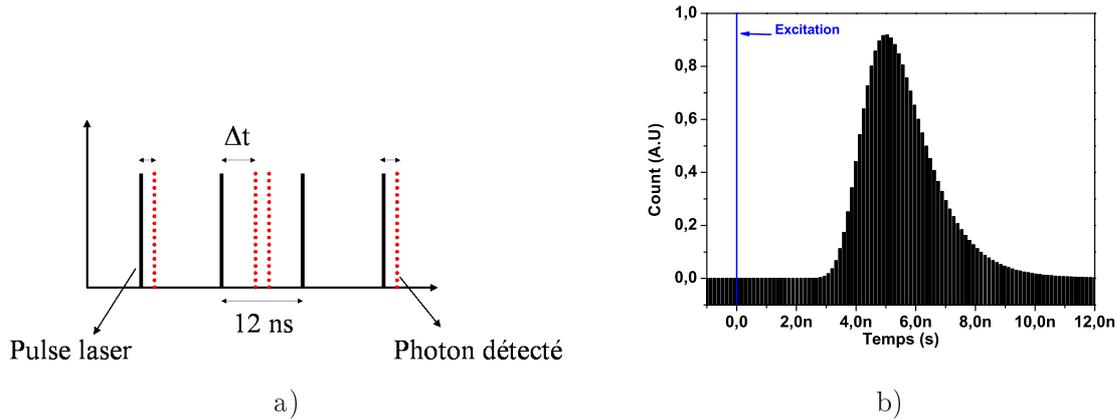


FIG. 2.2 – (a) : Schéma représentant le fonctionnement de la spectroscopie résolue en temps. En pratique on déclenche la mesure sur un photon détecté par les SSPD et on mesure l'intervalle de temps entre l'instant de déclenchement et l'instant d'arrivée de l'impulsion laser suivante détectée par la photodiode rapide. On peut également enregistrer les corrélations entre les deux voies A et B; (b) : Schéma représentant un exemple d'histogramme obtenu par notre méthode de détection de photon (simulation)

Lorsque les signaux ont une largeur spectrale inférieure à la résolution du spectromètre, nous pouvons analyser ce dernier à travers un montage de Michelson situé après l'objectif. Un des bras est monté sur une platine motorisée, commandée via l'interface 'Labview'. L'interférogramme peut ensuite être enregistré soit par la caméra InGaAs, soit par les SSPD.

Résumons les principales caractéristiques de ce banc expérimental et les différentes mesures possibles :

- Etude spectrale du visible à $1.6 \mu\text{m}$ (résolution de 0.25 nm à $1.5 \mu\text{m}$, taille du spot d'excitation $\approx 5 \mu\text{m}$);
- Etude en température de 4 K à 300 K ;
- Mesure de largeur de raie (méthode FTIR);
- Spectroscopie résolue en temps (résolution temporelle de 90 ps);
- Corrélations temporelles de photons à $1.5 \mu\text{m}$.

Il est important ici d'insister sur l'importance de la détection. En effet, produire des photons uniques à $1.55 \mu\text{m}$ n'est pas une chose facile. Il est aussi difficile de les dé-

tecter efficacement, d'où l'importance et l'originalité des détecteurs supraconducteurs qui offrent de bonnes caractéristiques (efficacité quantique de quelque %, faible bruit < 100 coups/seconde, fonctionnement en continu) par rapport à des détecteurs InGaAs.

2.2 Croissance des boîtes quantiques InAsP/InP

2.2.1 Mécanismes de croissance

Nous allons décrire le régime de croissance de Stranski-Krastanow de manière assez simple en partant de la description de la croissance d'un matériau non contraint. La réalité est évidemment plus difficile à décrire, notamment en raison de l'existence d'une grande variété de forme d'îlots. Pour décrire correctement la transition, il faut prendre en compte les différents types de surfaces possibles pour les îlots formés (accumulation de marches atomiques ou facettes orientées). Il est également nécessaire de calculer le champ de contrainte (non homogène) dans l'îlot. Nous employons le modèle décrivant la formation des boîtes quantiques qui a été présenté dans les travaux de thèse d'Adrien Michon au laboratoire. Pour plus de détails sur les mécanismes de croissance, nous invitons le lecteur à se reporter à son mémoire de thèse [8].

Dans le régime de croissance de Stranski-Krastanow (SK), la croissance est d'abord bidimensionnelle (voir figure 2.3 (a)). L'incorporation des espèces se fait sur des marches atomiques ou bien par nucléation entre adatoms¹, comme dans le régime de croissance classique 2D. L'énergie élastique s'accumule dans la couche quand l'épaisseur augmente ce qui doit l'amener à relaxer par formation d'îlots dans le cas idéal (voir figure 2.3 (b)). De nombreux modèles montrent cependant qu'il existe une taille critique pour la formation d'îlots [69] : la transition SK n'a donc pas lieu dès que l'épaisseur critique est atteinte et la formation des îlots dépend d'autres paramètres, notamment cinétiques. Pour de fortes vitesses de croissance, la surface est riche en adatoms et ceux-ci se rencontrent facilement pour former des îlots stables, ce qui permet d'obtenir de fortes densités de boîtes [70]. Au contraire, pour de faibles vitesses de croissance, la surface est pauvre en adatoms et ceux-ci doivent migrer sur de plus grandes distances pour se rencontrer. La nucléation plus lente peut diminuer la densité de boîtes nucléant spontanément, ce qui favorise la nucléation de boîtes sur des défauts ou sur des champs de contraintes résiduelles.

Dans le cas d'une nucléation essentiellement spontanée, les îlots formés sont éloignés les uns des autres d'une distance de l'ordre de grandeur de la longueur sur laquelle les adatoms ont diffusé à la surface du substrat. De ce point de vue, la forte mobilité des adatoms en MOVPE semble plutôt défavorable à l'obtention de plan de boîtes quantiques avec une forte densité surfacique.

Les îlots formés relaxent la contrainte en adoptant un paramètre de maille proche de celui du matériau massif. Ils constituent donc un site de nucléation favorable pour les adatoms arrivant sur le substrat. Après la nucléation des premières boîtes, le matériau apporté à la surface du substrat alimente la croissance des îlots et non plus celle de la couche de mouillage. La migration des adatoms sur le substrat étant plutôt aléatoire, les

¹def!

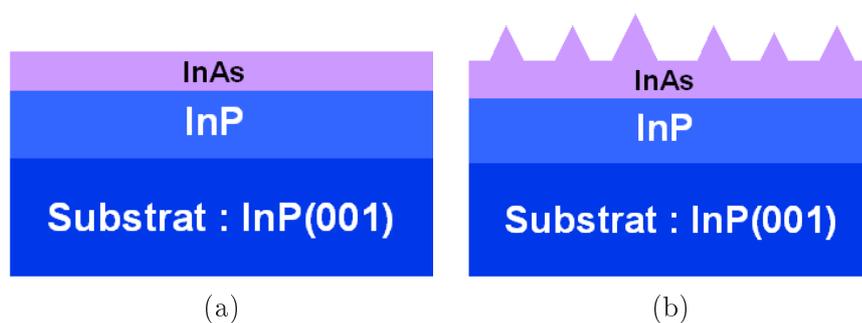


FIG. 2.3 – (a) : Croissance bidimensionnelle; (b) : Formation d'îlots par relaxation de contrainte par le procédé de SK.

adatoms vont statistiquement nucléer sur la boîte quantique la plus proche. Par conséquent, plus une boîte est isolée, plus la quantité de matériau alimentant sa croissance sera importante et plus elle sera grosse. En continuant de déposer le matériau, les îlots continuent de croître; la partie la plus relaxée au sommet de la boîte impose de plus fortes contraintes à sa base, qui est encore à l'accord de maille avec le substrat. Après une taille critique, des dislocations se forment à la base de la boîte. Ces dislocations, constituant des pièges non radiatifs pour les porteurs, sont fortement préjudiciables pour des applications optiques.

La cinétique de croissance joue donc un rôle important lors de la formation des boîtes quantiques. Notons enfin que pour obtenir une transition de croissance 2D-3D permettant d'obtenir des boîtes quantiques, il faut augmenter la longueur de diffusion des adatoms en surface pour favoriser une relaxation par formation d'îlots plutôt que par formation de dislocations dans une couche 2D. Cependant, dans le cas de la formation d'îlots, l'augmentation de la longueur de diffusion des adatoms réduit la densité d'îlots. La longueur de diffusion étant liée à la température et à la vitesse de croissance, le choix de ces deux paramètres de croissance apparaît crucial pour la fabrication de boîtes quantiques.

2.2.2 Effet des conditions de croissance et d'encapsulation sur la luminescence des boîtes

Comme nous avons vu, les conditions de croissance peuvent fortement influencer sur la formation des boîtes. Examinons dans un premier temps le rôle de la vitesse de croissance ainsi que celle de la vitesse d'encapsulation sur la longueur d'onde des émetteurs.

Le rôle de la vitesse de croissance

Dans la série des trois échantillons suivants, les conditions de croissance des boîtes sont les mêmes, mis à part la vitesse de croissance (flux d'As pendant la phase de croissance propre des boîtes). On peut dans un premier temps examiner les images TEM de ces trois échantillons sur la figure 2.4. On quantifie la matière déposée en introduisant le nombre de monocouches atomiques déposées par seconde (MC/s). Cette vitesse a été au préalable calibrée pour les différentes espèces et dépend des caractéristiques du bâti de croissance.

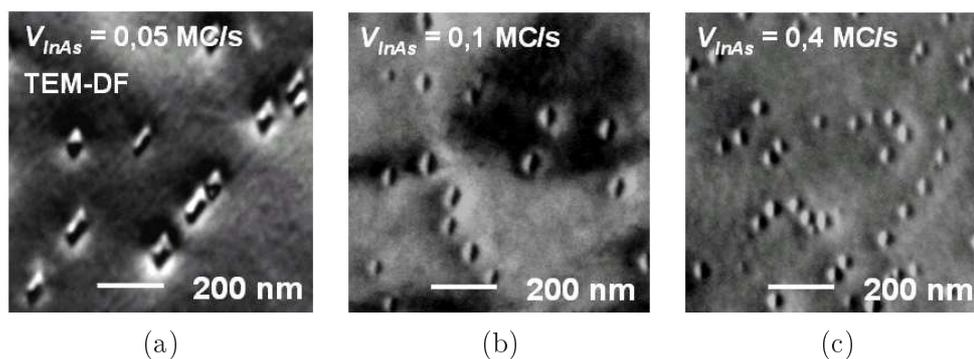


FIG. 2.4 – Images en microscope électronique en transmission de boîtes quantiques en vue plane. De gauche à droite (de (a) vers (c)) on augmente la vitesse de croissance on passe de $0,05MC/s$ (pour (a)) à $0,4MC/s$ pour (c). La densité des boîtes augmente avec la vitesse de croissance.

On constate que la densité de boîtes augmente avec la vitesse de croissance. Sur la figure 2.5 nous avons représenté les spectres de photoluminescence associés à ces échantillons. Ces spectres sont obtenus sur le F-TIR avec un détecteur InSb refroidi. On constate que la luminescence se décale vers les basses énergies lorsque la vitesse de croissance augmente. Or, on montre [8] que l'énergie de luminescence des boîtes est principalement donnée par leur dimension verticale ainsi que par leur composition chimique. On retiendra les deux hypothèses formulées dans [8, 71] afin d'expliquer l'évolution des spectres :

- Le décalage de l'émission vers les basses énergies aux forts flux d'As est essentiellement dû à la diminution de l'incorporation de phosphore dans les boîtes ;
- Des effets thermodynamiques dus aux différents rapports des éléments III/V favorisent la formation de grandes boîtes (en hauteur) sous fort flux d'arsine.

Le flux d'arsine pendant la phase de croissance joue un rôle important sur la formation des boîtes ainsi que sur leur densité. Un autre paramètre déterminant est la vitesse d'encapsulation. Nous allons résumer les principaux résultats dans le paragraphe suivant.

Le rôle de la vitesse d'encapsulation

Une fois que les boîtes ont été épitaxiées, nous refaisons croître une couche d'InP sur le dessus afin d'éviter leur désorption et de façon à obtenir le confinement 3-D. Les mécanismes d'encapsulation sont résumés sur la figure 2.6. Le bâti de croissance offre la possibilité de faire varier de manière indépendante le flux de Phosphine pendant la phase d'encapsulation et rend possible l'étude de l'influence de ce paramètre.

Durant la phase d'encapsulation, la hauteur des boîtes diminue. Nous nous attendons à une augmentation de la longueur d'onde d'émission avec l'augmentation de la vitesse d'encapsulation. Ce résultat attendu s'est vu vérifié lors d'une campagne de croissance d'échantillons correspondant aux mêmes conditions de croissance, mise à part la vitesse d'encapsulation (voir figure 2.7). Ces spectres ont également été obtenus sur le FTIR à température ambiante.

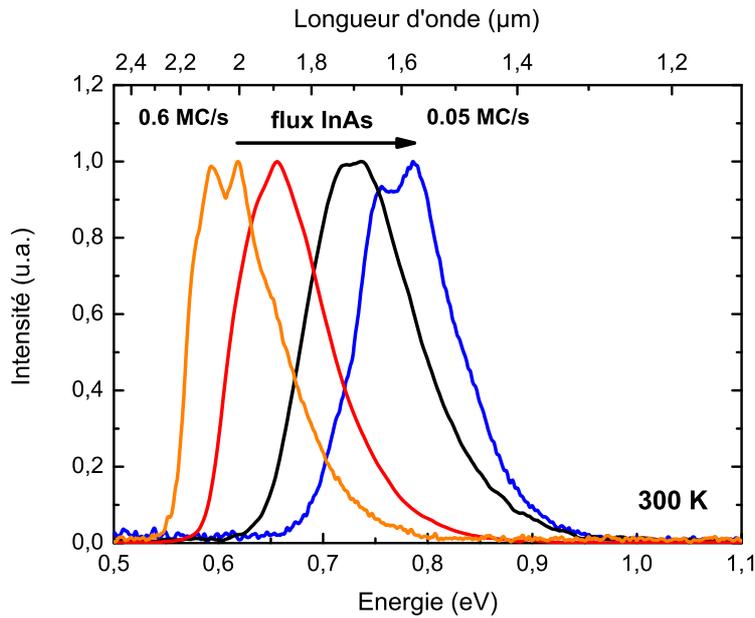


FIG. 2.5 – Influence de la vitesse de croissance sur la longueur d'onde d'émission des échantillons.

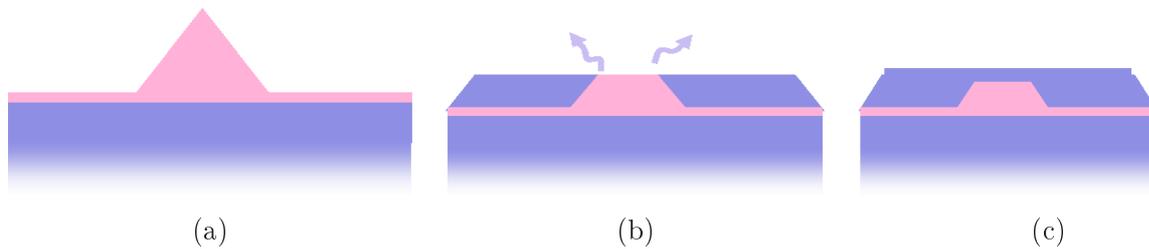


FIG. 2.6 – De gauche à droite (de (a) vers (c)) : Représentation du mécanisme d'encapsulation. La diminution observée de la taille des boîtes est attribuée à un effet de 'rabotage' du sommet des boîtes en présence des gaz dans le bâti.

Ce résultat est confirmé par des mesures TEM et AFM avant et après encapsulation (figure 2.8). Sous faible vitesse d'encapsulation, les boîtes restent plus longtemps exposées aux gaz présents dans le bâti ce qui provoque un rabotage de celles-ci. L'augmentation de l'énergie d'émission à faible flux d'encapsulation est accompagnée d'une structuration du spectre en plusieurs pics ainsi qu'un élargissement de la dispersion des hauteurs de boîtes. Les boîtes deviennent de moins en moins facettées et présentent un sommet en forme de plateau dont la hauteur varie d'une monocouche atomique. Les pics présents sur les spectres de photoluminescence sont attribués à différentes familles de boîtes dont la hauteur varie d'une monocouche atomique [42]. Ce type de résultat a également été observé par d'autres groupes [72, 73].

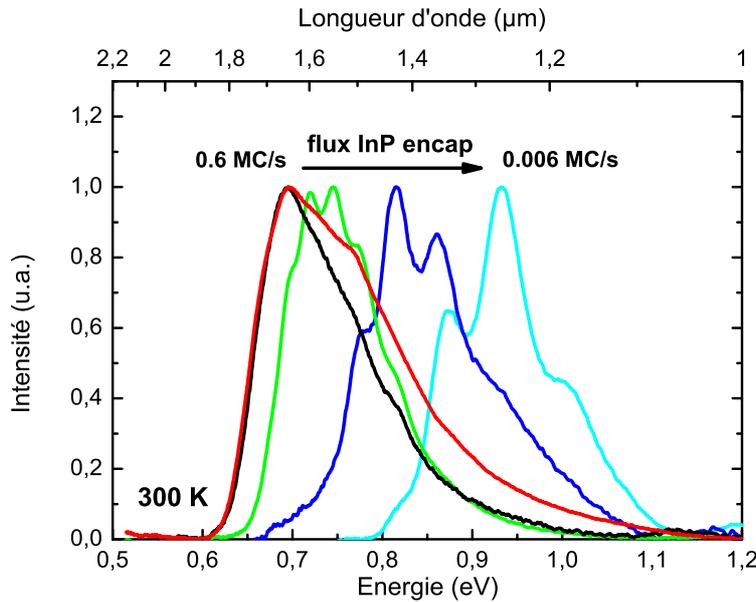


FIG. 2.7 – Rôle de la vitesse d'encapsulation sur la longueur d'onde d'émission des échantillons.

2.2.3 Propriétés structurales des boîtes quantiques ; analyse TEM

Dans cette partie, nous présenterons les résultats d'analyse structurale des boîtes quantiques. Nous nous attarderons sur un échantillon de référence (InP220) sur lequel nous avons effectué des analyses approfondies de photoluminescence .

A ce stade du mémoire nous allons commencer à différencier des échantillons dits 'd'ancienne génération' et ceux de 'nouvelle génération'. Les derniers ont été obtenus récemment pendant ces travaux de thèse. Ces deux générations diffèrent 'seulement' d'une ou plusieurs maintenances du bâti de croissance. Nous avons présenté précédemment les paramètres influant sur la croissance des boîtes. Dans la pratique, les valeurs de ces paramètres sont à revoir après chaque maintenance du bâti. Nous aurons l'occasion de revenir sur ce point dans la suite du mémoire.

TEM en vue plane : densité et taille des boîtes

La figure 2.9 représente une image TEM en vue plane de l'échantillon InP220 (échantillon de référence). Nous évaluons la densité surfacique des boîtes à environ $150/\mu\text{m}^2$. Les marches atomiques présentes sur la couche d'InAs 2-D favorisent la formation de boîtes quantiques. Nous observons également ce phénomène sur la figure 2.9 où les boîtes se trouvent alignées suivant des directions particulières. De plus, elles ont une forme de parallélogramme légèrement allongé selon les directions $[1\bar{3}0]$ et $[3\bar{1}0]$. L'histogramme de la statistique des tailles latérales est représenté sur la figure 2.10. On obtient pour la direction A une moyenne de 38.5 ± 7 nm et pour la direction B une moyenne de 37.2 ± 9 nm.

Autour de ces valeurs moyennes, on constate qu'il existe une large dispersion en taille dans les deux directions. On remarque facilement sur l'image TEM l'existence de

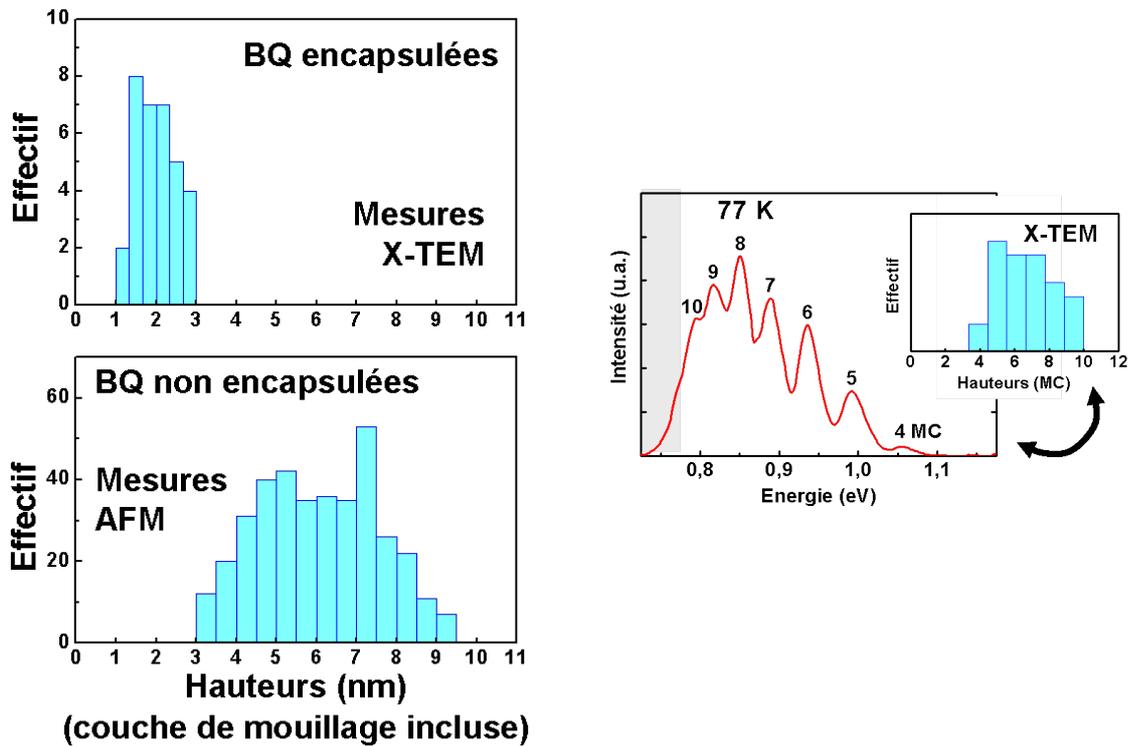


FIG. 2.8 – *A gauche en haut : Histogramme des mesures X-TEM des hauteurs de boîtes après encapsulation. En bas : Histogramme des hauteurs des boîtes avant encapsulation (mesures faites au microscope à force atomique (AFM)). A droite : Spectre structuré obtenu à faible vitesse d'encapsulation. Les différents pics sont attribués aux familles de boîtes dont la hauteur varie d'une monocouche atomique. Les figures sont issues de la thèse d'A. Michon.*

boîtes jusqu'à deux fois plus petites que d'autres. Nous pensons que cette différence a un rôle très important dans l'interprétation des spectres de μ -PL que nous présenterons dans le chapitre suivant.

TEM en coupe transverse : hauteur et profil de composition

La hauteur des boîtes peut être mesurée par une analyse TEM en coupe. On trouve alors une hauteur moyenne de 3.8 nm, équivalente à 12 monocouches d'InAsP. Cette mesure a été effectuée sur une dizaine de boîtes. En effet, la complexité de la mesure ainsi que le temps de préparation des échantillons ne permettent pas une mesure statistique plus importante. Nous pouvons également déterminer le profil de composition chimique suivant la direction verticale des boîtes, par analyse EDX. Sur la figure 2.11 on a tracé le profil de composition vertical pour l'échantillon InP220. L'échelle verticale est en pourcentage d'atomes total (In, P, As). Ce profil n'est pas symétrique et la concentration en arsine est plus importante à la base de la boîte (située à 4 nm du buffer d'InP). Elle atteint un maximum de 25% au 'centre' de la boîte, tandis que la concentration en phosphore suit le même profil non symétrique, pour une concentration qui atteint également 25% au centre. Ces concentrations justifient l'emploi du nom des boîtes InAsP/InP à cause de

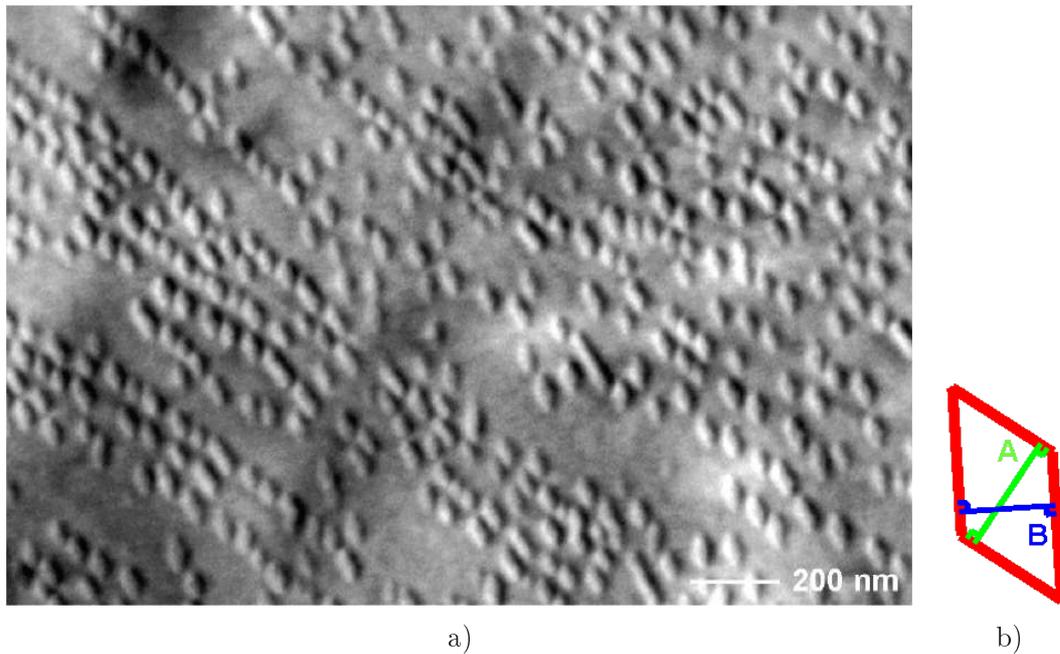


FIG. 2.9 – (a) Image TEM en vue plane de l'échantillon InP220. (b) Schéma d'une boîte quantique de forme pyramidale allongée, avec ses deux dimensions caractéristiques.

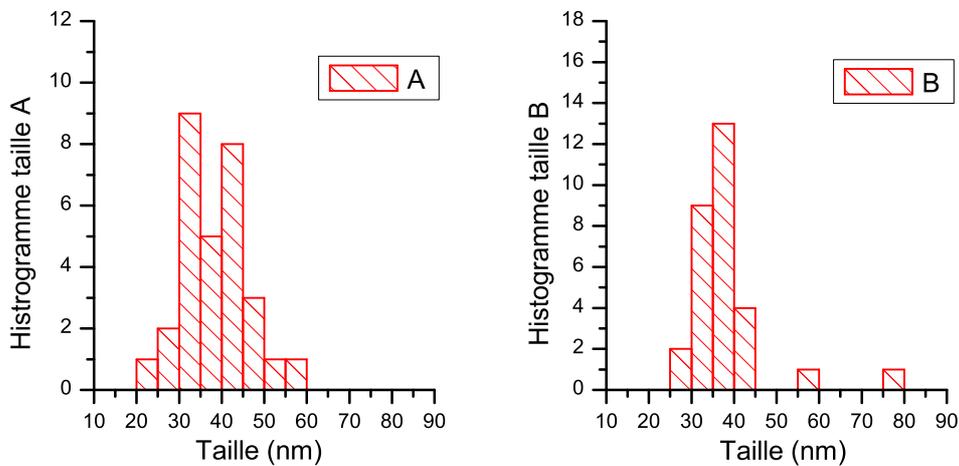


FIG. 2.10 – Histogrammes des dimensions caractéristiques des boîtes selon les directions A et B de la forme pyramidale (cf. figure 2.9)

l'incorporation de phosphore à l'intérieur de la boîte.

Cette étude a été effectuée sur une boîte relativement haute (environ 7 nm) car nous n'avons pas pu isoler une boîte plus petite pour faire cette analyse EDX. Nous supposons dès lors que ce profil reste inchangé pour les boîtes de plus petite taille. Enfin, des analyses complémentaires ont montré que la composition en arsine de la couche de mouillage est voisine de 15%.

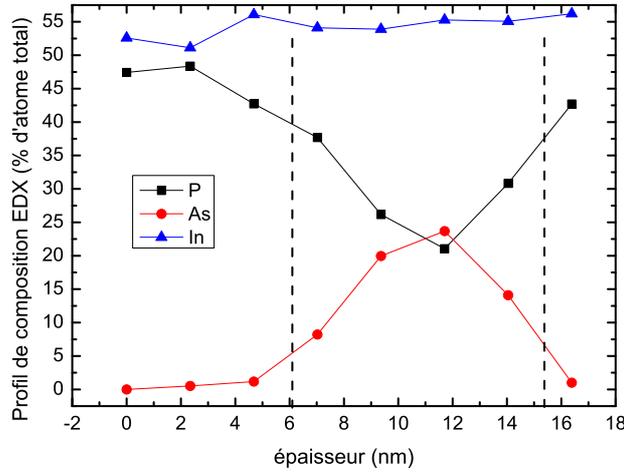


FIG. 2.11 – Profil de composition chimique d'une boîte de l'échantillon InP220. Les deux traits verticaux servent à matérialiser la boîte.

Ces données de composition servent également de point de comparaison avec les échantillons de nouvelle génération. Il semblerait (voir paragraphe suivant) que ces données (tailles latérales et composition chimique) diffèrent légèrement entre les deux générations d'échantillons. Ces résultats pourraient expliquer en partie les différences observées lors des caractérisations optiques. Pour confirmer cette hypothèse, il est intéressant de déterminer théoriquement l'allure des fonctions d'onde à l'intérieur des boîtes pour les deux générations. Ce travail est actuellement en cours.

2.2.4 Différences et investigation en cours sur les échantillons de nouvelle génération

L'absence de signature spécifique à des boîtes quantiques (raies fines de μ -PL observées à basse température) sur les échantillons de nouvelle génération nous a amené à entreprendre une nouvelle campagne de croissance, pour laquelle nous avons cherché à contrôler chaque paramètre important durant la phase de croissance des boîtes (température, flux d'arsine et de phosphine). Les échantillons sont ensuite analysés sur le F-TIR à température ambiante et comparés avec notre échantillon de référence. Les échantillons ont été également analysés au TEM et en μ -PL à basse température sur des mésas.

Différences structurales et chimiques

L'analyse statistique des images TEM en vue plane pour les échantillons de nouvelle génération indique que les boîtes auto-organisées présentent des dimensions latérales plus importantes. En guise de comparaison, nous prenons l'échantillon InP717 qui possède les mêmes paramètres de croissance que notre échantillon de référence (InP220), la seule différence étant que deux maintenances ont été effectuées sur le bâti de croissance.

On constate que les images en vue plane au microscope électronique à transmission sont similaires : les dimensions latérales des boîtes suivent la même distribution. Par contre, la densité de boîtes quantique sur l'échantillon InP717 est six fois moins importante (36 boîtes/ μm^2). Le profil de composition chimique diffère légèrement. La composition en arsine des boîtes issues de l'échantillon InP717 est de 20 % au centre de la boîte (contre 25% pour l'InP220). Au moment de la rédaction de ce mémoire, nous sommes toujours en train d'étudier l'origine de ces différences.

Différences spectrales sur un ensemble de boîtes

Les études menées au F-TIR montrent que les spectres sont relativement semblables aux spectres des échantillons de nouvelle génération (voir figure 2.12). Sur les échantillons de nouvelle génération, l'intensité est en moyenne 5 à 6 fois inférieure aux échantillons de références, ce qui peut être dû à la différence de densité surfacique de boîtes quantiques. On constate également que la distribution de l'échantillon InP717 est légèrement plus large spectralement (50 nm de plus environ à mi-hauteur). Nous avons également réalisé des mesures sur des échantillons ayant la même densité que pour l'échantillon InP220. On constate également une plus faible intensité de photoluminescence. Nous envisageons d'étudier à l'avenir l'impact de l'échange (As/P), car des résultats préliminaires sur des puits quantiques montrent que le gradient des espèces au niveaux des interfaces peut dégrader la durée de vie radiative des puits quantiques. Cet effet pourrait être à l'origine de la baisse d'intensité collectée.

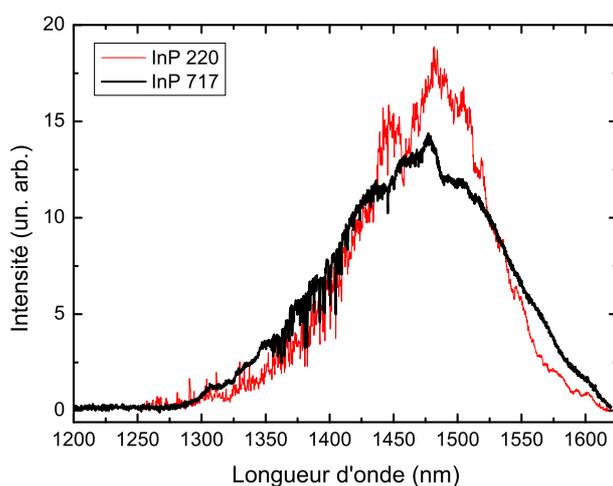


FIG. 2.12 – Comparaison des spectres sur un ensemble de boîtes, à 4 K, de l'échantillon de référence InP220 et de l'échantillon InP717 (intensité $\times 4.4$) obtenu après maintenance, pour des conditions d'excitation identiques.

Différences spectrales sur mésas à basse température

De même que précédemment, l'intensité collectée sur des mésas² est en général bien inférieure à celle des mésas de référence (InP220 et 228). De plus les spectres donnent des raies en moyenne plus larges (>2 nm) et nous ne sommes pas en mesure d'isoler des raies fines et intenses, quelque soit la longueur d'onde. Notre hypothèse est que les boîtes étant en moyenne plus grosses, les émetteurs se comportent alors comme des puits tronqués à émission plus large spectralement. Nous ne sommes pas en mesure de réaliser des études de corrélation de photon afin d'infirmer ou confirmer cette hypothèse³ en raison du peu de photons collectés.

Différences sur la dynamique d'émission

Même si les spectres sur ensemble de boîtes sont sensiblement identiques, nous avons pu noter des différences au niveau de la durée de vie des émetteurs. Nous allons présenter ces études réalisées sur un ensemble de boîtes dans le paragraphe suivant, en commençant par une étude détaillée de l'échantillon de référence. Puis nous décrirons les différences observées sur les échantillons de nouvelle génération.

2.3 Evolution de la photoluminescence sur un ensemble de boîtes quantiques

Jusqu'au début de mon travail de thèse, l'étude des propriétés optiques des boîtes quantiques InAsP/InP était réalisée au LPN sur un banc de photoluminescence classique où les échantillons pouvaient être portés à 77 K ou à 300 K. Ici, nous présenterons une étude de l'évolution de la dynamique d'émission d'un ensemble de boîtes, en fonction de plusieurs facteurs : la puissance d'excitation, la température (allant de 4 K à 300 K) et la longueur d'onde d'émission. Nous mettrons en évidence le comportement singulier des boîtes InAsP/InP en fonction de la température. Nous montrerons que ce système présente peu de sensibilité à des défauts non radiatifs, ce qui se traduit par une faible diminution de l'intensité totale collectée à haute température. Nous détaillerons cette étude sur l'échantillon de référence InP220 (sur lequel nous avons obtenu un dégroupement de photon sur boîte unique). Enfin, dans la partie suivante, nous aborderons les différences observées avec les échantillons de nouvelle génération.

2.3.1 Evolution spectrale en fonction de la température

Dans la suite, nous parlerons de spectres 'pleine plaque' lorsque nous étudierons l'émission d'un ensemble de boîtes. Le signal de pompe optique est simplement focalisé sur l'échantillon et nous analysons le signal de photoluminescence de l'ensemble de boîtes présentes dans le spot d'excitation. Compte tenu de la taille du spot (environ $5 \mu\text{m}$) et de la densité des boîtes ($150/\mu\text{m}^2$ pour l'InP220), nous collectons le signal provenant d'environ 10^4 émetteurs. Les échantillons sont placés dans un cryostat à flux continu d'hélium et

²Voir le chapitre suivant pour l'étude sur mésas

³Si l'objet se comporte comme un puit quantique, nous ne devrions pas observer de dégroupement de photons.

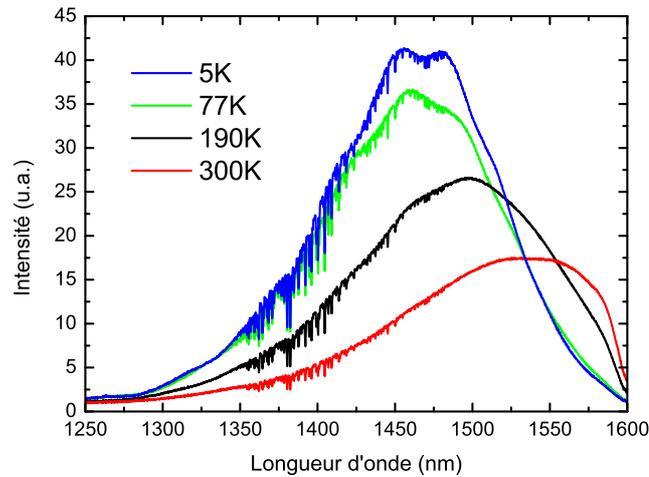
nous pouvons suivre l'évolution de la photoluminescence de 4 K jusqu'à 300 K de manière continue.

Tous les spectres que nous allons présenter sont enregistrés avec la même puissance de pompe (de l'ordre de $200\text{W}/\text{cm}^2$ à 840 nm en régime impulsionnel). L'excitation se fait en régime impulsionnel car nous réalisons dans le même temps des études de dynamique d'émission. Nous supposons que seules les transitions fondamentales des boîtes, avec une seule paire électron-trou dans chaque boîte, sont excitées à 4 K. En effet, avec ces puissances d'excitation, nous n'observons pas d'élargissement spectral qui serait synonyme de peuplement d'états excités. Cette hypothèse sera confirmée par des mesures de durée de vie (voir paragraphe 2.3.2).

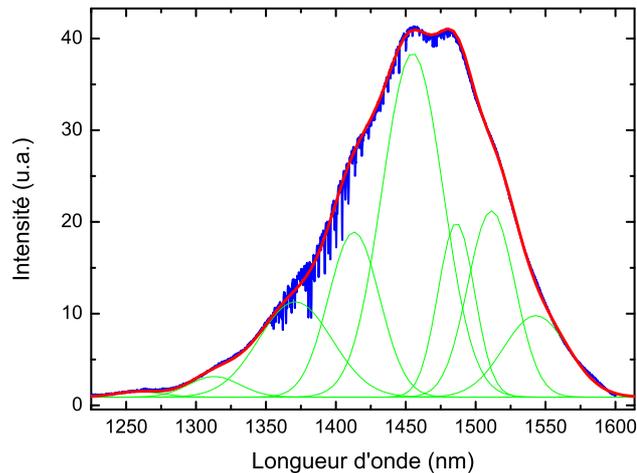
Pour chaque température, nous avons enregistré le spectre de photoluminescence (voir figure 2.13). Les fluctuations dans le spectre situées entre $1.35\ \mu\text{m}$ et $1.45\ \mu\text{m}$ correspondent à l'absorption de l'eau sur le trajet dans l'espace libre entre l'objectif et le spectromètre. Notons également que le gap de l'InGaAs se situe vers $1.59\ \mu\text{m}$ à -80°C , correspondant à la température d'utilisation de la caméra. D'où la décroissance abrupte du signal intégré vers ces longueurs d'onde. Afin de calculer l'intensité totale intégrée et passer outre cette coupure dans la détection, nous avons ajusté les courbes à haute température par des fonctions gaussiennes. Nous avons vérifié sur des spectres établis au F-TIR (non montrés ici) que ces derniers étaient symétriques et qu'un ajustement gaussien était justifié.

Commentaires sur l'allure des spectres

A basse température, on mesure une largeur spectrale à mi-hauteur d'environ 140 nm. Cette largeur augmente en fonction de la température, et nous attribuons cela à la luminescence des premiers états excités des boîtes, peuplés thermiquement. La largeur spectrale inhomogène à basse température est principalement due à la dispersion en hauteur des boîtes. Des études ont montré que pour les boîtes InAsP, l'écart en énergie entre les différentes familles de boîtes est plus faible que sur des boîtes InAs [8]. Ainsi, nous pouvons difficilement distinguer sur le spectre à 5 K l'émission des différentes familles de boîtes. Néanmoins, nous pouvons ajuster ce spectre en considérant la somme de huit gaussiennes de largeur et positions variables. Le résultat est montré à la figure 2.13 b). De ces ajustements, nous pouvons reporter sur le graphique 2.14 les longueurs d'onde d'émission des familles de boîtes en fonction de leur hauteur variant par palier d'une monocouche. Afin de remonter à la composition chimique des boîtes, nous pouvons appliquer un modèle développé par J.-Y. Marzin et J.-M. Gérard [74], qui donne l'énergie d'émission d'un puits quantique 2-D en fonction de sa taille et de sa composition. Bien que ce modèle ne soit pas complètement adapté au calcul exact de l'énergie d'émission d'objets 3-D, il permet d'obtenir un ordre de grandeur acceptable de la composition des objets et de leur énergie d'émission. La courbe expérimentale donne une composition d'environ 20% de phosphore dans les boîtes, qui est du même ordre que les résultats des mesures TEM (25 %) comme décrit au paragraphe 2.2.3.



a)



b)

FIG. 2.13 – (a) Evolution du signal de photoluminescence pour quatre températures différentes. La coupure abrupte vers $1.6 \mu\text{m}$ provient du détecteur InGaAs utilisé. (b) Spectre de photoluminescence à 5 K. En trait plein, nous avons représenté un ajustement du spectre par une somme de huit gaussiennes également représentées en trait fin.

Entre 5 K et 300 K, nous observons également une diminution du signal collecté d'un facteur environ $1/3$. On note également un déplacement attendu de la longueur d'onde du maximum de la distribution vers le rouge (de $1.46 \mu\text{m}$ à $1.55 \mu\text{m}$), caractéristique du comportement d'un matériau semi-conducteur (voir chapitre 3).

Premières conclusions :

Il est important de noter que l'intensité totale intégrée ne diminue que d'un facteur $1/3$ entre 5 K et 300 K. Nous pouvons comparer ces observations avec d'autres systèmes comme les boîtes InAs/GaAs. Pour ce type de boîtes, la photoluminescence est très faible

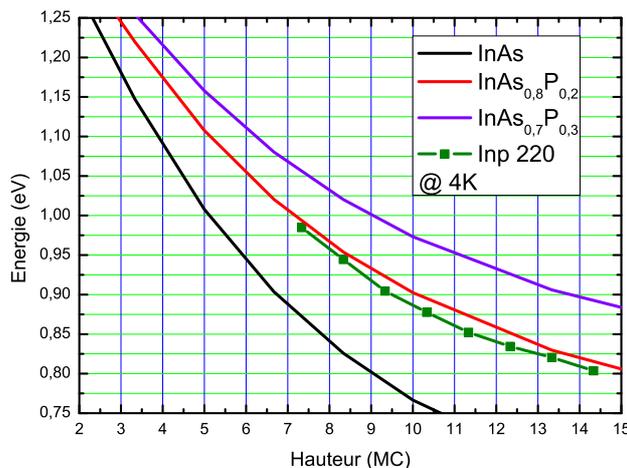


FIG. 2.14 – Simulation de l'énergie d'émission d'un puit quantique 2-D en fonction de sa taille et de sa composition à 5 K (traits pleins). Les énergies correspondant aux familles de boîtes quantiques de l'InP220 sont également reportées le graphique. Nous pouvons en déduire que l'incorporation de phosphore dans les boîtes est de l'ordre de 20 %.

à température ambiante, voir inexistante à cause principalement de l'échappement des porteurs dans la couche de mouillage (effet Auger), et à des effets de recombinaison non-radiatives. La première hypothèse consiste à penser que les boîtes InAsP/InP sont plus confinantes et moins sensibles à des défauts non radiatifs qui seraient activés thermiquement. Nous reviendrons sur ces points au cours de ce chapitre en comparant notamment le confinement des fonctions d'onde dans les deux systèmes de boîtes. Toutefois, nous envisageons deux types d'applications pour ce type d'émetteurs :

- Nous pouvons dans un premier temps chercher à isoler un émetteur unique et étudier ces propriétés optiques dans le but de comprendre les dynamiques de recombinaison et d'émission des porteurs. Nous chercherons à mettre en évidence le caractère d'émetteur de photons uniques à $1,5 \mu\text{m}$. La faible décroissance du signal pleine plaque à haute température nous permet également d'envisager la réalisation d'une source de photon unique à 77 K, température de l'azote liquide qui présente de nombreux avantages pratiques par rapport à l'utilisation d'hélium. Ce point sera abordé dans le chapitre 3.
- Le simple fait que l'émission des boîtes n'est pas (ou peu) dégradée à 300 K nous permet d'utiliser ces boîtes comme milieu à gain dans un milieu résonnant de type microcavité. Ces études seront réalisées à température ambiante et elles seront détaillées dans le chapitre 5.

2.3.2 Durée de vie et force oscillateur

En parallèle des mesures spectrales en pleine plaque, nous nous sommes intéressés aux propriétés dynamiques de l'émission des boîtes, toujours en fonction de la température.

Il est important de connaître la durée de vie des émetteurs lorsque l'on sera amené à utiliser ces boîtes en cavité. Ces données nous serviront alors à comprendre et simuler les différents régimes et mécanismes d'émission. De plus, ces données sont très utiles pour la compréhension des mécanismes d'émission des boîtes InAsP/InP. Au moment de la rédaction du mémoire, il n'y avait encore que très peu d'articles faisant état de mesure de propriétés dynamiques sur ce système. Par exemple, dans [75], les auteurs mesurent des temps de 1.35 ns pour les niveaux fondamentaux et des temps très courts (jusqu'à 50 ps) pour des états que les auteurs qualifient d'états excités. Dans [76], des mesures pompe-sonde sur un empilement de 72 couches de boîtes quantiques InAs/InP obtenues par EJM donnent des valeurs de 1.72 ns de durée de vie pour le niveau excitonique et 500 ps pour le niveau biexcitonique à 4 K. Dans les deux cas, aucune étude n'a été réalisée sur l'évolution de la durée de vie en fonction de la température qui donne une information plus précise sur la nature des états thermiquement activés.

Durée de vie d'un émetteur dans le cas d'un système à deux niveaux

Considérons le cas simple d'un système à deux niveaux (d'énergie E_0 pour l'état fondamental et E_1 pour l'état excité). Si on excite ce système par une impulsion optique courte devant la durée de vie de l'état excité, on vient peupler l'état E_1 qui peut ensuite se désexciter spontanément au bout d'un temps caractéristique τ en émettant un photon d'énergie $E_1 - E_0$. La probabilité $P(t)$ qu'un photon soit émis au bout d'un temps t s'écrit simplement comme une exponentielle décroissante :

$$P(t) = e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (2.1)$$

le paramètre τ correspondant à la durée de vie moyenne de l'état excité. Nous allons maintenant présenter les mesures expérimentales de ce temps τ .

Principe de la mesure

On se place toujours à une puissance de pompe de l'ordre de 200 W/cm^2 , à une longueur d'onde de 840 nm en régime pulsé (80 MHz de taux de répétition). Le signal de photoluminescence est filtré spectralement par le spectromètre, puis couplé dans une fibre optique pour être acheminé vers les détecteurs supraconducteurs.

La focale du coupleur utilisé pour injecter la lumière dans la fibre optique est de 15.6 mm. Compte tenu du diamètre de la fibre ($9.5 \mu\text{m}$) et de la lentille présente en sortie de spectromètre (de focale 100 mm), on estime que l'image géométrique du cœur de la fibre au niveau de la fente de sortie du spectromètre fait environ $59 \mu\text{m}$. Ceci est comparable à la taille des pixels de la caméra InGaAs ($50 \mu\text{m}$). La collection se fait donc sur une plage spectrale de l'ordre de 0.2 nm. Afin de toujours collecter le signal provenant de la même famille de boîtes, nous nous sommes placés au maximum de la distribution spectrale (voir spectres de la figure 2.13), et ce pour chaque température étudiée.

La synchronisation temporelle est donnée par le signal détecté par la photodiode rapide placée avant l'objectif. Le trigger de l'oscilloscope est placé sur le signal des détecteurs supra. A chaque déclenchement, on mesure le délai entre un photon détecté par les supra et le signal de synchronisation du laser provenant de la photodiode rapide. Sur la

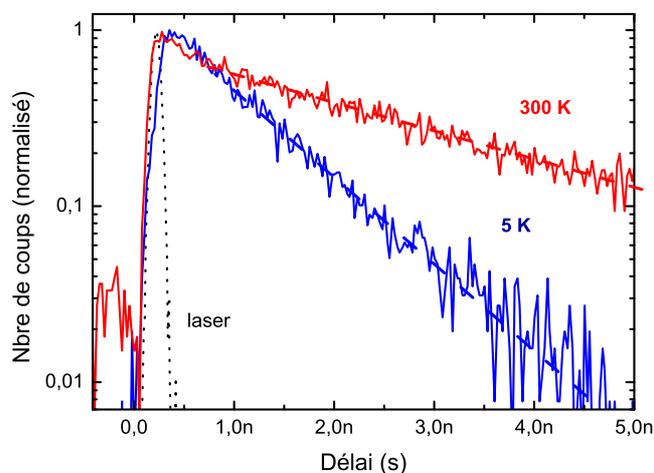


FIG. 2.15 – Exemple de deux histogrammes de durée de vie pour deux températures (5 K et 300 K). On représente également une mesure de la réponse temporelle du montage en mesurant les temps d'arrivée des photons provenant du laser d'excitation à 840 nm.

figure 2.15, on a représenté deux histogrammes typiques de durée de vie enregistrés sur notre montage, correspondant à deux températures extrêmes au niveau de l'échantillon. Cette figure est donnée en échelle logarithmique. On voit que la décroissance est de nature exponentielle, pour des temps supérieurs à 2 ns. Sur cette figure, nous avons également représenté en pointillé l'histogramme des temps d'arrivée pour le laser à 840 nm. La taille des impulsions laser étant inférieure à 10 ps, la largeur observée correspond à la résolution temporelle de notre montage, laquelle prend en compte les différents jitters (détecteurs, photodiode rapide, électronique, oscilloscope), soit environ 100 ps. Ceci est conforme aux spécifications des détecteurs donnés pour un jitter de l'ordre de 50 ps, tandis que le jitter des autres éléments ne sont pas connus.

Résultats

Sur la figure 2.16 nous avons représenté l'ensemble des résultats des mesures de durée de vie en fonction de la température. On remarque tout d'abord que pour des températures inférieures à 200 K, les données expérimentales peuvent être ajustées par des fonctions de type mono exponentielles, avec un temps de décroissance de l'ordre de 1 ns jusqu'à 77 K. De 77 K à 200 K, ce temps augmente jusqu'à 1.8 ns. Pour des températures supérieures à 200 K, nous devons introduire une décroissance bi-exponentielle, avec un temps court, τ_c , de l'ordre de 800 ps qui tend à rester constant, alors que le temps long, τ_l , augmente jusqu'à 3.5 ns à 300 K.

Afin de déconvoluer la réponse des détecteurs, nous utilisons la formule suivante⁴ pour ajuster nos données :

⁴Il s'agit de la convolution entre la fonction de réponse du détecteur (gaussienne) par le signal (déclin exponentiel)

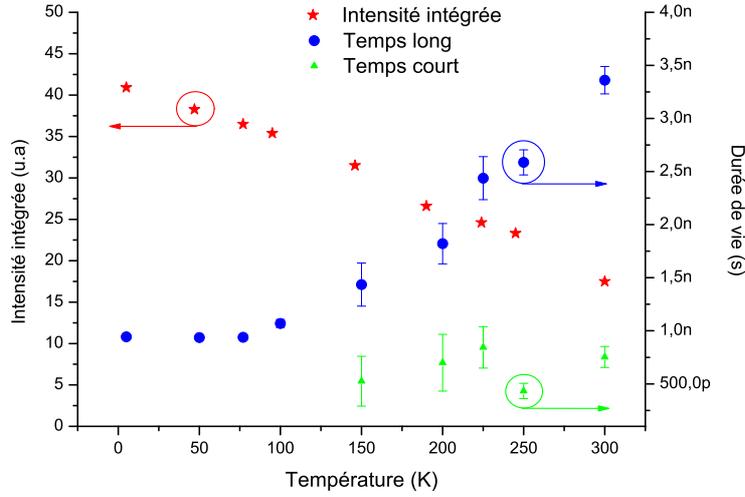


FIG. 2.16 – Evolution en fonction de la température de la durée de vie du niveau fondamental des boîtes (rond) et des états thermiquement activés (triangle). L'intensité intégrée totale est également représentée (étoile).

$$I_0 = I_{ground} + A \times \exp\left(\frac{\sigma^2}{2\tau^2} - \frac{(t - t_0)}{\tau}\right) \left(1 - \text{Erf}\left(\frac{\sigma^2 - (t - t_0)\tau}{\sqrt{2}\sigma\tau}\right)\right) \quad (2.2)$$

où I_{ground} représente le bruit de fond, A l'amplitude, σ le temps de réponse des détecteurs, t_0 l'origine des temps et τ le temps de décroissance. En pratique, les données sont donc traitées avec une somme de deux exponentielles corrigées de la réponse des détecteurs.

De même qu'en physique atomique, on utilise le terme d'orbitale électronique pour définir la probabilité de présence d'un électron dans la boîte quantique. Elle dépend de la fonction d'onde de l'électron (plus précisément de son module au carré). La première orbitale est notée s et peut contenir deux électrons, et la deuxième p contenant jusqu'à 6 électrons. Nous attribuons les temps courts à l'émission d'états excités thermiquement, comme par exemple une paire électron-trou dans un niveau- p provenant de boîtes à plus faible énergie (voir schéma 2.19). L'absence de contribution de ces temps courts à basse température confirme l'hypothèse faite précédemment sur l'intensité de la puissance de pompe et **nous pouvons donc attribuer les temps longs à l'émission des états fondamentaux des boîtes situées au maximum de la distribution.**

Si les temps courts proviennent d'états excités de boîtes à plus faible énergie, alors leur contribution doit être plus importante vers les hautes énergies (dans la mesure où le signal émis à cette énergie provient essentiellement d'états excités de boîtes). C'est ce que nous pouvons observer sur la figure 2.17 a) où nous avons représenté le rapport des amplitudes (A) des exponentielles rapides sur celles associées aux temps longs, à 300 K, en fonction de la longueur d'onde d'émission. Vers 0.7 eV (c'est à dire aux basses longueurs d'onde), le signal émis correspond principalement au signal contribuant aux temps longs. Le déclin est quasi-monoexponentiel (voir figure 2.17 (b)). En revanche, pour les faibles

longueurs d'onde, et donc haute énergie, le signal associé à l'exponentielle aux temps courts devient prépondérant (rapport supérieur à 10). Un exemple de mesure à deux longueurs d'onde situées aux deux extrémités de la distribution est présenté sur la figure 2.17 b)⁵. On voit clairement que pour les faibles longueurs d'onde, l'amplitude de l'exponentielle associée aux temps courts est nettement plus importante que celle associée aux temps longs. Nous avons également vérifié que la contribution de ces états aux temps courts augmente avec la puissance de pompe (à longueur d'onde fixée). La contribution de ces états thermiquement activés est plus importante à haute température et ceci se traduit par des barres d'erreur plus faible sur la figure 2.16.

La figure 2.18 montre un spectre mesuré à 300 K (noté $S(\lambda)$), translaté horizontalement du redshit (en pointillés sur la figure ($S(\lambda - \lambda_0)$)) pour pouvoir comparer visuellement l'élargissement spectral par rapport à 5 K (trait fin). Si nous divisons ce même spectre par les rapports τ_c/τ_l des durées de vie mesurées précédemment (trait épais sur la figure ($S(\lambda - \lambda_0)/\frac{\tau_c}{\tau_l}$)), ce spectre se superpose avec le spectre basse température. L'élargissement non-symétrique à 300 K provient donc de ces états thermiquement activés.

Toutes ces observations confirment l'hypothèse que **les temps rapides proviennent des états excités des boîtes situées à plus basse énergie. Ces états sont activés thermiquement et ne sont pas visibles en dessous de 100 K.**

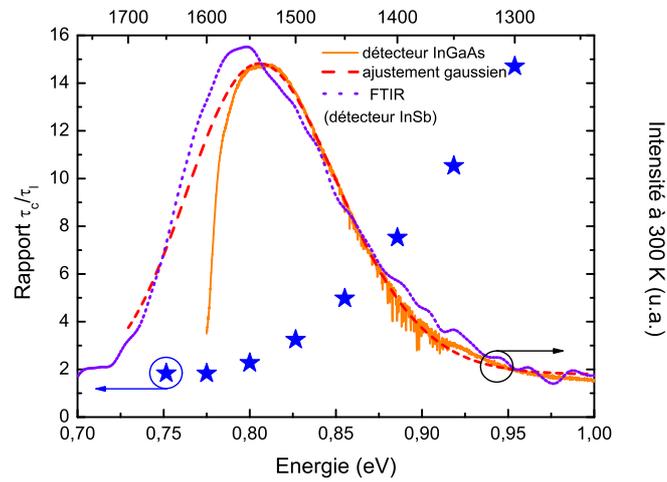
Interprétation de l'évolution des durées de vie en fonction de la température

Nous allons maintenant interpréter l'évolution des durées de vie en fonction de la température. Un comportement similaire de cette évolution (plateau constant et augmentation en fonction de la température) a déjà été observé sur des boîtes InAs/GaAs [77] ainsi que sur des boîtes InAs/GaAs en anneaux (quantum-ring) [78]. L'augmentation de la durée de vie des états fondamentaux en fonction de la température est due à la dissociation thermique de l'exciton et au piégeage des porteurs dans des états excités. On imagine par exemple que ces états peuvent être un électron ou bien un trou dans un niveau p , tandis que le trou ou l'électron correspondant reste dans un niveau s . Ces deux états n'offrent pas de possibilité de recombinaison radiative et il faut donc 'attendre' que les porteurs reviennent dans le niveau s pour pouvoir se recombinaison et émettre un photon (voir figure 2.19). On parle d'état non-radiant. Ceci entraîne une augmentation apparente de la durée de vie, sans changer le nombre de photons émis. En effet, on observe que le signal de photoluminescence ne décroît que d'un facteur 1/3 entre 4 K et 300 K.

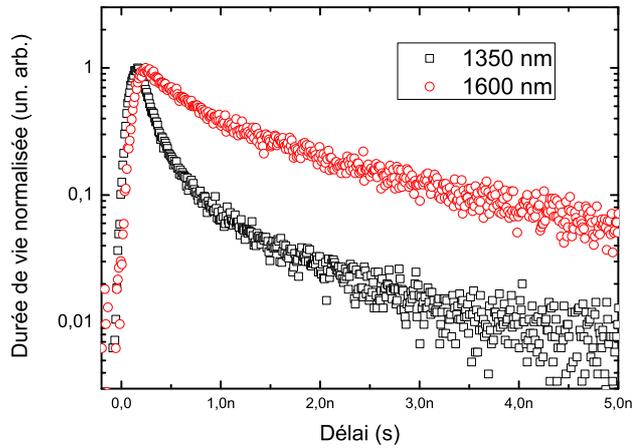
Afin de modéliser cette augmentation de la durée de vie en fonction de la température, prenons le cas d'un système à deux niveaux. Le niveau 1 correspond à l'état fondamental de durée de vie radiative τ_1 . Le deuxième niveau correspond à l'état non radiant⁶, noté d . L'écart en énergie entre ces deux niveaux est noté $\Delta(E)$. On considère que le peuplement de cet état suit une distribution de Boltzmann. Ainsi, la population de ce

⁵Le décalage temporel du maximum des durées de vie sur la figure 2.17 est dû à la dispersion chromatique dans les fibres. En effet, nous avons vérifié que pour les longueurs de fibres utilisées (8 m), on prévoit un décalage de plusieurs dizaines de picomètres, ce qui est bien observé

⁶Cet état est dit non radiant car les charges ne peuvent se recombinaison radiativement à cause des règles de conservations de moment cinétique)



a)



b)

FIG. 2.17 – (a) : Amplitudes des exponentielles en unité arbitraire associées aux temps 'courts' (τ_c) et 'long' (τ_l) en fonction de la longueur d'onde (étoile). On a également représenté un spectre pleine plaque enregistré sur le montage de μ -PL (trait plein) à 300 K (coupure du détecteur InGaAs vers 1600 nm). Un ajustement gaussien est utilisé dans le calcul de l'intensité intégrée (traits courts) et un spectre réalisé sur le F-TIR (pointillés) à 300 K (détecteur InSb) est présenté. (b) : Exemple d'histogrammes enregistrés à deux longueurs d'onde extrêmes (1350 nm et 1600 nm) à 300 K.

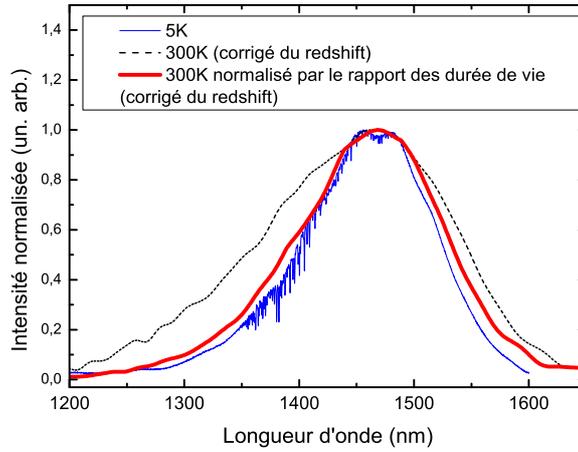


FIG. 2.18 – Spectre normalisé, $S(\lambda - \lambda_0)/\frac{\tau_c}{\tau_l}$, par le rapport des durées de vie courtes sur les longues, corrigé du redshift (trait plein épais). Le même spectre non normalisé, $S(\lambda - \lambda_0)$, et corrigé du redshift, est représenté en pointillés. En trait fin, nous représentons un spectre du même échantillon à 4 K. Une fois normalisé, le spectre à 300 K, $S(\lambda)$, se superpose au spectre à basse température. L'élargissement non symétrique observé à 300 K provient donc des états qui sont thermiquement activés.

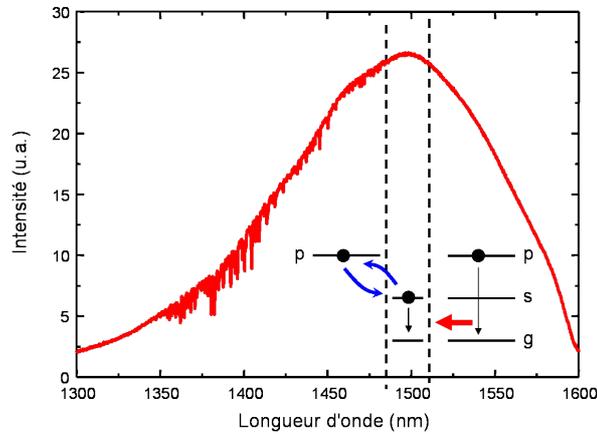


FIG. 2.19 – Mécanismes de recombinaisons à haute température (>100 K). La recombinaison radiative de paires électron-trou d'un niveau p provenant de boîtes à plus faible énergie contribue au signal collecté dans la fenêtre symbolisée en pointillé. D'autre part, un électron ou un trou peut être piégé dans un état p, et former un état non radiant. Au bout d'un certains temps, la charge revient dans son état s et peut se recombiner radiativement dans la fenêtre de détection.

niveau n_d vaut $n_d/n_1 = e^{\frac{-\Delta(E)}{kT}}$, où n_1 représente la population de l'état 1. On introduit également un temps caractéristique τ' pendant lequel les charges restent dans le niveau d avant de revenir dans le niveau 1. L'équations d'évolution s'écrit :

$$\frac{n_d}{n_1} = e^{\frac{-\Delta(E)}{kT}} \quad (2.3)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = -n_1/\tau_1 + n_d/\tau' \quad (2.4)$$

on obtient donc une équation pour $n_1(t)$:

$$\frac{dn_1}{dt} = (-1/\tau_1 + e^{\frac{-\Delta(E)}{kT}}/\tau')n_1 \quad (2.5)$$

Finalement, la durée de vie radiative τ apparente s'écrit :

$$\tau = \frac{1}{(1/\tau_1 - e^{\frac{-\Delta(E)}{kT}}/\tau')} \quad (2.6)$$

A température nulle, on retrouve bien $\tau = \tau_1$. Ce modèle est comparé à nos mesures expérimentales sur la figure 2.20. On trouve une valeur de ΔE de 22.4 meV pour un τ' de 0.5 ns. Ce temps relativement proche de la valeur de τ_1 explique pourquoi la durée de vie apparente triple à 300 K. Nous discuterons de la valeur de ΔE dans le paragraphe suivant. Sur le même graphique, nous avons fait figurer trois ajustements fait avec un modèle développé par Gurioli *et al.* [79] lui même issu de résultats théoriques sur les états noirs. Même si dans notre cas il ne s'agit pas d'état noir de spin, on peut considérer que la physique sous jacente est proche. En effet, dans ce modèle, on prend en compte l'existence de niveaux non radiants (état noirs) qui peuvent être peuplés thermiquement suivant une statistique de Boltzmann. Dans ce modèle, g représente le rapport entre la dégénérescence des états noirs par rapport à celle du niveau fondamental. La valeur de ΔE (de l'ordre de 40 meV) est en assez bon accord avec celle trouvée avec notre modèle pour un g proche de 10. Dans notre système, g pourrait représenter la dégénérescence des états non radiants.

Comparaison avec des simulations théoriques et boîtes InAs/GaAs

Il convient ici de comparer nos résultats expérimentaux aux prédictions théoriques faites sur des boîtes quantiques InAs/InP [80]. Dans cette étude, les auteurs montrent par des simulations que l'écart en énergie entre le fondamental et le premier niveau excité varie en fonction de la taille latérale de la boîte et de sa hauteur. Pour les électrons, il varie de 50 meV pour des boîtes de 2.5 nm de haut, à 55 meV pour une hauteur de 5.5 nm. Pour les trous, l'écart varie entre 30 meV et 21 meV pour les boîtes les plus hautes. Théoriquement, ce sont donc les niveaux excités des trous qui peuvent être thermiquement activés. Dans notre cas, on a trouvé avec les considérations précédentes une énergie ΔE de l'ordre de 22 meV pour le modèle à deux niveaux, et de l'ordre de 40 meV pour le modèle de Gurioli et al. Ces résultats confirment que ce sont bien les trous qui peuvent se piéger thermiquement dans des états excités.

Il est également intéressant de comparer les simulations théoriques des fonctions d'onde dans les boîtes InAs/InP toujours réalisées dans [80] avec nos observations expérimentales. Pour des températures supérieures, nous pouvons nous attendre à une baisse du signal de photoluminescence. En effet, si la fonction d'onde des niveaux p des trous (qui

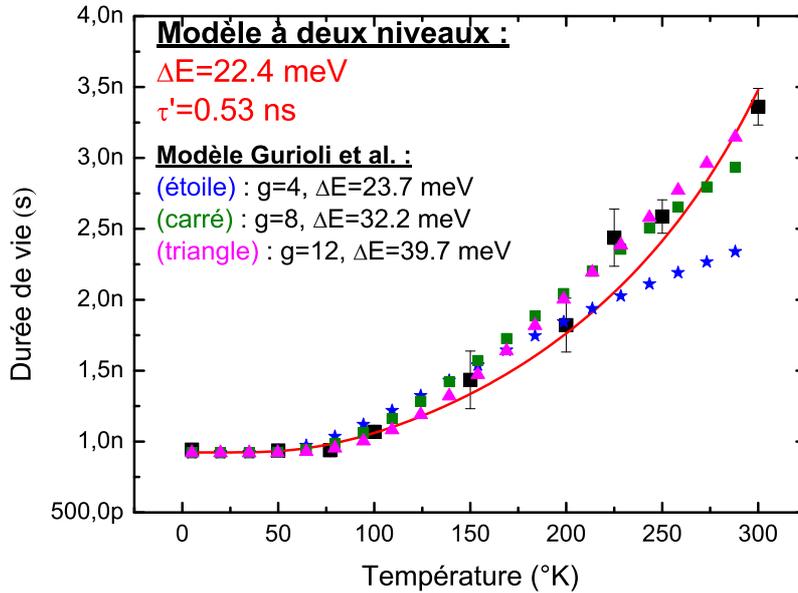


FIG. 2.20 – *Durée de vie du niveau fondamental des boîtes en fonction de la température. Comparaison avec le modèle à deux niveaux (trait plein). On représente également les résultats du modèle de Gurioli et al. pour trois valeurs du rapport de dégénérescence g .*

peuvent être thermiquement peuplés) n'est plus bien confinée à l'intérieur des barrières, elle peut être sensible aux défauts extérieurs à la boîte, entraînant des recombinaisons non radiatives. Alors que ce phénomène a déjà été observé pour des boîtes InAs/InGaAs [77], nous n'observons sur InP qu'une faible décroissance du signal. On peut comprendre ces observations en comparant le confinement des fonctions d'onde dans les deux cas, GaAs et InP. Pour des boîtes InAs/GaAs, des calculs théoriques donnent un recouvrement de la fonction d'onde des trous avec la boîte d'environ 85% [80], alors que pour des boîtes InAs/InP, ce recouvrement atteint 97% (voir figure 2.21). Nous faisons l'hypothèse ici que la présence de phosphore dans nos boîtes ne change pas de manière significative ces prédictions théoriques. **En conséquence, les boîtes InAsP/InP sont moins sensibles aux défauts non radiatifs présents à l'extérieur des barrières, à cause d'un meilleur confinement des fonctions d'onde.**

On peut d'ailleurs comparer nos résultats expérimentaux avec des résultats similaires obtenus sur des boîtes InAs/InGaAs (figure 2.22, gauche) et sur des boîtes InAs/InGaAsP/InP (figure 2.22, droite). Dans les deux cas, l'intensité intégrée chute brutalement à partir de 150 K dans un cas, et à partir de 50 K dans l'autre. Sur le système InAs/InGaAs, on observe également une chute de la durée de vie, conséquence de l'existence de recombinaisons non radiatives.

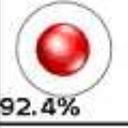
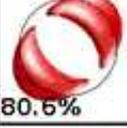
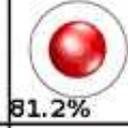
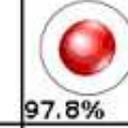
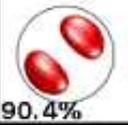
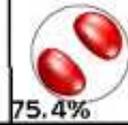
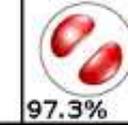
InAs/GaAs		InAs/InP	
(c) D=25, h=5.5		(d) D=25, h=5.5	
Electron	Hole	Electron	Hole
 92.4%	 80.6%	 81.2%	 97.8%
 90.4%	 81.8%	 75.4%	 97.3%

FIG. 2.21 – Simulation des fonctions d'onde des électrons et des trous dans une boîte InAs/GaAs et dans une boîte InAs/InP (tableau tiré de [80]).

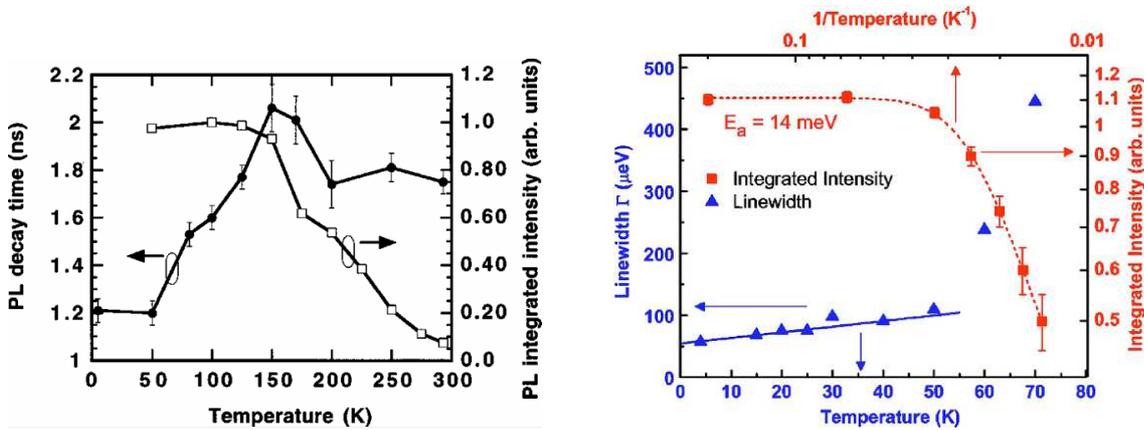


FIG. 2.22 – Evolution de l'intensité intégrée sur des boîtes InAs/InGaAs [77] (à gauche) et InAs/InGaAsP/InP [81] (à droite), en fonction de la température.

2.3.3 Durée de vie en fonction de la longueur d'onde d'émission. Force d'oscillateur

Nous avons vu précédemment que nous pouvions extraire jusqu'à 8 familles de boîtes, dont la hauteur varie d'une monocouche atomique. Nous avons cherché à connaître l'influence de la hauteur des boîtes sur leur durée de vie radiative à 4 K. Nous avons donc mesuré les durées de vie des émetteurs sur toute la distribution, par pas spectral de 50 nm. Les résultats sont regroupés sur la figure 2.23.

La durée de vie augmente avec la longueur d'onde, passant de 800 ps pour 1350 nm (0.92 eV) à 1.2 ns pour des dipôles émettant vers 1550 nm (0.8 eV). Par conséquent, plus la boîte est haute, plus sa durée de vie est grande.

Nous pouvons interpréter ces résultats en terme de force d'oscillateur f . Ce terme est directement relié la durée de vie des émetteurs et à leur énergie d'émission. La force d'oscillateur traduit l'interaction dipolaire lumière–matière, étant proportionnelle au carré du moment dipolaire et à la masse effective de l'électron. Elle s'exprime en fonction de la

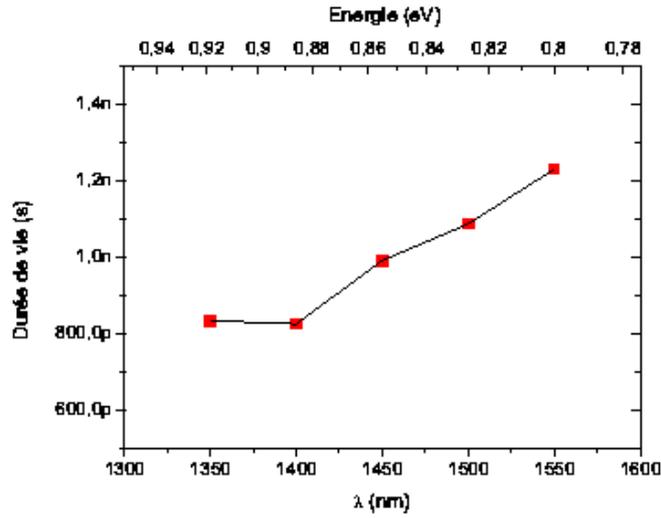


FIG. 2.23 – Durée de vie en fonction de la longueur d'onde pour l'échantillon InP220, mesurée à une température de 4 K.

pulsation $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$ et de la durée de vie radiative τ par la formule [82] :

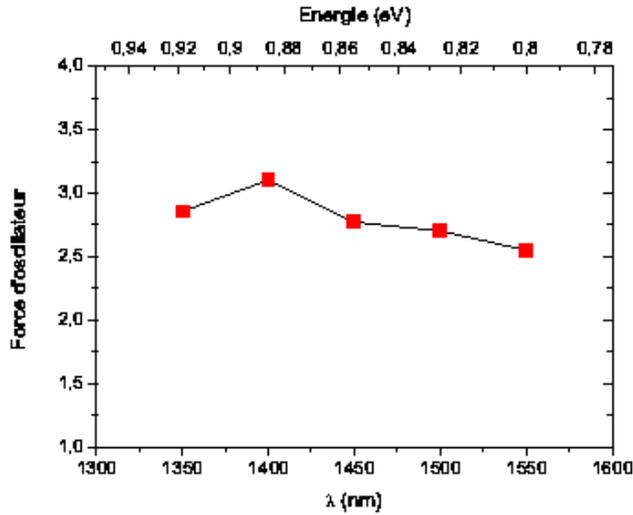


FIG. 2.24 – Force d'oscillateur calculé avec la formule 2.7 en fonction de la longueur d'onde.

$$f = \frac{1}{\tau} \frac{3\pi\epsilon_0}{n} \frac{2mc^3}{e^2\omega^2} \quad (2.7)$$

avec n l'indice de réfraction du milieu ($n=3.1$), m la masse effective de l'électron, e sa charge élémentaire et c la célérité de la lumière. Pour la masse effective des électrons, nous servons des valeurs mesurées dans [83], correspondant à une masse de $m = 0.09 m_0$, où m_0 est la masse de l'électron dans l'espace libre. Dans ces mêmes travaux, il est mentionné que cette masse effective varie en fonction du confinement des électrons dans la boîte, et donc en fonction de la taille de la boîte. Cette variation est suffisamment faible pour la supposer constante. La force d'oscillateur de nos émetteurs en fonction de la longueur

d'onde est présentée sur la figure 2.24. Elle diminue légèrement, passant de 3 à 2.5 pour les boîtes les plus hautes. Plus les fonctions d'onde des électrons et des trous se recouvrent et plus l'interaction coulombienne augmente la force d'oscillateur [46]. Ainsi, le recouvrement des fonctions d'onde est meilleur pour les petites boîtes émettant vers $1.3 \mu\text{m}$. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que sur les boîtes auto-organisées InAs/GaAs (de l'ordre de 10) mais elles sont bien inférieures aux valeurs mesurées sur des boîtes 'naturelles' à fluctuation d'interface de GaAs (de l'ordre de 75 [82]).

Les faibles valeurs mesurées de force d'oscillateur justifient également l'utilisation du formalisme en couplage faible lorsque nous utiliserons ces boîtes dans des microcavités à cristal photonique (voir chapitre 4).

2.3.4 Comportement des échantillons obtenus après maintenance

Sur la série d'échantillons après maintenance, nous n'avons pas réalisé d'étude complète de durée de vie en fonction de la température. Des mesures montrent que le temps de vie suit le même comportement à 4 K et 300 K (environ un triplement de la valeur). Nous n'observons pas de diminution de la durée de vie à 300 K, qui serait la signature d'effets non-radiatifs. De plus, hormis une intensité totale intégrée plus faible que les échantillons de référence, la diminution du signal total de entre 4 K et 300 K est comparable aux échantillons de référence.

Par contre, nous pouvons relever des différences au niveau de la dynamique d'émission

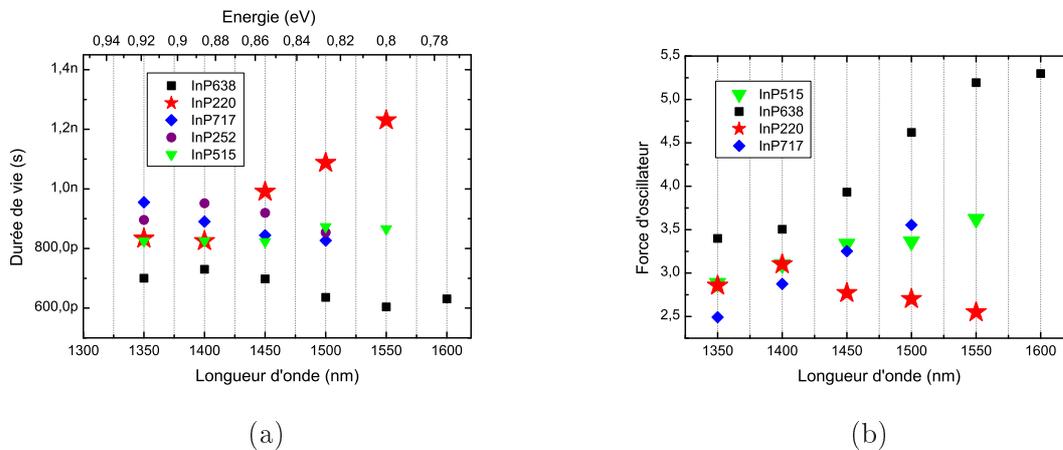


FIG. 2.25 – *Durée de vie (a) et force d'oscillateur (b) des échantillons de nouvelle génération en fonction de la longueur d'onde d'émission*

en fonction de la longueur d'onde d'émission. La figure 2.25 (a) regroupe des mesures de durée de vie radiative effectuées à basse température (4 K) sur des échantillons de nouvelle génération (InP515, InP638 et InP717) comparées à l'InP220. Pour tous ces échantillons, la durée de vie diminue en fonction de la longueur d'onde. Ceci est contraire au fait que plus la boîte devient grosse et moins le recouvrement des fonctions d'onde est efficace. On note également un comportement inverse de l'évolution des forces d'oscillateur (voir figure 2.25 (b)).

Ces observations ne sont pas encore comprises, mais elles constituent une preuve

que la nature des objets présents sur les échantillons de nouvelle génération diffère des échantillons de référence. Dans les travaux de thèse d'E. Peter, [46], des mesures de la force d'oscillateur en fonction du diamètre des boîtes quantiques (à fluctuations d'interfaces) sont décrites. La figure 2.26 est extraite de ces travaux et on remarque notamment que la force d'oscillateur augmente pour les grandes boîtes. Dans notre cas, les échantillons de nouvelle génération pourraient présenter des tailles plus importantes par rapport aux échantillons d'ancienne génération, ce qui se traduit par une force d'oscillateur plus grande.

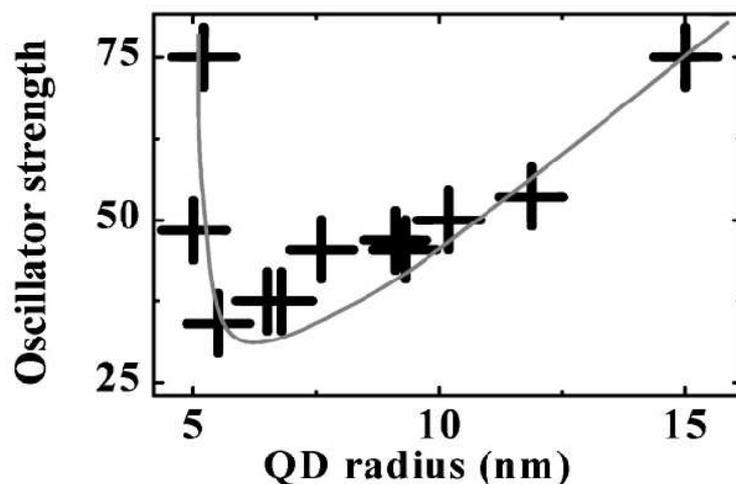


FIG. 2.26 – Force d'oscillateur en fonction de la taille des boîtes à fluctuations d'interface (Thèse d'E. Peter).

2.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté les différents moyens que nous possédons pour caractériser nos objets. Les travaux précédents réalisés au laboratoire [8] ont permis d'identifier les paramètres importants qui interviennent dans la croissance des boîtes quantiques. Néanmoins, il existe encore des effets subtils à maîtriser pour pouvoir contrôler parfaitement les objets que l'on désire obtenir.

L'étude de la dynamique d'émission d'un grand nombre de boîtes quantiques a permis de mettre en évidence la faible influence des effets non radiatifs à haute température sur les boîtes InAsP/InP. Principalement, on retiendra que la durée de vie des émetteurs ne chute pas à température ambiante et que l'intensité totale intégrée diminue d'un facteur 1/3 entre 4 K et 300 K. Ces boîtes sont donc de bonnes candidates à la réalisation de milieu à gain optique à température ambiante et les résultats obtenus avec ces mesures d'ensemble laissent envisager la réalisation d'une source de photon unique à 77 K.

Les études de dynamique d'émission ont également mis en avant des différences entre des échantillons qui dans un premier temps paraissaient identiques (même signature spectrale de l'ensemble de boîte). Cette différence apparaît également sur les spectres de boîte unique, réalisés sur mésas. Nous allons détailler ce type de mesures dans le chapitre suivant et nous mettrons en évidence un phénomène de cascade radiative pouvant permettre l'émission de photons uniques.

Chapitre 3

Spectroscopie sur boîtes uniques

Dans le chapitre précédent, nous avons analysé les propriétés optiques d'un ensemble de boîtes quantiques. L'objectif de ce chapitre est l'étude des boîtes à l'échelle unique. La réalisation d'une source de photon unique nécessite en effet de pouvoir isoler un seul émetteur. Nous décrirons la méthode utilisée pour effectuer un filtrage spatial permettant d'étudier un dipôle unique. Contrairement à un atome dans le vide, une boîte quantique est un objet quantique qui est constitué de plusieurs atomes, eux-mêmes placés dans une matrice solide pouvant interagir fortement avec son environnement. Nous présenterons dans un premier temps quelles sont ces interactions. Nous décrirons des mesures spectrales et des mesures de durée de vie en fonction de la température et de la puissance d'excitation, effectuées sur des boîtes uniques. Enfin, nous mettrons en évidence expérimentalement un phénomène de dégrouement de photons, signature de l'émission de photon unique.

3.1 Description des échantillons de référence ; Fabrication des mésas

3.1.1 Choix de l'échantillon

Parmi les différents échantillons à disposition, obtenus pour différents paramètres de croissance, nous avons retenu deux échantillons dont la distribution est centrée sur 1.5 μm et sur lesquels nous pouvons extraire du spectre une structuration fine (limitée par la résolution du montage) en bord de distribution à faible excitation et à basse température (4 K). Cette structuration est une première preuve de la présence de boîtes quantiques (voir figure 3.1). Cette signature est observable seulement sur les échantillons d'ancienne génération (voir chapitre précédent).

On rappelle que la croissance des boîtes se fait sur un buffer d'InP lui-même déposé sur un substrat d'InP orienté [001] (voir chapitre 2 pour les étapes de croissance). La température de croissance est de 510°C. Pour cet échantillon, 6.3 monocouches (MC) d'InAsP ont été déposées à une vitesse de 0.36 MC.s⁻¹. Pendant la phase de croissance le ratio Phosphine/Arsine est de 30. Les boîtes sont ensuite recouvertes d'une épaisseur

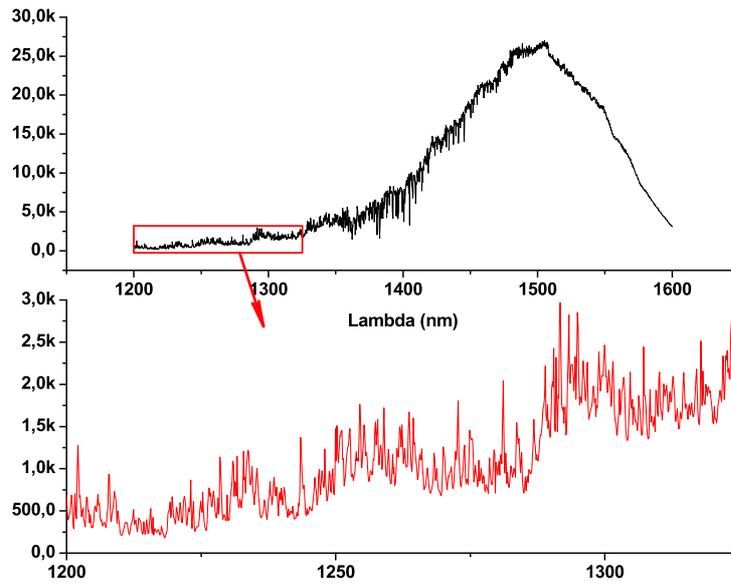


FIG. 3.1 – Spectre d'un ensemble de boîtes à très faible puissance d'excitation à basse température de l'échantillon InP228. En zoom, on distingue de nombreuses raies fines (<1 nm) correspondant à l'émission de plusieurs boîtes quantiques.

de 63 nm d'InP à la vitesse de 0.2 MC.s^{-1} pour l'échantillon InP220 et 0.28 MC.s^{-1} pour l'échantillon InP228. Les paramètres de croissance pour ces deux échantillons sont résumés dans le tableau 3.2 (configuration avant maintenance).

	Substrat	Température de croissance	Flux de TMI (BQs)	Temps d'InAs	Flux d'arsine	Flux de phosphine	Flux TMI (Encap)	Flux de phosphine (Encap)
InP 220	InP :Fe	510°C	50 cc	0.3'	10 cc	300 cc	50 cc	300 cc
InP 228	InP :Fe	510°C	50 cc	0.3'	10 cc	300 cc	70 cc	300 cc

FIG. 3.2 – Paramètres de croissance pour les deux échantillons étudiés (InP220 et InP228)

3.1.2 Fabrication des mésas

Afin de remonter aux propriétés optiques d'une boîte quantique unique et vu la densité des échantillons, il est nécessaire de faire un filtrage spatial sur l'échantillon. Plusieurs méthodes ont été envisagées. On peut tout d'abord installer sur le parcours optique un microscope confocal. Dans ce cas, un pinhole vient filtrer spatialement le signal dans le plan focal d'une lentille. En pratique, nous perdons trop de signal et surtout, cette méthode empêche de revenir à un endroit précis (sur une boîte précise) pour une étude détaillée. On peut également utiliser une technique de microbillage qui consiste à répartir sur l'échantillon des billes de Silicium de diamètre calibré (de $0.5 \mu\text{m}$ à $2 \mu\text{m}$). Cette méthode présente les mêmes défauts que précédemment. Enfin, il est possible de réaliser un masque de trous à diamètre variable qui servira pour venir graver l'échantillon. On réalise alors des mésas. Cette méthode présente l'avantage d'être reproductible ; on peut revenir à volonté sur un méso particulier et nous verrons également que le méso en lui-même joue le rôle de guide d'onde, ce qui a pour effet de rediriger une partie de la lumière émise verticalement, augmentant ainsi le signal collecté.

Les étapes de fabrication des mésas sont les suivantes : on dessine dans un premier temps un masque contenant des mésas circulaires de diamètres variables (de 500 nm à $2 \mu\text{m}$). On dépose une couche de nitrure et de PMMA (voir chapitre 4 pour le détail de la gravure) qui servira de masque de protection durant la gravure. Les motifs sont insolés dans le PMMA au sein d'un masqueur électronique. après révélation du PMMA et gravure de la couche de nitrure, on obtient des plots circulaires de nitrure sur la surface du semiconducteur. ces plots servent de masque pour graver le semiconducteur dans un bâti de gravure sèche ICP. Les étapes de gravure sont réalisées au laboratoire par I. Sagnes et R. Braive. A la fin de ces étapes, on obtient des mésas de tailles variables pour une profondeur de l'ordre de $1.3 \mu\text{m}$. Les dimensions retenues et des motifs appropriés additionnels gravés sur l'échantillon (flèches et marques) permettent de repérer très facilement les îlots à la caméra sur le banc de $\mu\text{-PL}$. La figure 3.3 représente une image au microscope électronique à balayage d'un méso de 400 nm de diamètre.

3.1.3 Zoologie des spectres sur mésas

La figure 3.4 représente quatre spectres typiques obtenus sur mésas avec l'échantillon InP220. Sur cette figure, on a représenté (en haut à gauche) un spectre obtenu sur un méso de gros diamètre ($5 \mu\text{m}$), ainsi que trois spectres obtenus sur des mésas de 500 nm de diamètre. Ces spectres sont obtenus à 5 K , sous la même puissance d'excitation continue ($300 \mu\text{W}$), et avec 10 s de temps d'acquisition.

Sur le méso de $5 \mu\text{m}$, de taille comparable à la taille du spot laser, on retrouve la distribution spectrale déjà observée dans le paragraphe précédent. Sur les trois spectres suivants, nous observons des séries de raies plus ou moins fines en fonction de la longueur d'onde d'observation. Voici plusieurs remarques importantes sur l'observation de ces spectres :

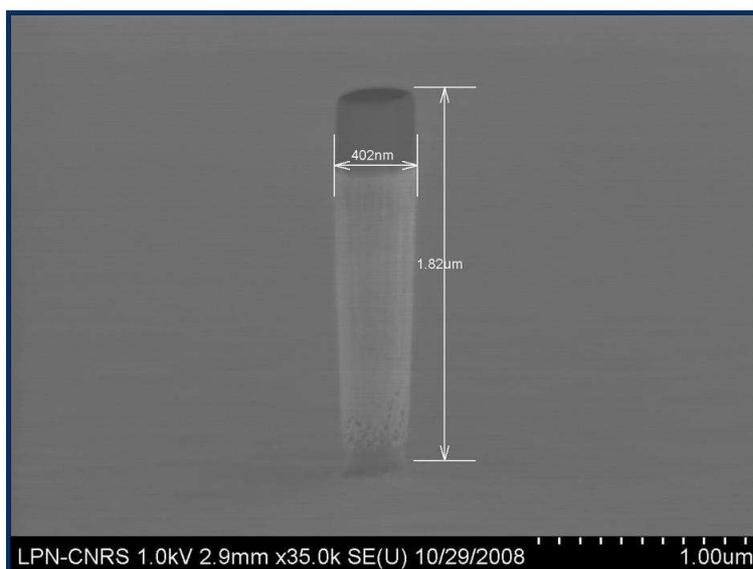


FIG. 3.3 – Photo prise au microscope électronique à balayage d'un méso de 400 nm de diamètre. La partie foncée en haut du méso représente le reste du masque de nitrure.

Remarques sur l'allure des spectres :

- La densité de boîtes mesurée est de $150 \text{ BQs}/\mu\text{m}^2$. On s'attend donc à trouver environ 30 boîtes en moyenne par méso de 500 nm de diamètre. Les images TEM montrent cependant certaines zones où la densité varie (voir 2.9). Les observations sur plusieurs mésas montrent que le nombre de raies visibles est compris entre 5 et 30.
- Après investigation sur un grand nombre de mésas (>100) nous avons pu observer deux types de comportements spectraux très différents comme le montre la figure 3.6 qui est un spectre typique d'un méso de $1 \mu\text{m}$. Pour des longueurs d'onde inférieures à $1.4 \mu\text{m}$, on peut voir des pics très fins spectralement (limite de résolution) et très intenses (jusqu'à 5000 photons/s sur les détecteurs supra). En revanche, pour des longueurs d'onde supérieures $1.4 \mu\text{m}$ nous trouvons majoritairement que des pics larges spectralement (quelques nanomètres) et moins intenses (inférieur à 500 photons/s). Une statistique des largeurs à mi-hauteur sur une dizaine de mésas est représentée sur la figure 3.5. Sur cet histogramme, les largeurs observées à basse longueur d'onde sont à la limite de résolution du montage. En revanche, vers $1.5 \mu\text{m}$, les largeurs sont supérieures au nm.
- Tous les spectres étudiés présentent également la même propriété : l'intensité des raies fines est dans la majorité des cas plus importante que l'intensité du signal sur pleine plaque à la même longueur d'onde. Plusieurs mesures ont été faites en pleine plaque et l'intensité mesurée est toujours la même. Deux phénomènes peuvent expliquer ces observations. Le premier serait un effet de guidage à l'intérieur des mésas, qui améliorerait la

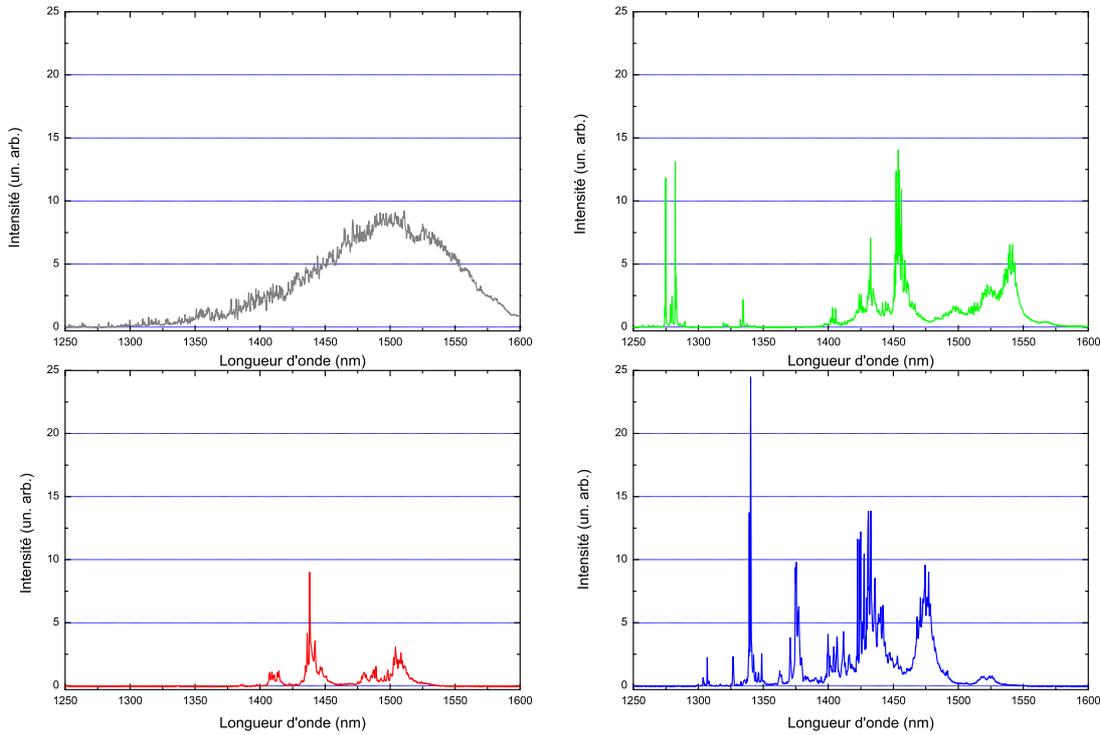


FIG. 3.4 – Exemple de spectres typiques sur l'échantillon InP220. Le spectre en haut à gauche est obtenu sur un méso de gros diamètre et le spectre s'apparente à une distribution de type pleine plaque. Les trois autres spectres sont obtenus sur des méso de 500 nm de diamètre à basse température (5 K) sous la même puissance d'excitation. La durée d'acquisition est de 10 s

collection du signal. Ce phénomène a déjà été prédit, [84], et observé dans [85]. Afin de quantifier cet effet de guidage sur des mésas en InP, des calculs sont en cours au moment de la rédaction de ce manuscrit pour obtenir le taux de collection à travers un méso par rapport à une émission en pleine plaque. Des résultats préliminaires montrent déjà une amélioration du taux de collection (d'un facteur 4), mais qui dépend fortement du diamètre du méso et de la longueur d'onde d'émission des dipôles. Ces travaux de modélisation sont réalisés dans le cadre d'une collaboration avec le groupe de Philippe Lalanne à l'Institut d'Optique à Palaiseau.

La deuxième hypothèse serait un effet de confinement des charges. Sur un méso, la longueur de diffusion est spatialement limitée à la taille du méso. A puissance de pompe incidente identique, il y aurait plus de charges disponibles sur méso que sur pleine plaque, ce qui se traduit par une augmentation de l'intensité totale de photoluminescence.

L'origine des spectres larges structurés vers $1.5 \mu\text{m}$ n'est pas entièrement comprise. Nous pouvons cependant émettre plusieurs hypothèses.

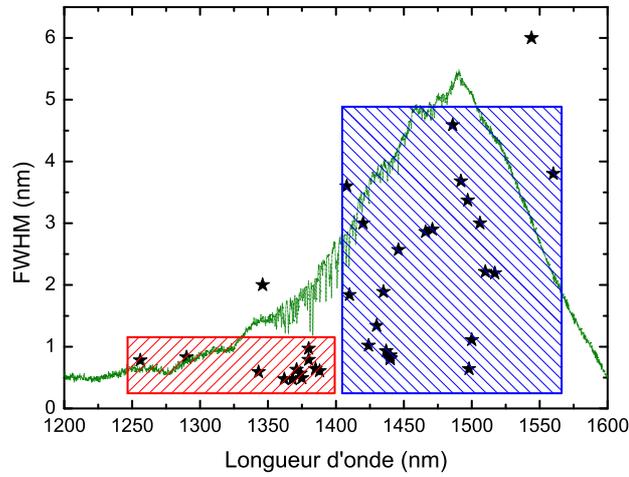


FIG. 3.5 – Statistique des largeurs à mi-hauteur des raies en fonction de la longueur d'onde d'émission

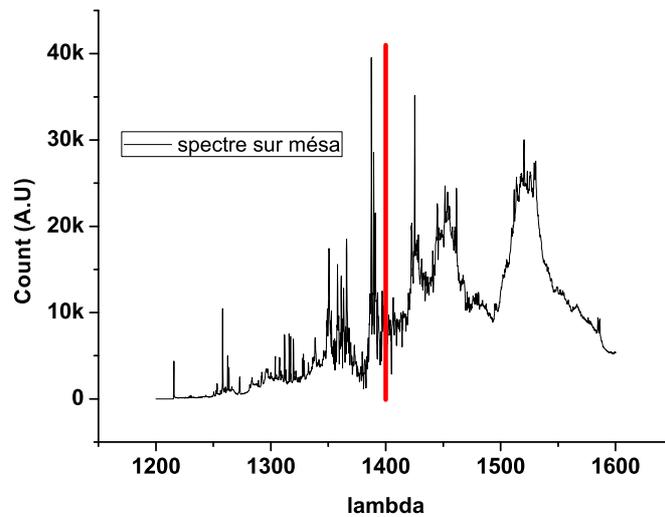


FIG. 3.6 – Illustration de la différence entre l'émission avant et après $1.4\mu\text{m}$

- La signature spectrale ressemble fortement à l'émission de puits à fluctuations reportée dans [46] (voir figure 1.8). On distingue notamment sur cette figure une émission large ($>10\text{nm}$) additionnée d'une structuration fine. Cette hypothèse implique que l'épaisseur des boîtes fluctue d'une ou deux monocouches et que ces fluctuations constituent un piège confiné pour les porteurs. Pourtant, les images TEM en coupe ne permettent pas de visualiser ces fluctuations (sur l'image TEM haute résolution de la figure 1.8, l'interface InAs/InP est parfaitement lisse à la

monocouche atomique près).

- On sait que les boîtes émettant à $1.5 \mu\text{m}$ sont plus hautes (voir figure 2.14). Si l'on suppose que ces boîtes sont également plus larges que les boîtes émettant à $1.3 \mu\text{m}$ ($>50 \text{ nm}$), alors il est possible que le confinement soit insuffisant pour permettre une discrétisation des niveaux d'énergie permis dans une boîte quantique. La présence d'états quasi-continus peut s'expliquer si l'on tient compte d'états hydrides (voir paragraphe 3.2.1). L'objet quantique étudié devient à la limite de ce que l'on appelle communément une boîte quantique et un puit quantique. On peut aussi parler de puit quantique tronqué.

Une simple étude spectrale est insuffisante pour valider ces hypothèses et nous reviendrons sur ce point à la section 3.3.4. avec des mesures de durée de vie.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier en détail l'émission d'objets uniques isolés sur mésas. Nous allons nous intéresser en particulier à l'étude de quatre mésas représentatifs des échantillons. Deux mésas donnent des raies fines vers $1.3 \mu\text{m}$, que l'on appellera méssa A^{1.3} et B^{1.3}. Nous étudierons également deux autres mésas émettant vers $1.5 \mu\text{m}$ et qui présentent une structuration spectrale large ($>1 \text{ nm}$) que l'on nommera méssa A^{1.5} et B^{1.5}. Nous chercherons à comprendre l'origine des raies larges et leur propriétés (spectrales, réponse en température et dynamique d'émission en fonction de la puissance de pompe). Enfin, nous exposerons à la fin du chapitre une mesure de corrélation de photon faite sur le méssa A^{1.3}, afin de mettre en évidence un dégroupement de photon. Enfin nous exposerons les problématiques rencontrées sur les échantillons de nouvelle génération en méssa. Les spectres des quatre mésas étudiés sont présentés sur la figure 3.7.

Bibliographie de la spectroscopie des boîtes quantiques vers $1.5 \mu\text{m}$

Cette différence entre l'émission de boîtes InAs/InP vers $1.3 \mu\text{m}$ et $1.5 \mu\text{m}$ se retrouve également dans de nombreux articles. Dans [86], les auteurs ont analysé "plusieurs centaines" de méssa pour trouver le signal le plus intense possible afin de réaliser des mesures de corrélations. Ces mesures se sont finalement faites sur une raie émettant à 1277 nm . Les auteurs ne donnent aucune explication. Pourtant, les spectres sur des ensembles de boîtes ont un maximum centré sur $1.5 \mu\text{m}$. Dans [87], les auteurs présentent une série de mesures de spectroscopie par transformée de Fourier sur des boîtes uniques InAs/InP. Dans cet article, les mesures se font également sur des raies proche de $1.3 \mu\text{m}$. Il semblerait encore une fois que le signal soit plus intense dans cette région et que les raies soient trop denses autour de $1.5 \mu\text{m}$. Dans [88], les auteurs identifient des raies provenant de l'émission d'exciton et biexciton sur des boîtes uniques InAs/InGaAlAs/InP vers $1.5 \mu\text{m}$. Même si la longueur d'onde souhaitée pour des applications dans les télécommunication se trouve à $1.55 \mu\text{m}$, les raies étudiée dans [88] émettent à 0.85 eV ($1.45 \mu\text{m}$). Plus récemment, des résultats sur des boîtes InAs/InGaAsP/InP[100] en faible densité émettant "vers" $1.5 \mu\text{m}$ [89] montrent des spectres de photoluminescence d'une distribution de boîtes quantiques centrés sur $1.55 \mu\text{m}$ alors que les spectres sur boîte unique sont centrés vers $1.4 \mu\text{m}$.

Dans toutes ces références, la longueur d'onde visée est $1.55 \mu\text{m}$, mais aucune n'exhibe de raie isolée à cette longueur d'onde. Les différents spectres des références citées

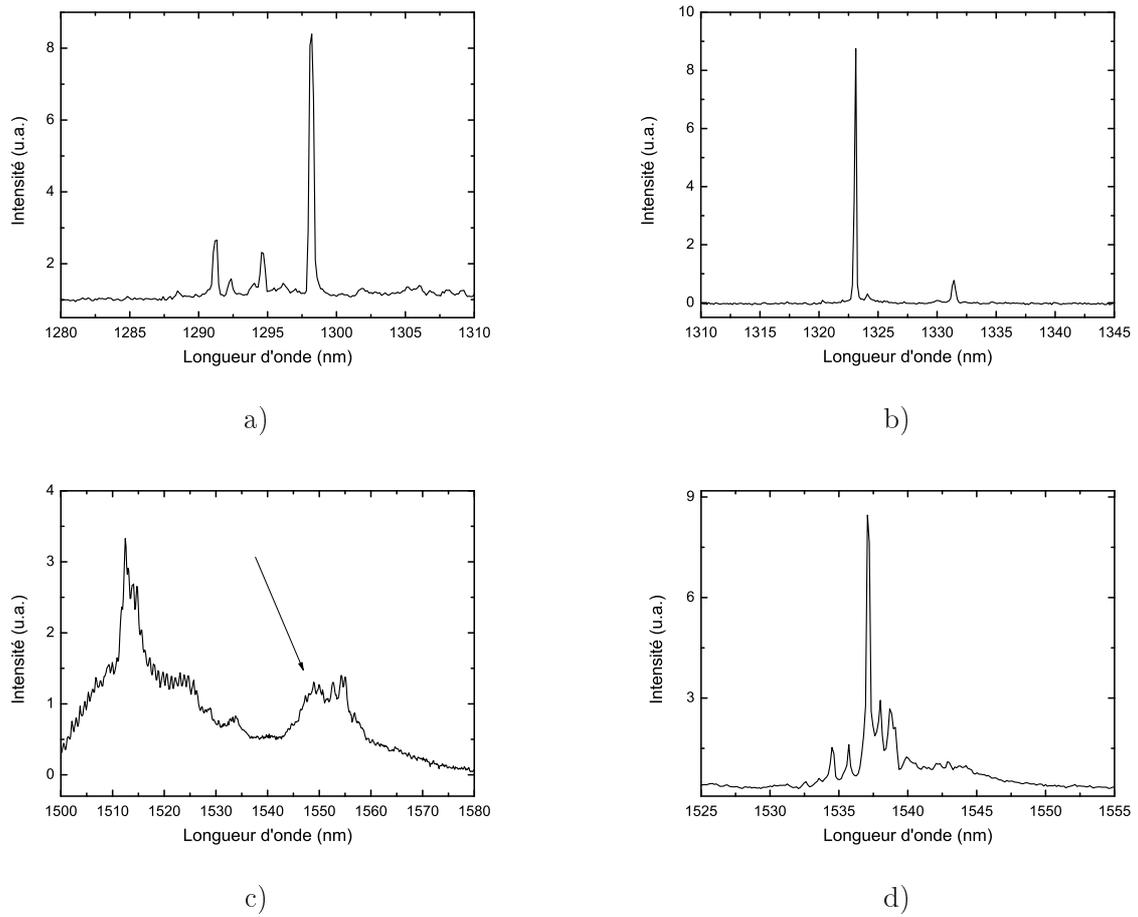


FIG. 3.7 – Spectres des mésas étudiés dans le chapitre : a) méssa $A^{1.3}$; b) méssa $B^{1.3}$; c) méssa $A^{1.5}$; d) méssa $B^{1.5}$

précédemment sont représentés sur la figure 3.8.

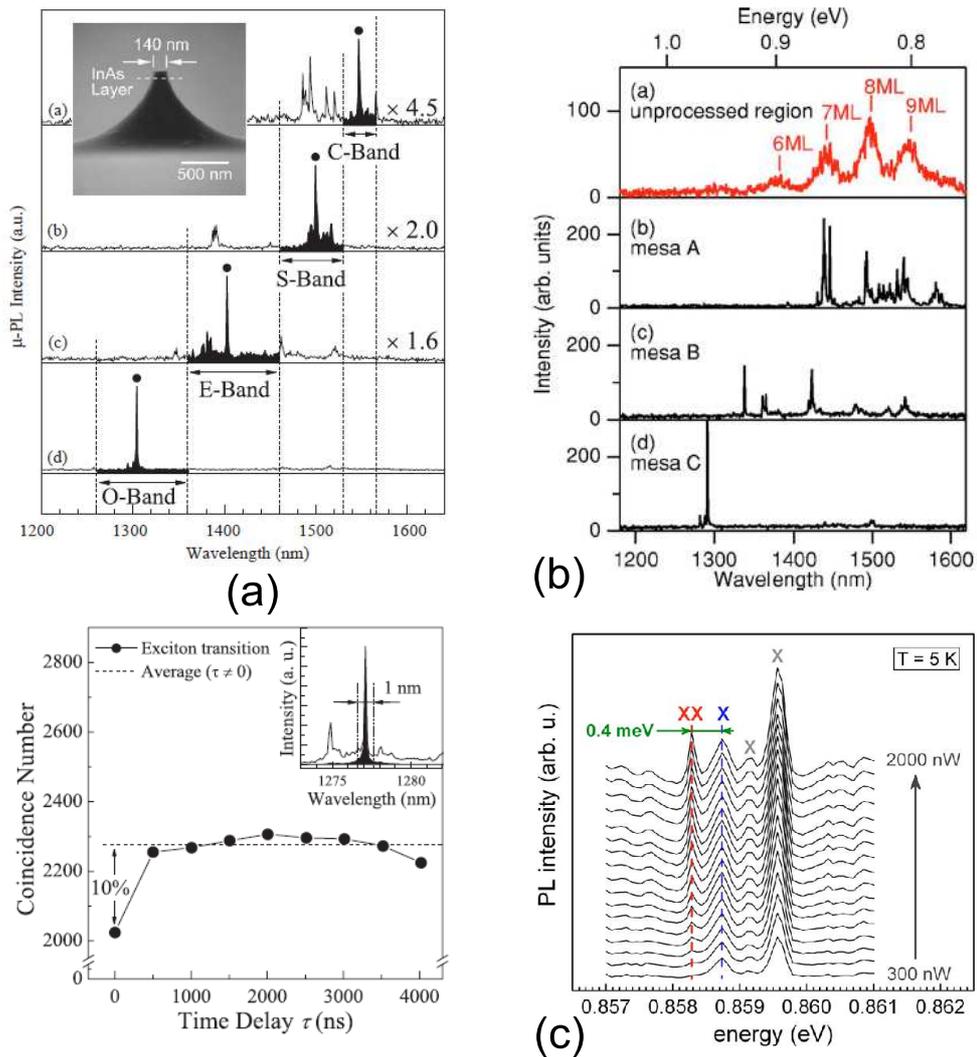


FIG. 3.8 – Exemples de spectres obtenus sur des boîtes auto-organisées InAs/InP. (a) : [86]; (b) : [87]; (c) : [88], (d) : [89]

3.2 Etudes spectrales

Dans la suite, nous avons séparé les études spectrales en fonction de la température et de la puissance de pompe des études dynamiques (section suivante). Avant de présenter et analyser les résultats expérimentaux (section 3.2.2), nous allons dans un premier temps détailler les modèles théoriques attendus pour une boîte quantique.

3.2.1 Présentation des modèles

Interaction de la boîte quantique avec son environnement

On compare souvent une boîte quantique avec un atome artificiel. Cette analogie est certes valide, mais dans le cas de l'atome, ce dernier est considéré comme étant isolé et pouvant interagir avec d'autres atomes. Dans le cas d'une boîte quantique semi-conductrice, le dipôle est inséré dans une matrice solide constituée d'un grand nombre d'atomes. Ces atomes sont notamment capables de vibrer (création de phonons) et peuvent interagir avec la boîte. Cette interaction entraîne une forte dépendance de l'émission spectrale des boîtes quantiques (énergie d'émission et largeur spectrale) :

- La dilatation thermique du réseau cristallin et le couplage électron-phonon sont à l'origine de la dépendance du gap en fonction de la température. On observe un décalage de l'émission vers les hautes longueurs d'onde (red-shift) lorsque la température augmente, caractéristique dans les semi-conducteurs. Habituellement on utilise le modèle empirique de Varshni pour décrire et quantifier ce phénomène [90]. Dans ce modèle, l'énergie de gap $E_g(T)$ s'exprime en fonction de la température T par la formule :

$$E_g(T) = E_0 - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (3.1)$$

où α et β sont des constantes dépendantes du matériau étudié. Ces valeurs sont données dans le tableau 3.1 pour de l'InAs et InP massif.

- A température non nulle, l'interaction avec les vibrations des atomes de la maille cristalline (phonons) est une source de processus déphasants, entraînant un élargissement spectral [47, 46]. Le couplage exciton-phonon se traduit sur le spectre de photoluminescence par l'apparition de bandes latérales autour de la raie centrale (appelée raie à zéro-phonon). Si l'énergie thermique $k_b T$ est nettement supérieure à l'énergie des phonons acoustiques qui est de l'ordre du meV, l'exciton a une certaine probabilité d'absorber ou d'émettre un ou plusieurs phonons ce qui entraîne la présence de nouvelles raies qui constituent des ailes à plus basse et à plus haute énergie que l'exciton. Le couplage avec les phonons aboutit à un élargissement de la largeur à mi-hauteur suivant la formule 3.2.

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + a * T + b * \exp(-\Delta(E)/kT) \quad (3.2)$$

où Γ_0 désigne la largeur à mi-hauteur à 0 K, a et b désignent respectivement les constantes de couplage excitons-phonons acoustiques et optiques et $\Delta(E)$ représente l'énergie de couplage exciton-phonon optique. Les valeurs de ces constantes sont surtout référencées pour des boîtes sur GaAs. Par contre il existe peu de travaux sur les boîtes InAs/InP.

- Citons également les travaux de thèse d'A. Berthelot *et al.* [91], où sont traités les effets des charges environnantes des boîtes pour expliquer une partie de l'élar-

gissement.

Il existe également un autre phénomène responsable de l'élargissement spectral. Cette fois, l'élargissement est intrinsèque à la boîte quantique et dépend de la structure des niveaux électroniques. On parle d'hybridation des états électroniques :

Etats hybrides

Pour comprendre ce phénomène, il faut considérer en plus des niveaux fondamentaux de chaque boîte une large variété de niveaux excités (niveau p , d , etc...). Cette considération reste valable dans notre système car les boîtes sont suffisamment confinantes pour que les porteurs des états excités ne puissent pas s'échapper par effet Auger. On considère que la boîte contient n paires électron-trou. Les niveaux peuvent être représentés sur la figure 3.9 (a) par des niveaux discrets ($n=0, 1, 2, \dots$) séparés par une certaine énergie de gap. Il a été démontré dans [92] que ces niveaux pouvaient se coupler au continuum de la couche de mouillage. Ce couplage a pour conséquence la création de sous-niveaux qui tendent vers un continuum d'états entre les niveaux $n=0, 1, 2, \dots$. Les recombinaisons radiatives peuvent avoir lieu à plusieurs énergies et provoquer un élargissement des raies des niveaux fondamentaux.

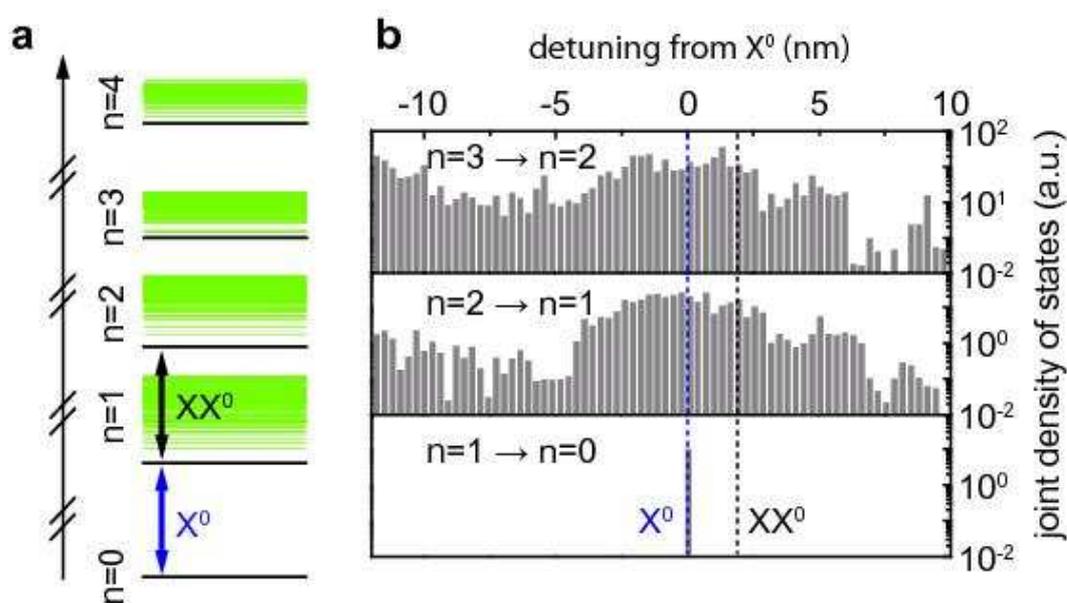


FIG. 3.9 – Illustration de l'hybridation d'une boîte quantique. L'existence d'un quasi continuum dans la densité d'état entraîne plusieurs énergies de recombinaison possible pour les états $n=2 \rightarrow n=1$ et $n=3 \rightarrow n=2$. Figure extraite de calculs théorique Monte-Carlo pour la densité d'état des niveaux hybrides [93]

3.2.2 Etude en fonction de la température

Etude du red-shift

L'étude de l'évolution spectrale des mésas A^{1.3} et B^{1.3} est présentée sur la figure 3.10 pour quatre températures caractéristiques de 4 K à 70 K. Le décalage vers le rouge observé est caractéristique de l'émission d'un semi-conducteur. Si le signal provenait d'un défaut profond dans la matrice d'InP, ce décalage ne serait pas visible. On peut appliquer le modèle empirique de Varshni introduit précédemment sur les deux mésas. Le résultat de l'ajustement est présenté sur la figure 3.11. Les valeurs des paramètres α et β sont respectivement de 0.149 eV/K et 70.34 K pour le mesa 1.3 A (0.158 eV/K et 74.7 K pour le mesa 1.3 B). Les valeurs des paramètres α et β mesurées pour de l'InAs et l'InP massif sont données dans [94] et regroupées dans le tableau 3.1 : Nous avons tracé sur la figure

Matériau	E_0 (eV)	α (eV/K)	β (K)
InAs	0.415	$2.76 \cdot 10^{-4}$	93
InP	1.421	$4.9 \cdot 10^{-4}$	327
Boîtes InAsP/InP	0.94	$1.5 \cdot 10^{-4}$	70

TAB. 3.1 – Valeur des paramètres α et β du modèle de Varshni pour l'InAs et l'InP

3.11 les courbes correspondant au modèle de Varshni pour ces deux matériaux (en vert pour l'InP et en bleu pour l'InAs) en prenant des valeurs approchées pour E_0 de 0.9550 eV pour le mesa A^{1.3} et 0.9371 eV pour le mesa B^{1.3}. L'écart constaté entre les valeurs expérimentales des paramètres expérimentaux α et β avec les données sur l'InAs massif peut être expliqué de deux manières. Dans notre cas, des effets excitoniques présents dans les boîtes quantiques peuvent justifier de cet écart comme cela est mentionné dans [95]. Le modèle empirique de Varshni décrit bien le comportement des matériaux massifs, et la différence observée avec les boîtes peut être due à la structure particulière des niveaux d'énergie dans la boîte. D'autre part, on sait que nos boîtes contiennent du phosphore (environ 20-30% d'après les profil chimique EDX). Ceci pourrait expliquer l'écart avec les valeurs de [94] et peut constituer une preuve de l'incorporation de phosphore dans nos boîtes.

Concernant les mésa vers 1.5 μm , nous avons pu faire l'étude en température que sur le mesa B^{1.5}¹. L'évolution spectrale est montrée sur la figure 3.12. Un ajustement par le modèle de Varshni donne cette fois des valeurs légèrement différentes que pour les deux mésas précédemment. On trouve $\alpha=0.23$ meV/K et $\beta=136$ K. Ces valeurs restent proches des valeurs théoriques, et la différence avec celles trouvées à 1.3 μm indiquerait des effets excitoniques différents dans ce type d'objets.

¹L'échantillon a été nettoyé en raison de la présence d'impuretés à sa surface, provoquant la destruction de plusieurs mésa...

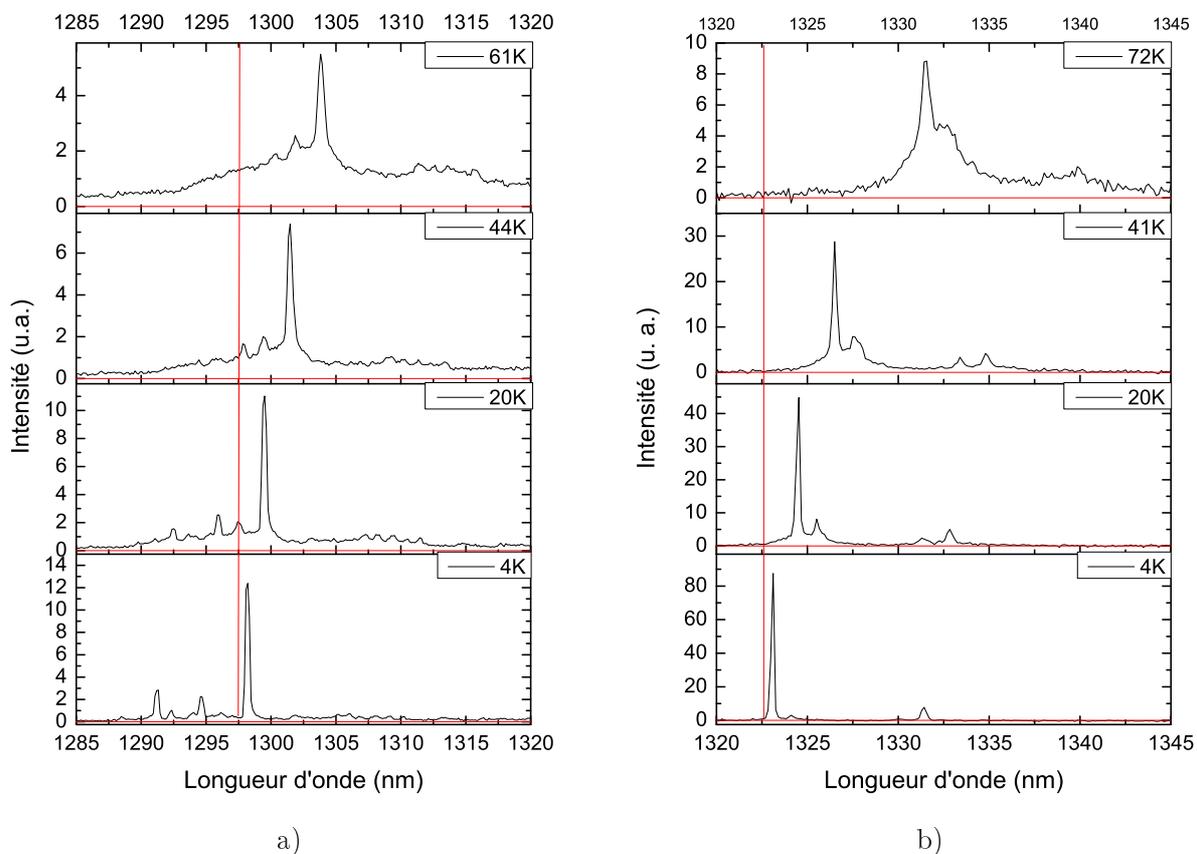


FIG. 3.10 – Evolution spectrale pour le méso $A^{1.3}$ (a) et $B^{1.3}$ (b), en fonction de la température

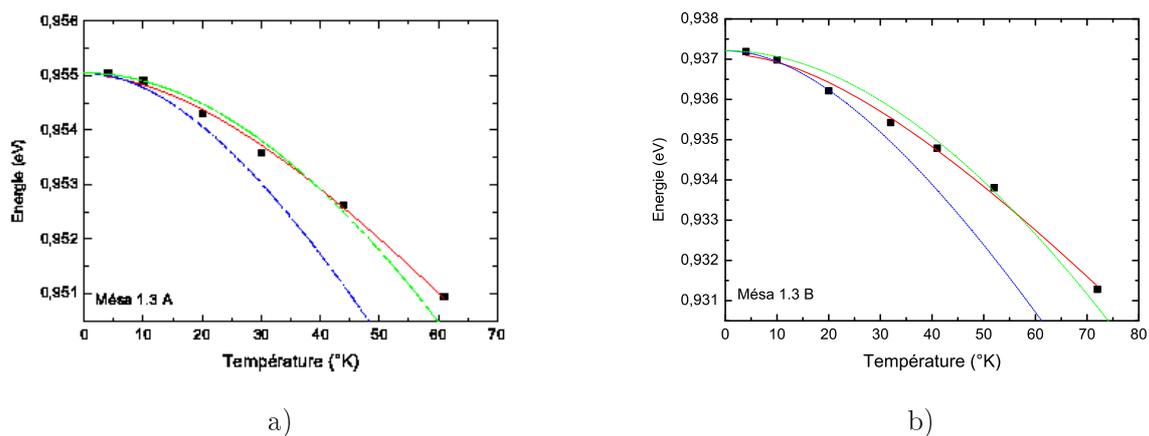


FIG. 3.11 – Comparaison avec le modèle empirique de Varshni du redshift pour le méso $A^{1.3}$ (a) et $B^{1.3}$ (b). On représente également les courbes théoriques pour l'InAs (foncé) et l'InP (clair)

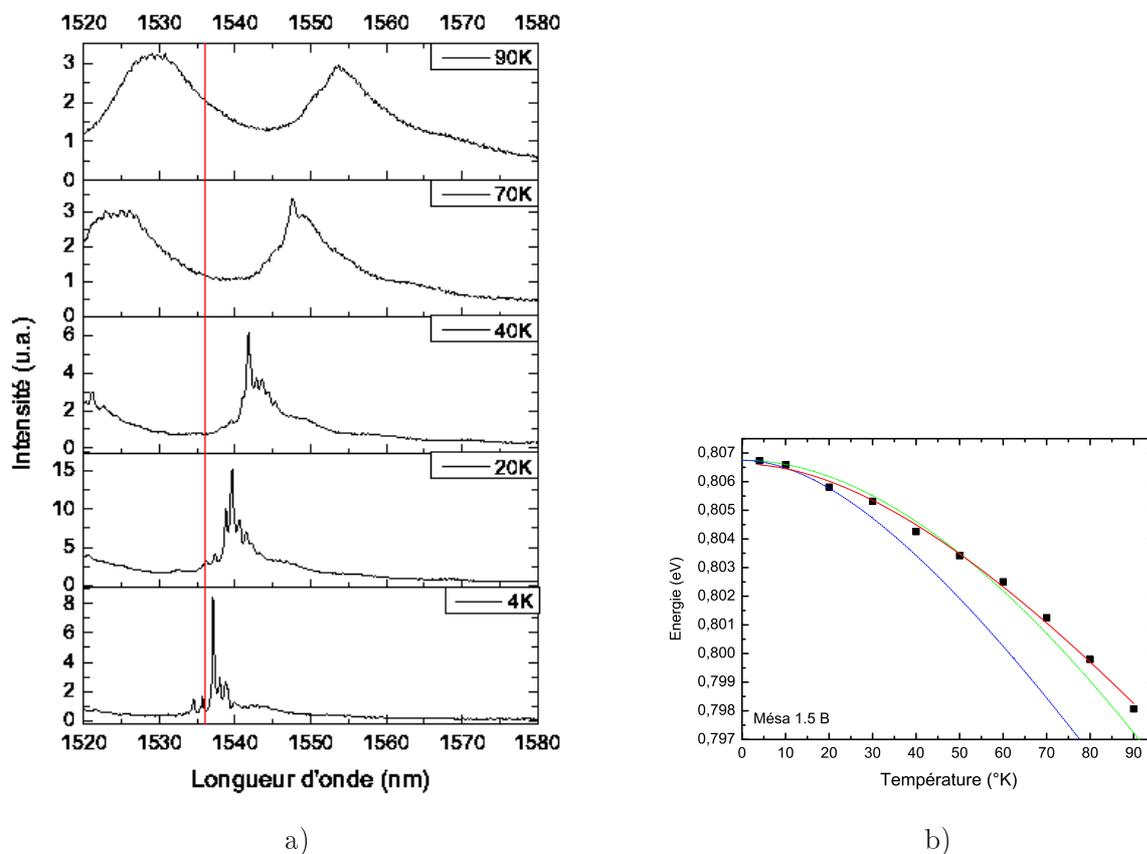


FIG. 3.12 – Evolution spectrale pour le méso $B^{1.5}$ (a) et comparaison avec le modèle de Varshni (b)

Impact de l'environnement sur l'émission des boîtes quantiques

Toujours sur la figure 3.12 (méso $B^{1.5}$), on note l'apparition d'un fond continu au pied du pic central à partir de 20 K. À plus haute température, ce fond tend même à "englober" les raies et devenir prépondérant. Ce phénomène s'observe également sur les spectres des mésas à $1.3 \mu\text{m}$, mais de façon moins prononcée car on distingue toujours le pic fin. Dans tous les cas, ce signal est toujours relié à une émission provenant d'une boîte et ce phénomène devient prépondérant lorsque la température augmente.

Evolution de l'élargissement spectral

L'évolution de la largeur à mi-hauteur du méso $A^{1.3}$ est présentée sur la figure 3.13. Pour des températures inférieures à 40 K, la largeur mesurée correspond à la limite de résolution du montage ($270 \mu\text{eV}$). Pour accéder à la largeur de raie à plus basse température, nous avons utilisé une technique de spectroscopie par transformée de Fourier. Les détails expérimentaux et théoriques sur ce type de mesures sont présentés dans le chapitre 5. Les difficultés expérimentales (stabilité de l'échantillon pendant au moins 20 min le temps de

l'enregistrement de l'interférogramme²) ne nous ont pas permis de mesurer la largeur de raie en fonction de la température par cette technique.

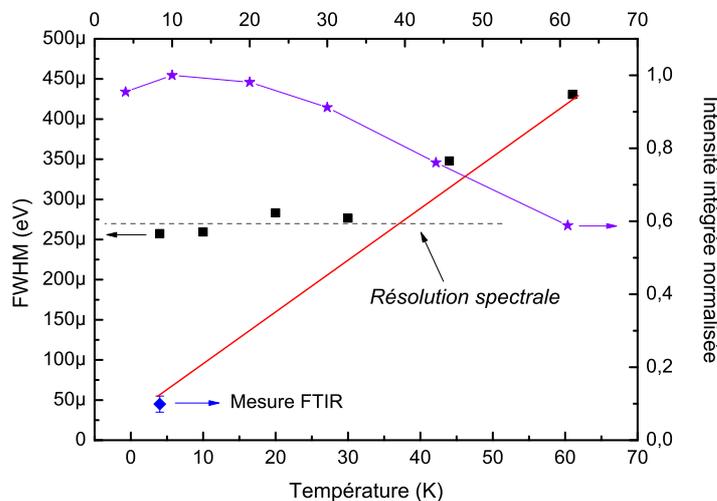


FIG. 3.13 – Evolution de la largeur de raie (FWHM) pour le mésa A^{1-3} en fonction de la température. En noir (carré), les mesures sont faites à partir des spectres sur la caméra InGaAs. En losange, la mesure est faite par spectroscopie par transformée de Fourier. En étoile, on représente l'évolution de l'intensité intégrée.

On observe néanmoins une augmentation de la largeur FWHM en fonction de la température, passant de $45 \mu\text{eV}$ à 4 K, à $420 \mu\text{eV}$ à 60 K. Sur les interférogrammes présentés sur la figure 3.14, nous pouvons déterminer si le profil de raie est de type Gaussien ou Lorentzien. Pour cela, les courbes représentant le logarithme de la visibilité de l'interférogramme sont ajustées par les deux modèles (respectivement quadratique ou linéaire). Sur cette figure, on a tracé dans les deux cas des profils correspondant à des largeurs de Γ de 40, 45 et $50 \mu\text{eV}$. Les valeurs expérimentales se rapprochent le mieux d'une valeur de $\Gamma = 45 \pm 5 \mu\text{eV}$ avec un profil Gaussien.

Les valeurs de largeur de raie Γ_0 à basse température pour des boîtes InAs/GaAs sont de l'ordre de 20 à $40 \mu\text{eV}$ [47], mais elles sont moins connues pour les boîtes InAsP/InP. Une référence [81] reporte une mesure de Γ_0 à 0 K d'environ $50 \mu\text{eV}$. Dans ces travaux, le système étudié est une boîte unique InAs/InGaAsP/InP. Dans [87], des largeurs de $22 \mu\text{eV}$ sont reportées sur des boîtes InAs/InP avec un profil Gaussien. Dans ce papier ainsi que dans [91] (boîtes InAs/GaAs), le passage d'un profil de raie Gaussien à un profil Lorentzien en fonction de la température est abordé. Ces deux références trouvent des évolutions contraires. Dans notre cas, nous n'avons pas pu pour des raisons expérimentales faire une mesure fine de l'évolution du profil en fonction de la température. Néanmoins, la mesure de l'élargissement homogène permet d'obtenir des informations sur les temps de décohérence

²La stabilisation de la température se fait par l'intermédiaire d'un contrôleur de température et d'un asservissement PID. Entre 4 K et 40 K, les oscillations de température de l'ordre de 0.5 K sont observées et entraînent des dérives mécaniques trop importantes pour une mesure supérieure à 10 min en continu. L'enregistrement d'un interférogramme nécessite une grande stabilité mécanique et nous ne sommes pas en mesure de retoucher l'alignement du cryostat pendant la prise de mesure.

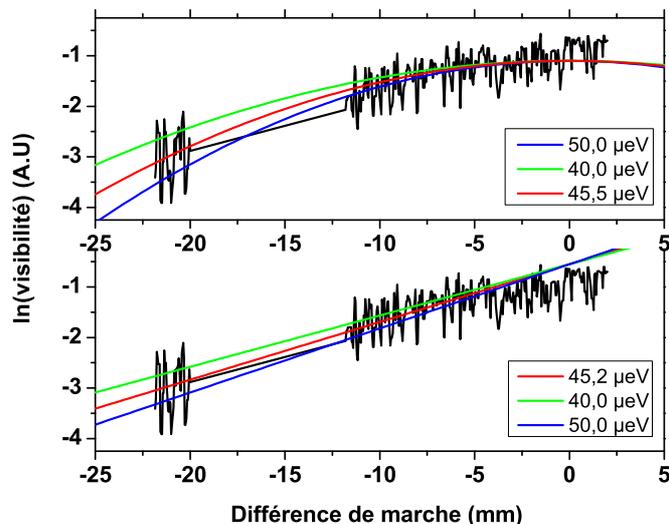


FIG. 3.14 – Logarithme de la visibilité en fonction de la différence de marche. Les courbes sont ajustées par un modèle d'élargissement gaussien (haut) et lorentzien (bas). Les courbes expérimentales sont approchées au mieux par un profil gaussien d'une largeur de $45 \mu\text{eV}$

du système.

En effet, la connaissance de cette largeur est une donnée importante car elle permet de remonter au temps de décohérence T_2 ($\Gamma_0=2\hbar/T_2$) pour une boîte quantique unique dans son environnement naturel. La connaissance de ce temps de cohérence est très utile si l'on souhaite utiliser ces boîtes dans des composants pour l'information quantique comme des sources de photons indiscernables [96, 97]³. De manière générale, pour un système à deux niveaux en interaction avec son environnement, le temps pendant lequel la phase du système évolue de manière périodique est défini comme son temps de cohérence, T_2 . On introduit le temps T_2^* (temps de déphasage pur) qui correspond au temps caractéristique des fluctuations subies par le dipôle. La relation entre le temps de cohérence T_2 , la durée de vie τ et le temps T_2^* est donnée par :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2\tau} + \frac{1}{T_2^*} \quad (3.3)$$

Pour un émetteur isolé de son environnement, T_2^* tend vers l'infini et donc $T_2=2\tau$. Les photons émis par une telle source sont dits 'limités par transformée de Fourier' car leur spectre est donné par la transformée de Fourier de leur profil temporel. Si le dipôle est en interaction avec des processus fortement déphasants, T_2^* devient très court et par conséquent $T_2 \approx T_2^*$. Dans notre cas, τ est de l'ordre de la nanoseconde⁴ : $\tau \approx 1 \text{ ns}$, et $T_2 = 2\hbar/\Gamma \approx 30 \text{ ps}$. Ainsi $T_2 \approx T_2^*$ et par conséquent les processus déphasants ont un rôle majeur dans l'élargissement spectral. Le pompage optique se fait dans notre cas dans l'InP massif (pompage

³On montre que l'indiscernabilité des photons dépend du rapport $T_2/2\tau$. On cherche donc à faire tendre ce rapport vers 1 [97]

⁴voir paragraphes suivants

à 532 nm). On injecte ainsi beaucoup de charges qui peuvent perturber l'émission du dipôle [91, 98]. Il serait donc possible d'envisager un pompage résonnant afin de diminuer cet effet.

Evolution de l'intensité en fonction de la température

Les causes de la diminution d'intensité lorsque la température augmente sont multiples. On retient principalement trois effets :

- L'effet Auger, qui a pour conséquence de dépeupler les états de la boîte vers la couche de mouillage et donc diminuer la probabilité d'émettre un photon.
- L'activation de pièges non-radiatifs qui vont participer également à la capture de nos porteurs et donc diminuer le nombre de porteurs qui peuvent aller dans notre émetteur.
- L'activation thermique d'états excités à des niveaux d'énergie différents entraînant une diminution de l'intensité de la raie provenant de la transition fondamentale. Dans ce cas, on ne peut pas vraiment parler de diminution de l'intensité totale collectée, mais d'un transfert de l'énergie vers d'autres états.

Sur la figure 3.15, nous avons représenté l'intensité intégrée normalisée en fonction de la température pour le méssa $A^{1,3}$. On observe une diminution de l'ordre de 40 % du signal provenant de la raie principale à 60 K. Ce résultat n'est pas comparable directement aux mesures pleine plaque (diminution d'un tiers du signal entre 4 et 300 K), car on ne prend pas en compte le signal intégré du fond continu. Sur les spectres de la figure 3.15, il est difficile de prendre en compte quantitativement ce signal en choisissant des bornes d'intégration.

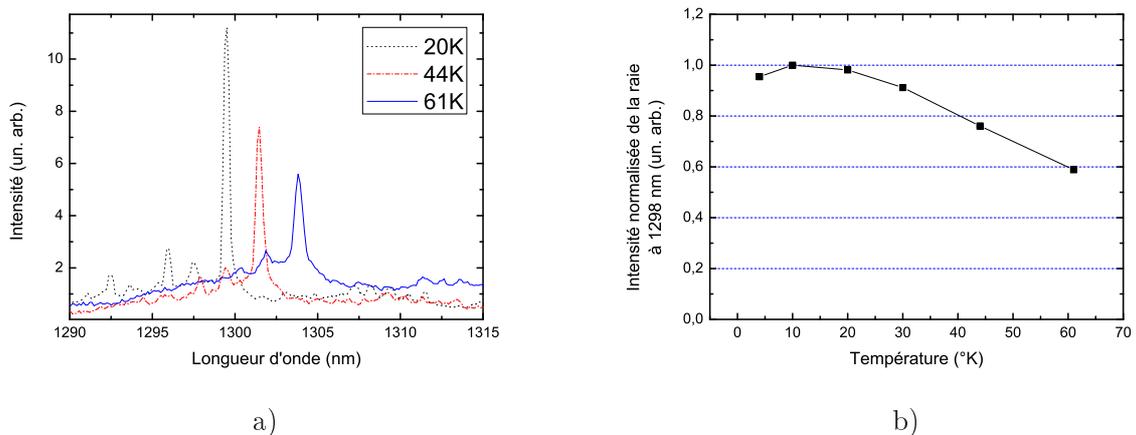


FIG. 3.15 – Spectres du méssa $A^{1,3}$ en fonction de la température (a). Notons le fond continu au pied de la raie nettement visible à 61 K. Intensité intégrée de la raie en fonction de la température. De 4 K à 60 K, la diminution est de 40 %.

Sur les spectres du méso B^{1.3} qui présente des raies fines distinctes au pied de la raie principale (voir la figure 3.16), on peut choisir sans ambiguïté des bornes d'intégration. L'aire des deux pics (notés 1 et 2 visibles sur la figure 3.16 a)) en fonction de la température est représenté sur la figure 3.16 b). L'aire du pic 1 diminue alors que celle du pic 2 augmente et l'aire totale reste constante jusqu'à 90 K. Les mécanismes de transfert entre ces deux états ne sont pas entièrement expliqués mais ces observations suffisent à confirmer la diminution d'un facteur 1/3 observée sur un ensemble de boîte où le signal est intégré entre 1200 nm et 1650 nm.

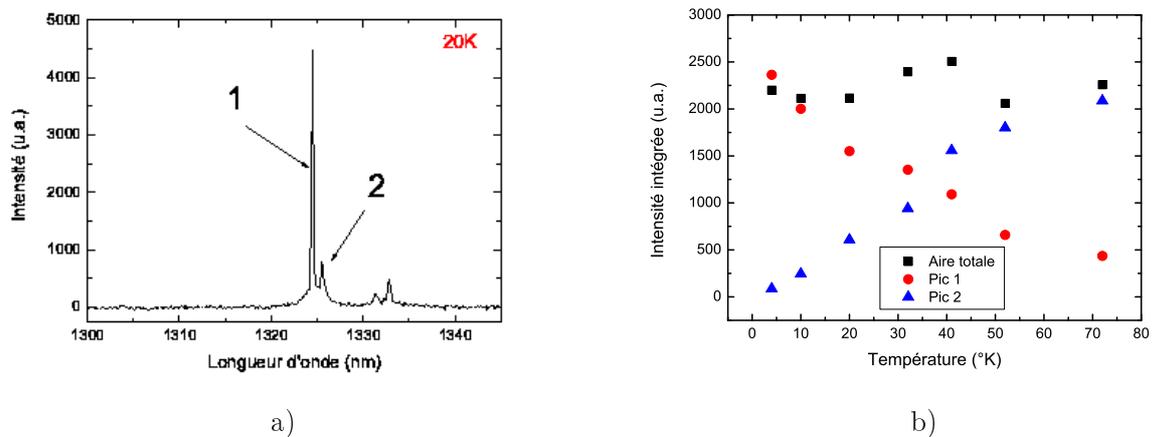


FIG. 3.16 – Spectre du méso A^{1.3} à 20 K (a). On note l'apparition d'un pic secondaire (noté 2) au pied de la raie intense (noté 1). (b) Évolution de l'intensité intégrée des deux pics en fonction de la température. L'intensité totale reste constante.

Dans le cadre de ce travail et dans l'optique de la réalisation d'une source de photon unique, nous retiendrons qu'à 77 K, il est encore possible de distinguer correctement l'émission provenant de la transition fondamentale d'une boîte vers 1.3 μm . Enfin, nous n'avons pas tenu compte des effets Auger dans notre système compte tenu du fait que l'énergie de la couche de mouillage se trouve à plus de 200 meV des niveaux fondamentaux des boîtes pour les électrons et 30 meV pour les trous ($kT \approx 1/40$ eV à 300 K).

3.2.3 Étude en fonction de la puissance de pompe

Évolution sous excitation pulsée

Pour décrire quantitativement la dépendance du comportement en intensité des raies, nous utiliserons un modèle développé dans la thèse d'Emmanuel Moreau [99]. On suppose que la capture des paires électron-trou est aléatoire et ne dépend pas des charges déjà présentes. Sous ces hypothèses le nombre de paires électron-trou créées par impulsion laser est directement proportionnel à la puissance d'excitation et suit une statistique poissonnienne. La probabilité $P(n)$ d'avoir n paires électron-trou capturées par la boîte quantique après une impulsion laser s'écrit donc :

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} = \frac{1}{n!} \left(\frac{P}{P_0}\right)^n e^{-\frac{P}{P_0}} \quad (3.4)$$

où $\langle n \rangle$ est le nombre moyen de paires électron-trous créées par impulsion, fonction linéaire de la puissance laser incidente P (P_0 constante). Comme la recombinaison des paires électron-trou se fait de manière séquentielle, l'intensité de la raie est directement proportionnelle à la probabilité d'injecter au moins une paire électron-trou ($1-P(0)$). L'intensité s'exprime ainsi de la façon suivante :

$$I(P) = I_0(1 - P(0)) = I_0(1 - e^{-\frac{P}{P_0}}) \quad (3.5)$$

où I_0 est l'intensité de saturation de la raie et P_0 est la puissance du laser pour laquelle on observe la saturation de l'émission associée à l'exciton.

Observation en régime pulsé

La figure 3.18 représente l'évolution du signal de photoluminescence sur le méso $A^{1.3}$ en fonction de la puissance de pompe. Sur une large gamme spectrale (figure 3.18 a), on retrouve la présence d'un signal continu et faiblement structuré vers $1.5 \mu\text{m}$. A très forte puissance, ce signal devient prépondérant et très large spectralement ($>200 \text{ nm}$). Cet émission semble provenir d'émetteur de type puits quantiques vers $1.5 \mu\text{m}$. La figure 3.18 b) est un agrandissement centré sur $1.3 \mu\text{m}$.

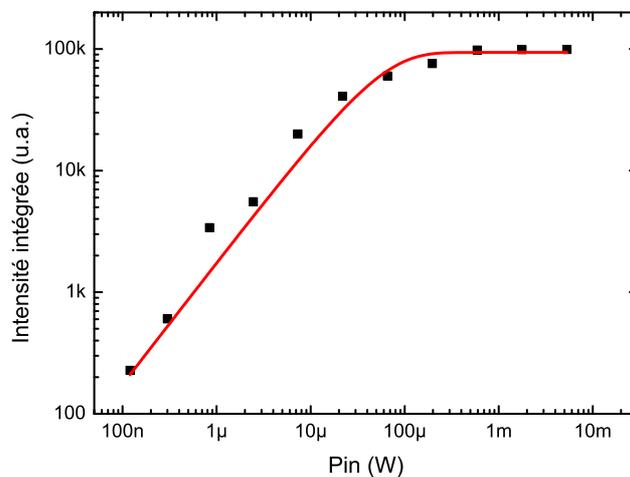


FIG. 3.17 – Evolution de l'intensité intégrée en régime d'excitation pulsé. Les données sont ajustées avec le modèle 3.5.

A faible excitation, l'intensité de la raie est proportionnelle à la probabilité d'injecter une seule paire électron-trou par impulsion laser. Cette probabilité croît bien de manière linéaire avec la puissance de pompe (voir figure 3.17). A plus forte excitation, on observe une saturation en intensité. On se trouve alors dans un régime où un photon est émis par impulsion, quelque soit la puissance d'excitation.

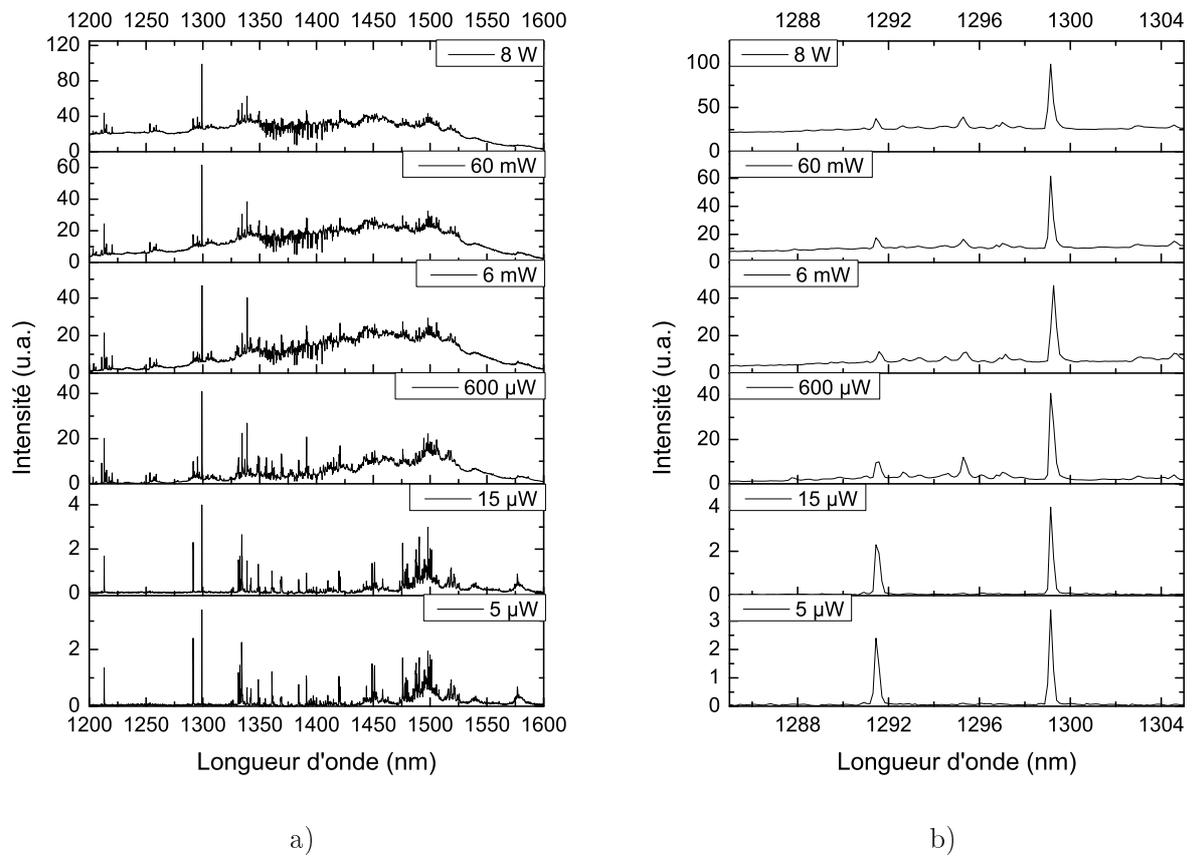


FIG. 3.18 – Spectre du méso $A^{1.3}$ en fonction de la puissance de pompe, sur une large gamme spectrale (a) et centrée sur 1.3 μ m (b)

Evolution sous excitation continue

Sous excitation continue, les spectres sont semblables (position spectrale des raies), mais le comportement en fonction de la puissance de pompe diffère. Pour décrire ce comportement, nous utiliserons le modèle développé dans [99]. Dans ce modèle, on considère que l'état à n paires électron-trou peut être atteint en partant de $n+1$ paires avec une recombinaison radiative d'une de ces paires (avec un taux $1/\tau_{n+1}$), ou en partant d'un état à $n-1$ paires en piégeant une paire (avec un taux $1/\tau_p$ directement relié à la puissance de pompe P). De plus, l'état à n paires peut se vider en recombinant une paire radiativement ou bien piéger une paire. L'équation bilan s'écrit donc :

$$\frac{dP(n)}{dt} = \frac{P(n+1)}{\tau_{n+1}} + \frac{P(n-1)}{\tau_p} - P(n)(1/\tau_p + 1/\tau_n) \quad (3.6)$$

La résolution de ce système en régime stationnaire est détaillé dans [99]. On trouve notamment l'expression de l'intensité de la raie excitonique $I_X(P)$ en fonction de la puissance de pompe P :

$$I_X(P) = I_0 \frac{P}{P_0} e^{-\frac{P}{P_0}} \quad (3.7)$$

où I_0 et P_0 représente l'intensité et la puissance à saturation. Les courbes expérimentales en régime continu sont présentées sur la figure 3.19. La probabilité d'avoir une paire électron-trou croît de manière linéaire à faible puissance avant de saturer. A plus forte puissance, la boîte n'a pas le temps de se vider de ses porteurs et l'intensité de la raie diminue au profit d'états excités.

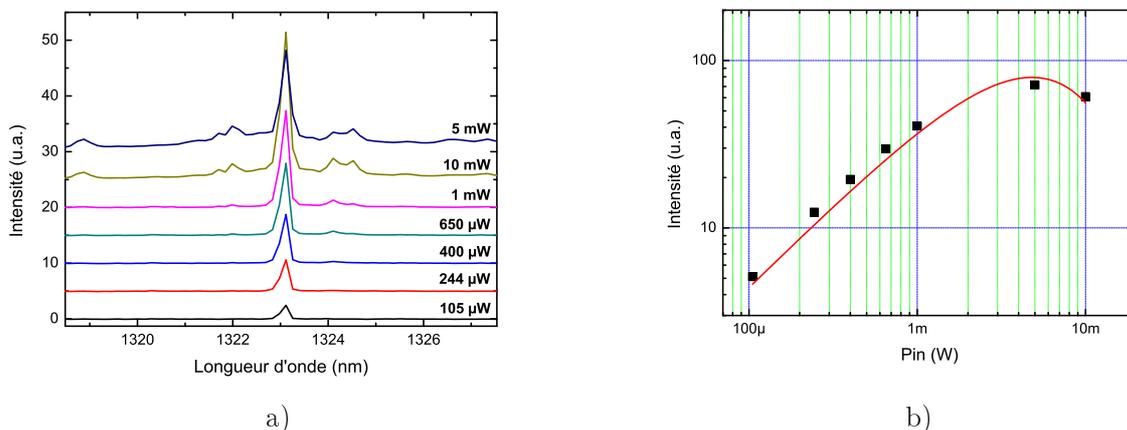


FIG. 3.19 – Spectre du méso $B^{1.3}$ en fonction de la puissance de pompe en régime continu (a). Comparaison de l'intensité intégrée avec le modèle en régime continu (b)

Dans toutes nos études, nous n'avons pas pu identifier de manière sûre la présence d'un biexciton à partir des études en puissance. Généralement, les raies ne sont pas assez résolues, ou bien la présence de plusieurs raies (>3) au pied de la raie la plus intense nous empêche de déduire correctement l'intensité de chacune d'entre-elles. L'idéal serait d'isoler

deux raies intenses et faire des mesures de corrélation et d'anticorrélation pour mettre en évidence la cascade radiative biexciton-exciton [38].

Bilan de l'étude spectrale

Avant d'aborder l'étude de la dynamique d'émission, nous allons résumer les principaux résultats de l'étude spectrale sur mésas. Nous sommes capables d'isoler des raies fines spectralement, première signature de l'émission d'une boîte quantique, essentiellement vers $1.3 \mu\text{m}$. Cet état de fait est également reporté dans plusieurs références : [86, 87]. Dans le reste du chapitre, nous tenterons de comprendre ces différences grâce à des mesures de durée de vie sur différents objets à $1.3 \mu\text{m}$ et $1.5 \mu\text{m}$. Nous verrons également que les objets émettant à $1.3 \mu\text{m}$ peuvent être assimilés à des boîtes quantiques dans le sens le plus strict de la définition, en observant notamment un dégroupement de photons.

3.3 Etude de la dynamique d'émission

3.3.1 Dynamique d'émission dans une boîte et un puits quantique

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats de mesures de durée de vie de nos émetteurs en méso, en fonction de la température et de la puissance de pompe. Outre l'intérêt de connaître la durée de vie de nos émetteurs, nous sommes également capables d'exhiber des caractéristiques d'émission propres aux boîtes quantiques. Avant d'exposer nos résultats, revenons sur les prédictions théoriques sur la dynamique d'émission dans les boîtes quantiques ainsi que dans les puits quantiques.

Les puits quantiques

Dans un puits quantique, les électrons et les trous occupent des bandes d'énergie permises (bande de conduction pour les électrons et bande de valence pour les trous). Si on appelle n la densité de porteur (paires électrons-trous), l'évolution temporelle, à 4 K, s'écrit de manière simple comme (en prenant en compte seulement l'émission spontanée) :

$$\frac{dn}{dt} = G - (r_{nonrad} + r_{rad}) = G - \frac{n_{rad}}{\tau_{rad}} + \frac{n_{nonrad}}{\tau_{nonrad}} \quad (3.8)$$

avec n_{rad} (resp. n_{nonrad}) la fraction de porteurs qui se recombinent radiativement (resp. non radiativement). La probabilité d'émettre un photon au bout d'un temps t est directement proportionnel à $n(t)$ et s'écrit :

$$P(t) \propto e^{-\frac{t}{\tau_{rad}}} \quad (3.9)$$

Une mesure de durée de vie de ce type d'émetteur en suivant le protocole décrit au chapitre 2 donne une exponentielle décroissante comme sur la figure 3.20.

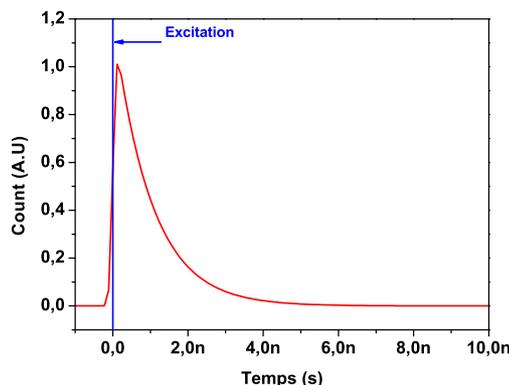


FIG. 3.20 – Probabilité d'émission d'un photon en fonction du temps pour un puits quantique

Les boîtes quantiques

Dans une boîte quantique, il a été démontré et observé [38] que la présence de niveaux d'énergie discrets entraîne une émission séquentielle des photons. On parle de cascade radiative dans une boîte quantique. Afin de modéliser ce phénomène, nous allons utiliser un modèle développé par C. Santori *et al.* [100]. Considérons un mécanisme de désexcitation multiexcitonique. Les équations de populations des niveaux contenant n paires électron-trou peuvent s'écrire :

$$\frac{d}{dt}P_n(t) = \gamma_{n+1}P_{n+1}(t) - \gamma_n P_n(t) \quad (3.10)$$

où $P_n(t)$ est la probabilité d'avoir n paires électron-trou à l'instant t , et γ_n le taux de peuplement de l'état à n paires. Dans ce modèle, les auteurs ne prennent pas en compte la création d'un état chargé positivement ou négativement. Ils négligent ainsi les raies d'émission provenant de ce type d'état, mais s'intéressent seulement à la dynamique des raies multiexcitoniques. Nous supposons que les photons du laser d'excitation sont indépendamment absorbés par la matrice d'InP pour former des paires électron-trou elles-mêmes capturées de manière indépendantes par la boîte quantique. Ainsi, on suppose que la population initiale de charge à l'intérieur de la boîte suit une distribution de Poisson, de valeur moyenne μ . La boîte se désexcite en suivant l'équation 3.10 et l'intensité collectée pour le $n^{\text{ième}}$ exciton peut s'écrire :

$$I_n(t) = \gamma_n I_0 P_n(t) \quad (3.11)$$

où I_0 représente l'intensité à $t = 0$ prenant en compte l'efficacité de collection. D'après [100], si les interactions de Coulomb n'affectent pas les fonctions d'onde des excitons, on peut considérer que $\gamma_n = n\gamma_1$. De manière générale, la durée de vie radiative du biexciton, τ_2 , est reliée à la durée de vie de l'exciton par l'inégalité : $\tau_1/4 < \tau_2 < \tau_1/2$. Par contre, pour des boîtes relativement grosses par rapport au rayon de Bohr de l'exciton, on a plutôt $\gamma_n < n\gamma_1$ [100]. Dans le cas où $\gamma_n = n\gamma_1$, l'expression 3.10 se calcule et on trouve une expression simple pour $P_n(t)$:

$$I_n(t) = \gamma_n I_0 (\mu e^{-\gamma_1 t})^n \frac{\exp(-\mu e^{-\gamma_1 t})}{n!} \quad (3.12)$$

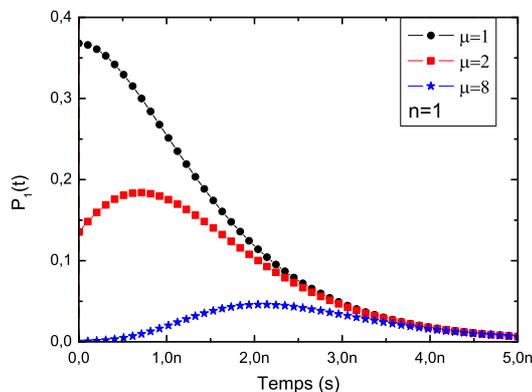


FIG. 3.21 – Probabilité d'émission d'un photon dans une boîte quantique après recombinaison de l'exciton ($n=1$), pour différentes valeurs de charge dans la boîte (1, 2, 8)

L'hypothèse faite précédemment ($\gamma_n = n\gamma_1$) donne lieu à un modèle approché suffisant pour interpréter nos observations. Lorsque le nombre de charge augmente dans la boîte, le maximum de la probabilité P_n se décale dans le temps (voir figure 3.21, pour $n = 1$, $\mu = 1, 2, 8$ et $1/\gamma_1 = 1ns$). Sur les mesures de durée de vie, qui reviennent à mesurer cette probabilité, nous devons observer un décalage temporel du maximum de l'histogramme des temps d'arrivée. Ce décalage est dû à la recombinaison radiative des niveaux supérieurs. Il faut "attendre" que ces porteurs se soient recombinés avant d'émettre un photon dans le niveau inférieur. Dans le cas de la cascade radiative de l'exciton et du biexciton, des expériences de corrélations ont mis en évidence cet effet de cascade [38].

3.3.2 Evolution des durées de vie en fonction de la puissance d'excitation

Mesures à 1.3 μm

Comme on peut le constater sur la figure 3.22, la dynamique d'émission est fortement dépendante de la puissance de pompe. Ces mesures sont faites sur le méssa $A^{1,3}$, et nous représentons cinq histogrammes correspondant à cinq puissances de pompe.

A faible puissance, la probabilité d'émission est une simple exponentielle décroissante, caractéristique des systèmes à 2 niveaux. Dans ce cas, seul l'état fondamental est peuplé. Hormis la présence d'un temps rapide à délai nul, on observe bien un décalage temporel (jusqu'à 2 ns) du maximum de la population de porteurs. Ces observations sont en accord avec le modèle et les observations expérimentales de [100].

Pour comprendre l'apparition du temps court visible à délai nul lorsque la puissance augmente, nous avons fait une mesure de durée de vie en dehors (spectralement) de

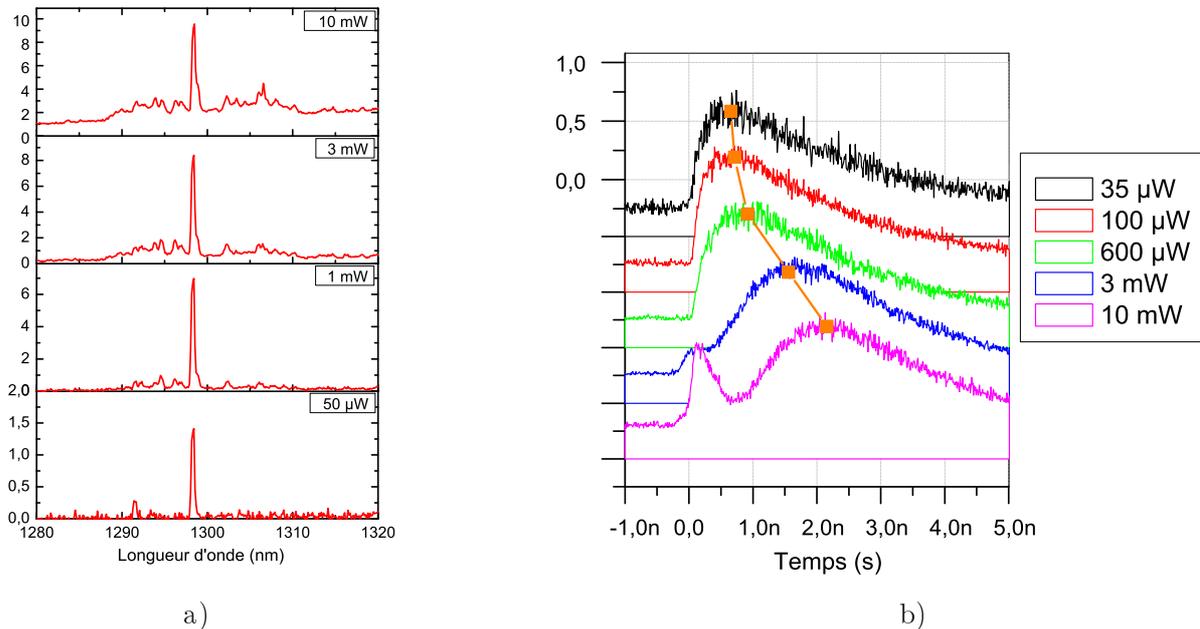


FIG. 3.22 – Spectre (a) et durée de vie (b) en fonction de la puissance de pompe pour la méso $A^{1.3}$

la raie, sur le signal du fond continu. Sur la figure 3.23 nous avons superposé cette mesure effectuée à 1290 nm (soit à 10 nm de la raie étudiée) avec l'histogramme correspondant à une puissance de 10 mW. Le signal du fond continu se superpose avec le signal à délai nul obtenu sur l'histogramme lorsque le spectromètre est réglé sur la longueur d'onde de la raie principale. Nous attribuons ce signal à la collection des photons provenant du fond continu au pied de la raie. Ce phénomène est observé sur la totalité de mésas vers $1.3 \mu\text{m}$ et la durée de ce temps court est de l'ordre de 450 ps. Nous avons également mesuré la durée de vie à 60 K à 1290 nm sur le signal continu pour des faibles puissances de pompe ($< 500 \mu\text{W}$), et nous retrouvons des temps courts de 450 ps. Ces états peuvent donc être thermiquement peuplés. Dans [101], la durée de vie des états hybrides est de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes avec un temps de décroissance de 1.5 ns pour le niveau fondamental. Les mesures faites sur notre système semblent confirmer que le fond continu présent au pied de la raie provient d'états hybrides.

Analyse des résultats

Les observations préliminaires montrent un comportement singulier de la dynamique d'émission. En utilisant la formule 3.12 nous pouvons accéder à l'évolution du nombre de charges en fonction de la puissance de pompe, en prenant $n = 1$. La mesure de la réponse temporelle du montage nous permet de simuler la convolution entre cette réponse et la formule 3.12 (voir figure 3.24). Le nombre de paramètres libres étant important (I_0 , μ , τ et le bruit de fond y_0), nous choisissons dans un premier temps de mesurer le temps de

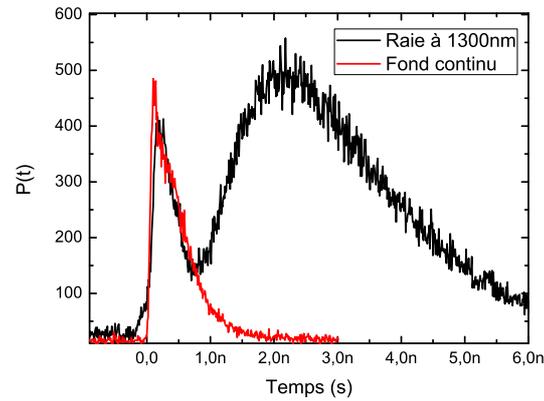


FIG. 3.23 – *Durée de vie sur le méssa $A^{1.3}$ à 10 mW (noir) et durée de vie du signal continu à 1290 nm (rouge)*

vie τ par des ajustements linéaire en échelle logarithme pour des temps supérieurs à 3 ns, pour chaque puissance de pompe. Pour calculer le nombre moyen de charge μ , il suffit de repérer le temps t_0 correspondant au maximum de l'histogramme et d'injecter cette valeur dans l'expression 3.12 connaissant τ . Un exemple d'ajustement des paramètres I_0 et y_0 en suivant cette démarche est présenté sur la figure 3.24.

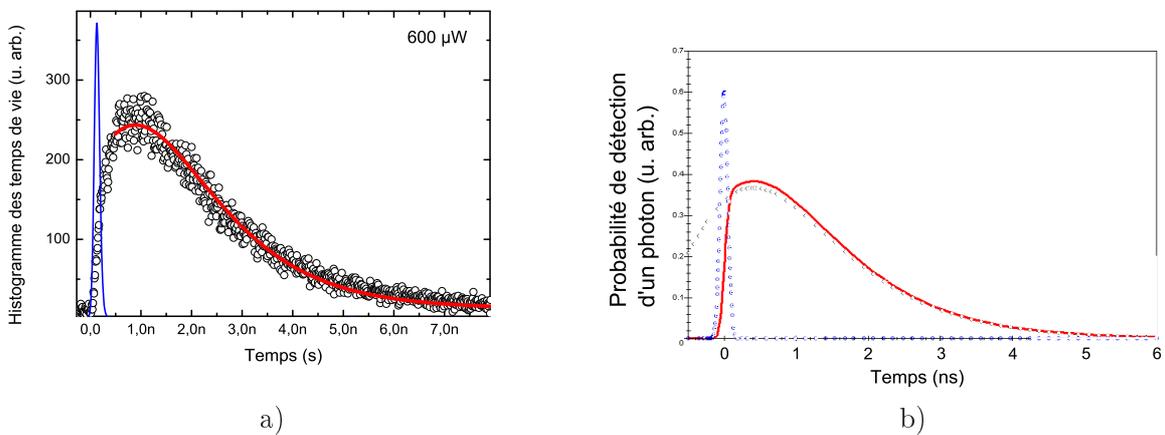


FIG. 3.24 – (a) : *Exemple d'ajustement des données expérimentales par le modèle théorique pour une puissance de 600 μW . On a également représenté la mesure expérimentale de la réponse temporelle du montage (Gaussienne de 52 ps de waist); (b) : Simulation (trait plein) du modèle 3.12 convoluée par la réponse du détecteur.*

Les résultats pour différentes puissances de pompe sont regroupés sur la figure 3.25, et nous pouvons extraire les conclusions suivantes quant à la dynamique d'émission d'une boîte unique :

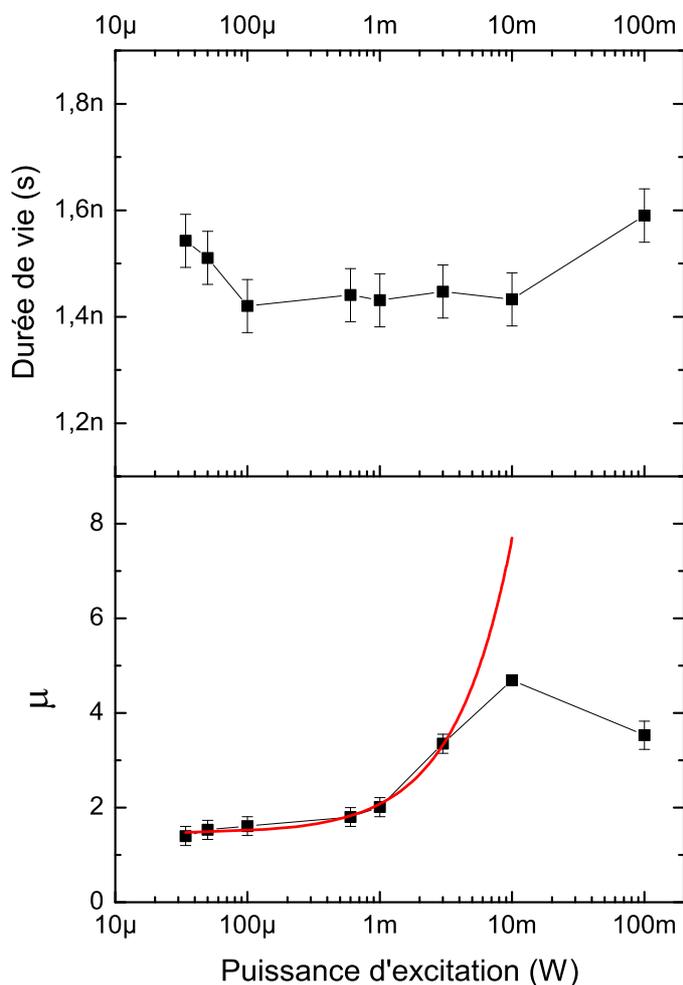


FIG. 3.25 – Haut : Evolution de la durée de vie en fonction de la puissance de pompe pour le méso $A^{1,3}$; Bas : Evolution du nombre de charge moyen dans la boîte en fonction de la puissance de pompe en échelle Logarithmique. A faible puissance, l'augmentation du nombre de charge est linéaire en fonction de la puissance d'excitation.

- La durée de vie moyenne de notre émetteur est de 1.45 ns. On constate que ce temps ne varie que très peu en fonction de la puissance d'excitation. La recombinaison des porteurs est donc peu perturbée par la présence de charges environnantes.
- Le nombre de charge moyen dans la boîte augmente en fonction de la puissance de pompe. Dans un premier temps, cette augmentation est linéaire avec la puissance de pompe (entre 35 μ W et 3 mW). La courbe en train plein représente l'ajustement linéaire. Le nombre de charge sature ensuite vers une valeur proche de 5 vers 10 mW. Il semblerait que l'on remplisse les orbitales s et p de l'atome artificiel. Habituellement, il est possible de mettre 2 charges sur l'orbitale s et 6

sur l'orbitale p soit un total de 8 charges. Des résultats théoriques portant sur la simulation des orbitales dans une boîte InAs/InP de petite dimension (25 nm de diamètre pour 2.5 nm de hauteur) [80], indiquent que l'orbitale P_z n'existe pas dans une boîte de faible hauteur. Ceci explique pourquoi le nombre moyen de charge μ sature une valeur proche de 6. Une fois tous les états électroniques remplis, les niveaux sont saturés et l'excédent de charge ne remplit pas la boîte. Enfin, la valeur de μ diminue à plus forte puissance, ce qui peut être dû à un dépeuplement d'origine thermique provenant du laser d'excitation.

Ces mesures sont une preuve que nos objets émettant vers 1.3 μm se comporte comme des boîtes quantiques car nous pouvons mettre en évidence un phénomène de cascade radiative. Nous verrons en fin de chapitre que la statistique d'émission de photon pour cette raie présente un caractère purement quantique et qu'il est possible de réaliser une source de photon unique "à la demande" à 1.3 μm .

Mesures sur les mésas 1.5 μm

Les conclusions apportées précédemment sur les mésas à 1.3 μm ne sont pas aussi directement visibles sur les mesures à 1.5 μm . Sur le spectre de la figure 3.26 (a) (mésa B^{1.5}), on distingue une structuration fine accompagnée d'un important fond continu. En comparaison avec les mesures à 1.3 μm , cette luminescence apparaît très vite, même à faible puissance d'excitation. On observe encore la contribution de deux temps sur les mesures de durée de vie : l'un provenant des photons à la longueur d'onde étudiée et l'autre des photons issus du fond continu (voir figure 3.26 (b)).

La présence d'un épaulement vers 1.5 ns laisse supposer un décalage du maximum de l'histogramme comme observé à 1.3 μm . Pour pouvoir appliquer le modèle précédent pour ajuster l'histogramme des durées de vie, nous avons corrigé les courbes en soustrayant la contribution des temps court à délai nul. Pour cela, on effectue une correction des courbes en normalisant l'histogramme (pointillés carrés sur la figure 3.26 (b)) puis en soustrayant le temps court que l'on mesure à 10 nm de la raie (coté haute énergie, en pointillés ronds sur la figure 3.26 (a) et (b)). La courbe résultant de l'opération "histogramme à 1535 nm" - "histogramme à 1530 nm" présente un maximum décalé de 2 ns environ (en étoile sur la figure 3.26 (b)). L'ajustement par le modèle 3.12 est également représenté sur la même figure en trait plein.

L'étude complète des durée de vie en fonction de la puissance n'est pas représentée, mais on observe le même comportement que sur les mésas à 1.3 μm , à savoir une augmentation puis une saturation du nombre de charge vers $\mu \approx 6$. Nous mettons alors de nouveau en évidence un phénomène de cascade radiative. La durée de vie du fond continu est semblable à celle mesurée à 1.3 μm (≈ 500 ps), et la durée de vie τ est de l'ordre de 1.5 ns. La différence majeure entre cette étude et celle vers 1.3 μm réside dans l'apparition plus rapide du fond continu. Ceci peut se comprendre de manière intuitive si on considère que les boîtes émettant vers 1.5 μm sont plus grosses et plus hautes que celles émettant vers 1.3 μm . Dès lors, dans le premier cas, l'écart en énergie des niveaux des électrons et des trous se resserrent. Si on prend en compte l'existence d'états hybridés avec la couche de

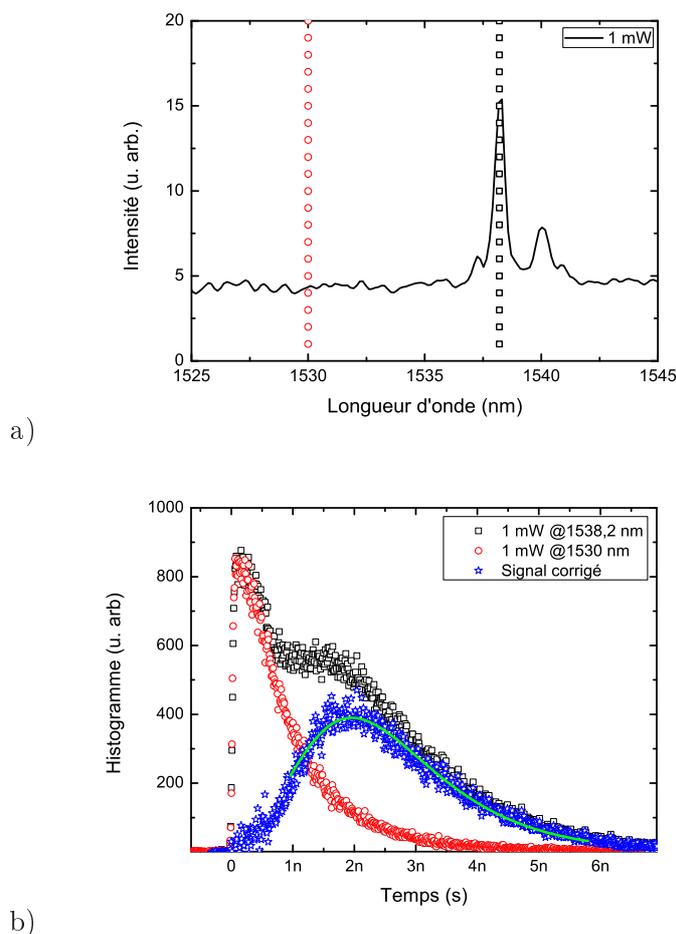


FIG. 3.26 – (a) Spectre du méso $B^{1.5}$ à 1 mW de puissance d'excitation. Les traits à 1530 nm et 1538 nm symbolisent les régions où l'on effectue les mesures de durée de vie ; (b) Histogramme des durées de vie. La courbe en bleu (étoile) est la soustraction de la courbe à 1538 nm par celle à 1530 nm. En trait plein, on a représenté l'ajustement avec le modèle 3.12

mouillage, alors la densité d'état final peut s'assimiler à un quasi-continuum (voir schéma 3.27).

Dans l'état de l'art actuel, avec la composition des boîtes mentionnée dans le chapitre précédent, le confinement énergétique semble être trop faible si l'on souhaite éviter la présence de ce fond de luminescence. A très faible puissance ($<100 \mu\text{W}$), le nombre de photons détectés sur les détecteurs supraconducteur est trop faible (<500 photons/s) pour pouvoir réaliser des mesures de dégroupement de photon. Néanmoins, les mesures de durée de vie nous ont permis de mettre en évidence un phénomène de cascade radiative vers $1.5 \mu\text{m}$. Pour pouvoir diminuer l'effet du fond continu, une solution serait de contrôler l'incorporation en phosphore afin d'augmenter le confinement énergétique dans la boîte tout en restant à des énergies d'émission proches de 0.8 eV.

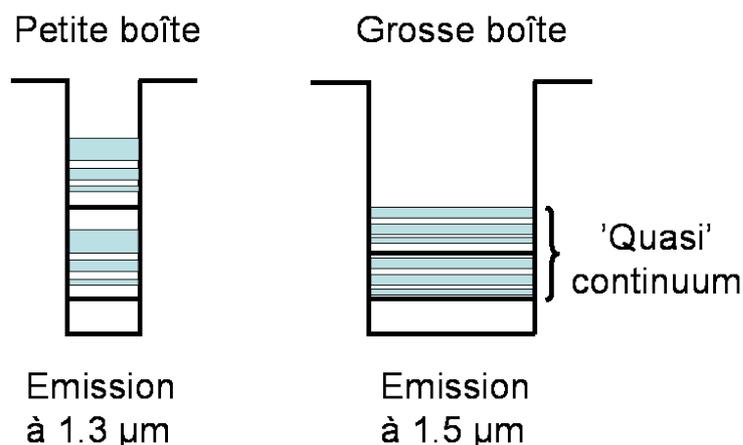


FIG. 3.27 – Schéma illustrant la différence entre les boîtes de petite et grosse taille. On représente les états fondamentaux ainsi que les états hybridés (voir section 3.2.1). Dans le cas d'une boîte émettant vers $1.5 \mu\text{m}$, tous ces états forment un quasi-continuum.

Dans la fin de ce chapitre, nous nous concentrons sur l'étude du méso A^{1-3} . Nous allons montrer que les propriétés d'émission restent inchangées jusqu'à 60 K , et qu'il est possible d'observer un dégroupement de photon à 4 K , signature d'un émetteur de photon unique.

3.3.3 Evolution des durées de vie en fonction de la température

Durée de vie en fonction de la température

Dans ce paragraphe nous étudions le comportement dynamique du méso A^{1-3} en fonction de la température. L'excitation est toujours impulsionnelle et pour chaque température, on déplace la longueur d'onde du spectromètre afin de collecter le signal correspondant au maximum de la raie. La puissance est choisie de telle façon à ne pas saturer la boîte ($350 \mu\text{W}$, soit un nombre de charge μ proche de 1).

Lorsque la température augmente, on observe le même décalage temporel que précédemment lors des mesures de durée de vie en fonction de la puissance de pompe. Cela signifie que le nombre de charge augmente dans la boîte en fonction de la température. Nous pouvons utiliser la formule 3.12 pour déterminer μ . Les résultats⁵ sont regroupés sur la figure 3.28.

De même que précédemment, la durée de vie de l'émetteur reste inchangée de 4 K à 90 K . Nous n'observons pas de diminution de la durée de vie qui serait la signature de d'effets non radiatifs. D'autre part, le nombre moyen de charge μ dans la boîte augmente entre 4 K et 90 K passant de 1.3 à 2.3 charges. Une façon de comprendre cette augmentation consiste à considérer l'existence de pièges présents proches de la boîte (marche atomique, atome vacant par exemple). Lorsque le semi-conducteur est pompé optiquement, une partie

⁵Pour les mesures supérieures à 40 K , nous avons procédé à la soustraction de la durée de vie du fond continu (voir paragraphe 3.3.2).

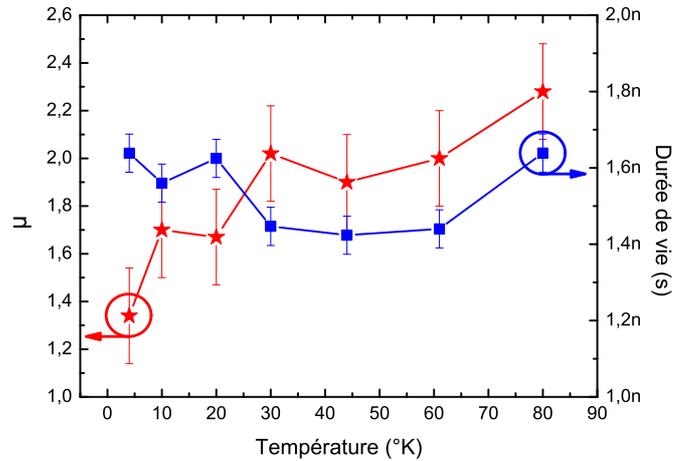


FIG. 3.28 – Evolution de la durée de vie (carré) et du nombre de charge moyen μ (étoile) sur la raie à $1.3 \mu\text{m}$ en fonction de la température

des porteurs ont une certaine probabilité de se fixer à ces pièges. Lorsque la température augmente, l'énergie thermique devient suffisante pour dépeupler ces pièges faiblement énergétiques et les charges peuvent être capturées par la boîte.

Nous n'avons pas été en mesure de réaliser le même type de mesure sur les autres mésas à $1.5 \mu\text{m}$ mais les résultats attendus ne doivent pas différer au vu des conclusions du paragraphe 3.3.2. Ces objets sont sensiblement les mêmes et les mécanismes de capture de charge ne doivent pas varier.

3.3.4 Conclusions

L'utilisation des détecteurs supraconducteurs nous a permis d'étudier précisément l'impact de plusieurs facteurs sur la dynamique d'émission à l'échelle de la boîte unique. La connaissance de la durée de vie radiative est essentielle si l'on désire concevoir des composants actifs basés sur ce type de boîtes. L'évolution de la durée de vie en fonction de la puissance de pompe nous a permis de mettre en évidence un phénomène de cascade radiative, signature propre à un comportement de boîte quantique. Nous avons également partiellement répondu aux hypothèses formulées au début de chapitre sur l'origine des objets émettant vers $1.5 \mu\text{m}$. La dynamique de ces objets est similaire à ceux émettant vers $1.3 \mu\text{m}$. Néanmoins, le faible confinement dans ce type de boîte entraîne un resserrement des niveaux pour les électrons et pour les trous. Si on ajoute l'hybridation de ces états, on aboutit à un quasi-continuum d'état. Spectralement, cela se traduit par un fond continu au pied des raies d'émission. On mesure des durées de vie de l'ordre de quelques centaines de picoseconde ce qui a déjà été observé pour des états hybrides [101]. Une meilleure compréhension de la structure des niveaux d'énergie en fonction de la composition et de la taille des boîtes est nécessaire si l'on souhaite réaliser des boîtes quantiques plus confinantes émettant vers $1.5 \mu\text{m}$. Enfin, les mesures spectrales et les valeurs de durée de vie vers 77

K sont très encourageantes si on envisage une utilisation à plus haute température.

3.4 Mesures de corrélations sur boîte quantique unique

Dans ce paragraphe, nous allons détailler les mesures de dégroupement de photons que nous avons réalisées sur une boîte unique émettant vers $1.3 \mu\text{m}$ (mésa $\text{A}^{1,3}$). Nous avons retenu cette longueur d'onde pour trois raisons principalement :

- Le signal de ce mésa est particulièrement intense comparé à d'autres observés sur le même échantillon. Ceci peut provenir de la position de la boîte sur le mésa (au milieu et non sur les bords à moitié gravé).
- La raie est suffisamment isolée et il est facile de filtrer uniquement la lumière provenant de cette longueur d'onde.
- Nous avons vu qu'à ces longueurs d'onde, le fond continu apparaît moins vite en fonction de la puissance de pompe. Ceci nous permet d'augmenter la puissance d'excitation pour augmenter le nombre de photons détectés sans collecter de la lumière provenant du continuum.

Nous commencerons par rappeler quelques définitions sur les fonctions d'autocorrélation. Nous ferons également un rappel sur le montage utilisé avant de présenter les résultats.

3.4.1 Fonction d'autocorrélation, quelques rappels

Afin de déterminer le degré de cohérence d'une source lumineuse, nous sommes amenés à mesurer sa fonction d'autocorrélation. Dans le cadre de cette thèse, nous utiliserons la fonction d'autocorrélation du deuxième ordre pour déterminer si nous avons une source de photons uniques, mais aussi afin de caractériser le degré de cohérence de nos lasers à boîtes quantiques. Nous allons exposer ici quelques bases sur la fonction d'autocorrélation.

Définition

Pour mesurer les corrélations d'intensité d'une onde lumineuse, on définit de manière générale la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 pour un temps τ par l'expression suivante :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t)E(t+\tau) \rangle}{\langle E(t)^*E(t) \rangle^2} = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (3.13)$$

où $I(t) = E(t)E^*(t)$ représente l'intensité de l'onde lumineuse et $E(t)$ l'amplitude du champ électrique de l'onde avec E^* son amplitude conjuguée à un instant t , et $\langle \dots \rangle$ désigne la moyenne temporelle.

Fonction d'autocorrélation pour une source classique chaotique

Intéressons nous au cas d'une source dite thermique, dont l'émission des photons se fait de manière chaotique. On peut montrer que la fonction d'autocorrélation pour un temps τ s'écrit :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (3.14)$$

où $g^{(1)}(\tau)$ représente la fonction d'autocorrélation du premier ordre du champ électrique. C'est elle que l'on mesure avec un montage de Michelson, avec τ qui représente le retard induit dans un bras du Michelson. Or, d'après le théorème de Wiener-Khinchin, cette fonction est égale à la transformé de Fourier de la densité spectrale de la source. Si l'élargissement autour d'une pulsation ω_0 est de nature Doppler, la densité spectrale est une gaussienne de type :

$$I(\omega) = I_0 e^{-1/2(\frac{\omega-\omega_0}{\Delta\omega})^2} \quad (3.15)$$

avec $\Delta\omega$ l'élargissement spectral. Ainsi, la fonction $g^{(1)}$ s'écrit :

$$g^{(1)}(\tau) \propto e^{-1/2(\Delta\omega\tau)^2} \quad (3.16)$$

Si l'élargissement est dû aux collisions entre les émetteurs, alors la distribution spectrale sera Lorentzienne. Dans ce cas, on pourra écrire que :

$$g^{(1)}(\tau) \propto e^{-\Delta\omega\tau} \quad (3.17)$$

Dans les deux cas, il est important de noter que $g^{(2)}(0) = 2$.

Fonction d'autocorrélation pour une source de nature quantique

Si on considère le caractère quantique de la lumière, il faut reprendre l'expression de la fonction d'autocorrélation en remplaçant le champ classique par :

$$E = E^{(+)} + E^{(-)} \quad (3.18)$$

où $E^{(+)}$ et $E^{(-)} = (E^{(+)})^\dagger$ sont respectivement la partie positive et négative de l'opérateur champ électrique en représentation d'Heisenberg. L'expression de la fonction d'autocorrélation prend alors la forme :

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle E^{(-)}(t_1)E^{(-)}(t_2)E^{(+)}(t_1)E^{(+)}(t_2) \rangle}{\langle E^{(-)}(t_1)E^{(+)}(t_1) \rangle \langle E^{(-)}(t_2)E^{(+)}(t_2) \rangle} \quad (3.19)$$

Plaçons nous dans le cas d'une onde monomode, l'expression ci-dessus se simplifie en :

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle a_1^\dagger a_2^\dagger a_2 a_1 \rangle}{\langle a_1^\dagger a_1 \rangle \langle a_2^\dagger a_2 \rangle} \quad (3.20)$$

ou encore :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle a^\dagger a^\dagger a a \rangle}{\langle a^\dagger a \rangle \langle a^\dagger a \rangle} \quad (3.21)$$

où a et a^\dagger représentent respectivement les opérateurs d'annihilation et de création.

Prenons l'exemple d'un état cohérent $|\alpha\rangle$. Nous avons les relations suivantes :

$$a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \quad (3.22)$$

$$\langle\alpha|a^\dagger = \langle\alpha|\alpha^* \quad (3.23)$$

$$\langle\alpha|a^\dagger a|\alpha\rangle = |\alpha|^2 \quad (3.24)$$

$$\langle \alpha | a^\dagger a^\dagger a a | \alpha \rangle = |\alpha|^4 \quad (3.25)$$

Et donc :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 \quad (3.26)$$

Prenons maintenant le cas d'un état nombre $|n\rangle$. On a :

$$\langle n | a^\dagger a | n \rangle = \|a |n\rangle\|^2 = \langle \hat{n} \rangle \quad (3.27)$$

$$\langle n | a^\dagger a^\dagger a a | n \rangle = \|a a |n\rangle\|^2 = \langle \hat{n}(\hat{n} - 1) \rangle \quad (3.28)$$

avec $\langle \hat{n} \rangle$ le nombre moyen de photon dans le mode, et donc :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{n}(\hat{n} - 1) \rangle}{\langle \hat{n}^2 \rangle} \quad (3.29)$$

Ainsi, si l'état nombre est un état à un photon, la fonction d'autocorrélation du second ordre s'annule : $g^{(2)}(\tau = 0) = 0$.

3.4.2 Montage d'Hanbury Brown et Twiss ; Mesure de corrélation en régime d'excitation impulsif

Nous venons de voir que pour tester la capacité de nos émetteurs à fournir des photons uniques, il suffit de mesurer la fonction d'autocorrélation du second ordre $g^2(\tau)$, et plus particulièrement sa valeur pour $\tau = 0$. Cette fonction fut mesurée par Hanbury Brown et Twiss en 1956, et le principe reste toujours le même. On représente sur la figure 3.29 un schéma du montage. Dans cette configuration, le signal à analyser est envoyé sur une lame 50/50 et on place deux détecteurs en sortie. On vient ensuite calculer le produit des deux intensités fournies par les détecteurs en fonction du τ introduit entre les deux voies. On mesure donc directement la fonction d'autocorrélation du second ordre $g^2(\tau)$.

Mesures en régime pulsé

On s'intéresse dans la suite au cas particulier où le rayonnement entrant est formé d'une suite d'impulsions optiques dont on souhaite connaître la statistique. On souhaite en particulier connaître la fonction $g^{(2)}$ des impulsions individuelles, supposées toutes identiques. Dans nos expériences, la boîte quantique est excitée par des impulsions laser avec une période de répétition de l'ordre de 12 ns. On vérifie dès lors que ce temps de répétition est bien supérieur à la durée de vie radiative de nos émetteurs (de l'ordre de 1-2 ns). De plus, les conditions d'excitation et les propriétés optiques de la source sont supposées invariantes au cours du temps. Les signaux qui sont envoyés dans le montage de type Hanbury Brown et Twiss peuvent être donc assimilés à des impulsions identiques, émises périodiquement, sans corrélations les unes avec les autres.

La construction de la courbe de corrélation se fait en enregistrant par exemple l'histogramme des temps d'arrivée des photons sur la voie B sachant que l'on a détecté un photon sur la voie A. Pour cela, on utilise directement le signal en sortie des détecteurs que l'on envoie sur les deux voies de l'oscilloscope. On utilise un déclenchement conditionné, qui déclenche l'acquisition sur une voie sachant qu'un signal est détecté sur l'autre voie,

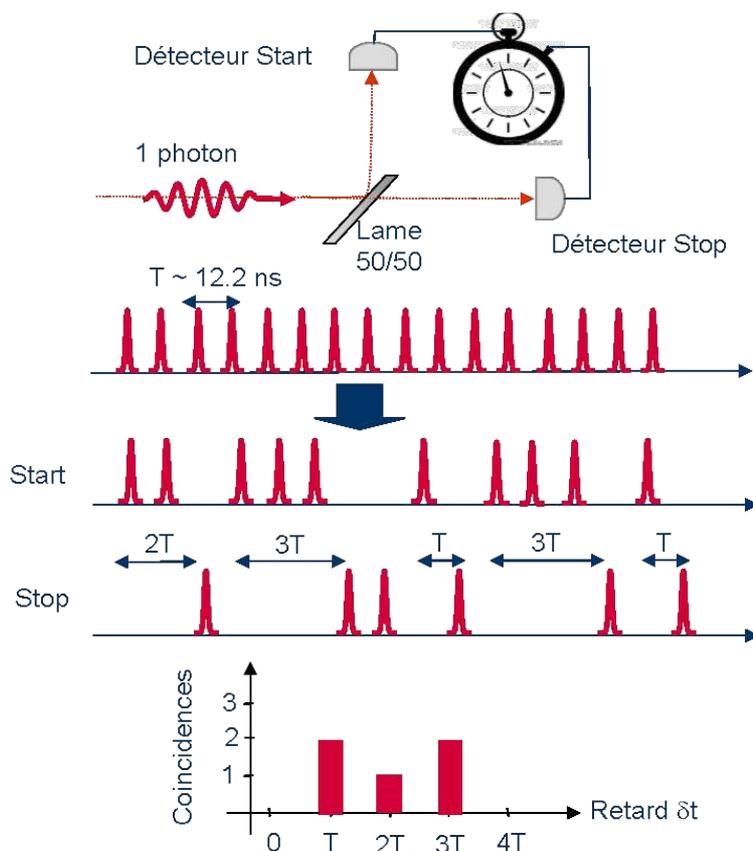


FIG. 3.29 – Schéma de principe de l'expérience d'Hanbury Brown et Twiss

sur une fenêtre temporelle que l'on fixe à 70 ns (ceci nous permet de visualiser 5 pics sur l'histogramme). On programme également sur l'oscilloscope une fonction automatique qui mesure l'écart temporel entre les deux signaux visibles à l'écran et on affiche directement l'histogramme de ces mesures.

Quelques remarques sur la mesure :

- Pour ce type de mesure, il est important de bien repérer l'origine des temps qui correspond à $\tau = 0$. Comme la fonction de déclenchement conditionné de l'oscilloscope ne permet de visualiser des coïncidences pour des temps négatifs, on ajoute artificiellement un délai sur l'une des deux voies, en ajoutant simplement 2 m de fibre optique juste avant un détecteur. Ce délai correspond à un retard de 20 ns environ.
- Dans ce régime impulsionnel, il faut bien noter qu'on enregistre pas directement la fonction $g^{(2)}(\tau)$, mais cela revient à l'échantillonner toute les 12 ns. On gagne ainsi du temps d'acquisition par rapport à une mesure sous excitation continue.

3.4.3 Résultats expérimentaux

Conditions d'expérience

Les mesures sont faites sur la raie à $1.3 \mu\text{m}$ du méso B^{1.3}. Le signal de photoluminescence est filtré spectralement par le spectromètre. On détecte environ 650.000 photons sur la caméra InGaAs. En basculant le miroir de sortie du spectromètre, le signal est collecté dans une fibre optique et envoyé dans un coupleur 50/50 également fibré. On obtient jusqu'à 1500 et 2000 photons/s sur chacun des détecteurs supraconducteurs avec 250 coups d'obscurité.

Au vue des mesures de durées de vie exposées au paragraphe 3.3.2, la puissance d'excitation est fixée à $600 \mu\text{W}$. A cette puissance, la durée de vie est mono exponentielle et le temps de décroissance vaut 1,5 ns. L'histogramme de la figure 3.30 correspond au résultat brut de mesure, comptabilisant 5336 événements de doubles détections mesurés. Le nombre de coups moyen sur chaque détecteur est d'environ 1500 photons/s. La durée d'acquisition est de 940 minutes.

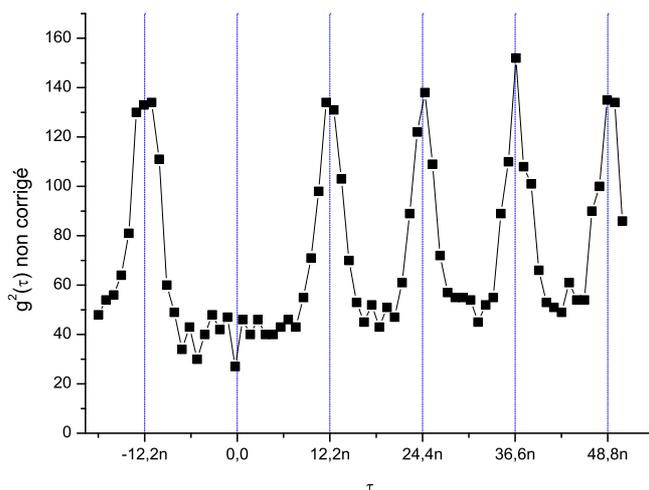


FIG. 3.30 – *Histogramme des corrélations sans correction. En pointillés on représente la période de répétition du laser. L'absence de corrélation à délai nul est la signature d'un dégroupement de photon. L'émetteur est bien une source de photon unique. La durée de l'acquisition est d'environ 1000 min.*

L'histogramme met en évidence une série de pics, séparés par la période de répétition du laser, soit 12,2 ns. On remarque très nettement que le pic à $\tau = 0$ est absent. Ces valeurs ne sont pas corrigées du bruit provenant des coïncidences de type bruit_{voieA}-bruit_{voieB}, signal_{voieA}-bruit_{voieB} et bruit_{voieA}-signal_{voieB}. Une fois les calculs faits, nous obtenons la valeur de bruit suivante :

$$g_{\text{bruit}}^2 = 28 + \sqrt{28} \quad (3.30)$$

Afin de quantifier la valeur de $g^2(0)$, nous avons ajusté la courbe de corrélations

avec une somme de gaussiennes situées à 12.2 ns d'intervalle. Sur la figure 3.31, nous avons représenté l'aire des gaussiennes normalisée à la valeur moyenne des cinq pics. Nous avons également calculé l'aire du pic à délai nul et on trouve une valeur de $g^2(0) \approx 0.18$. Compte tenu du faible nombre de coïncidence total, nous ne pouvons pas estimer de barre d'erreur sur cette valeur de $g^2(0)$.

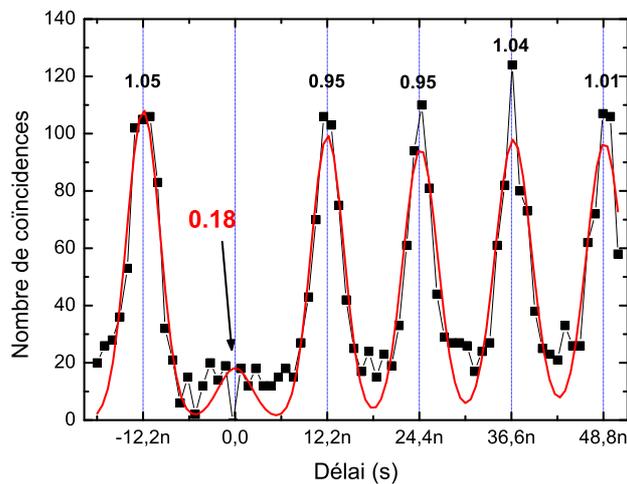


FIG. 3.31 – Histogramme des corrélations avec correction du bruit. On représente également en trait plein un ajustement par une somme de huit gaussiennes (3 ns de waist). Les chiffres au-dessus représentent les aires normalisées de ces gaussiennes.

Cette mesure de $g^{(2)}$ en régime impulsionnel montre que lorsque la boîte émet un photon (et que ce dernier est détecté), il faut attendre 12,2 ns avant de pouvoir en détecter un autre. Notre boîte émet donc des impulsions lumineuses contenant un photon. Nous pouvons affirmer, grâce à cette signature directe, que notre objet émettant à $1.3 \mu\text{m}$ est bien une boîte quantique dans le sens le plus restrictif de sa définition.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons pu mettre en évidence le comportement singulier des boîtes InAsP/InP. Il est possible d'isoler une boîte quantique unique à $1.3 \mu\text{m}$ par une technique de gravure de méso et d'étudier la dynamique d'émission des photons. Le dégroupement de photon observé sur ce type d'objets confirme que les boîtes InAsP/InP peuvent être utilisées comme source de photons uniques à $1.3 \mu\text{m}$. Il apparaît également que les objets émettant vers $1.5 \mu\text{m}$ ont un comportement de boîtes quantiques car nous pouvons mettre en évidence un phénomène de cascade radiative. Grâce aux mesures de photoluminescence résolues en temps, nous pouvons contrôler le nombre de charges moyen dans la boîte, en fonction de la puissance d'excitation et de la température. Néanmoins, la présence d'un fond continu, probablement dû à l'apparition d'un quasi-continuum d'état dans les boîtes quantiques de grosses dimensions, ne nous permet pas dans l'immédiat de mettre en évidence un dégroupement de photons à $1.5 \mu\text{m}$. L'étude de la photoluminescence

des boîtes quantiques en fonction de la température démontre également la capacité de réaliser une source de photons uniques à 77 K.

Chapitre 4

Application à la réalisation d'une source de photon unique à $1.55 \mu\text{m}$

Dans cette partie, nous présenterons une des applications potentielles des boîtes quantiques présentées dans les précédents chapitres : la réalisation d'une source de photon unique à $1.55 \mu\text{m}$. Mais auparavant, il conviendra de revenir sur les critères à satisfaire pour réaliser une telle source et définir ce que l'on entend par "source de photons uniques idéale". Pour s'approcher d'une telle source idéale à partir de boîtes quantiques uniques, nous verrons qu'il sera nécessaire de mettre en jeu des effets d'ElectroDynamique Quantique de Cavité. Les raisons sont multiples. En effet, la durée de vie de la transition fondamentale dans nos boîtes est de l'ordre de la nanoseconde. Pour obtenir des sources de photon unique avec un débit au moins égal à 3 GHz, il devient nécessaire d'accélérer le processus d'émission spontanée sur cette transition. Ceci peut être obtenu en utilisant l'effet Purcell : en isolant un dipôle émetteur placé en résonance spectrale et spatiale d'un mode d'une microcavité, il devient possible d'exalter sa dynamique d'émission spontanée. Un autre avantage offert par la mise en œuvre d'effets d'exaltation de l'émission spontanée, réside dans la possibilité de pouvoir générer des photons uniques indiscernables comme démontré dans [6, 102, 96], voire intriqués comme indiqué dans les travaux théoriques décrits dans [103, 104]. Ceci est un pré-requis pour la mise en œuvre de relais quantiques. Nous discuterons alors des conditions expérimentales pour obtenir un tel effet, notamment en isolant la boîte quantique au sein d'une cavité à cristal photonique sur membrane. Nous décrirons birèvement les processus de fabrication de telles cavités et de leur caractérisation spectrale. Un des problèmes majeurs pour bénéficier pleinement de l'effet Purcell est son caractère résonant : le dipôle doit être en résonance spatiale et spectrale avec le mode de cavité. Or, lors de la croissance de boîtes quantiques auto-assemblées, il est impossible de contrôler le site de nucléation des boîtes et l'on ne contrôle que de façon très relative leur longueur d'onde d'émission. Nous décrirons enfin les efforts entrepris au laboratoire pour croître des boîtes quantiques localisées.

4.1 Rappel sur les effets d'électrodynamique quantique en cavité en régime de couplage faible

4.1.1 Emission spontanée en espace libre : Approche classique

Dans le cadre de l'électrodynamique classique, nous pouvons modéliser un émetteur par un dipôle idéal constitué d'une charge $-q$ et de masse m (électron) élastiquement lié à une charge $+q$ (noyau), l'ensemble restant neutre. L'interaction entre le rayonnement induit du dipôle et la force exercée par la charge sur ce champ entraîne un amortissement du mouvement de l'électron. L'énergie perdue est convertie dans un processus d'émission d'un photon. On parle alors d'émission spontanée. On peut de manière simple calculer le taux d'émission spontanée dans le vide en appliquant le principe de conservation de l'énergie. L'énergie mécanique de l'oscillateur harmonique est donnée par :

$$E_m = \frac{1}{2} m a^2 \omega^2 \quad (4.1)$$

où a est l'amplitude de l'oscillation et ω sa fréquence. Dans le cadre d'un oscillateur harmonique, la puissance rayonnée par le dipôle est donnée par la formule :

$$P = \frac{q^2 a^2 \omega^4}{12\pi\epsilon_0 c^3} \quad (4.2)$$

où ϵ_0 est la permittivité dans le vide, c la vitesse de la lumière dans le vide et q la charge du dipôle rayonnant. Si on applique le principe de conservation de l'énergie, on obtient l'expression suivante du taux d'émission spontanée dans le vide Γ^{vide} :

$$\Gamma^{vide} = \frac{P}{E_m} = \frac{\omega^2 q^2}{6\pi\epsilon_0 m c^3} \quad (4.3)$$

On remarque que dans cette approche, le taux d'émission spontanée ne dépend pas du moment dipolaire ni de la fréquence optique, ce qui est en contradiction avec les observations expérimentales.

4.1.2 Emission spontanée en espace libre : Approche quantique

On constate donc que l'approche classique ci-dessus ne peut décrire correctement le processus d'émission spontanée. En effet, l'émission spontanée ne peut être décrite que suivant une approche quantique. Dans un cadre quantique, l'émission spontanée de photons résulte alors du couplage entre l'état propre électronique et les fluctuations du vide. Dans la suite, on considère un émetteur modélisé par un système à deux niveaux, et on utilisera les notations $|i\rangle$ pour l'état excité initial d'énergie $\hbar\omega_i$ et $|f\rangle$ pour l'état fondamental final d'énergie $\hbar\omega_f$. Pour simplifier les calculs, on suppose que ce dipôle se trouve dans une cavité de volume V_0 , suffisamment grand pour ne pas perturber le dipôle. L'émission spontanée correspond à la transition de l'état initial $|i, 0_\mu\rangle$ (émetteur dans son état excité et zéro photon dans le mode μ de la cavité) vers l'état final $|f, 1_\mu\rangle$ (émetteur dans son état fondamental et un photon dans le mode μ de la cavité). A partir de l'instant $t = 0$, la probabilité de présence de l'émetteur dans son état excité évolue selon une loi exponentielle :

$$P_{i \rightarrow f} \propto e^{-\Gamma t} \quad (4.4)$$

Γ est le taux de déclin, donné par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2} |M_{i,f}|^2 g(\omega) \quad (4.5)$$

$g(\omega)$ est la densité de modes électromagnétiques, $M_{i,f}$ l'élément matriciel de la transition : $\langle f, 1_\mu | \hat{H}_i | i, 0_\mu \rangle$ et \hat{H}_i l'hamiltonien d'interaction d'origine dipolaire :

$$\hat{H}_i = q \hat{D}_{i,f} \cdot \hat{E}(\vec{r}) \quad (4.6)$$

où \vec{r} repère le site du dipôle émetteur, $d\hat{D}_{i,f}$ représente le moment dipolaire et $\hat{E}(\vec{r})$ représente l'amplitude du champ sur le site du dipôle. Or, la densité d'état pour un photon dans l'espace libre peut se calculer facilement. Il suffit de comptabiliser le nombre ΔN d'états dont l'énergie est comprise entre E et $E + \Delta E$, ou bien dont le vecteur d'onde est compris entre k et $k + \Delta k$. On trouve :

$$\Delta N = \frac{\underbrace{\text{états de polarisation}}_2 \underbrace{\text{1/8 de la sphère des } k}_\frac{1}{8} \underbrace{\text{volume de sphère de rayon } k \text{ et d'épaisseur } dk}_{4\pi k^2 dk}}{\underbrace{\frac{\pi^3}{V_0}}_{\text{Volume élémentaire}}} \quad (4.7)$$

On obtient au final :

$$g(\omega) = \frac{k^2 dk V_0}{\pi^3} = \frac{\omega^2 V_0}{\pi^2 c^3} \quad (4.8)$$

Le terme de couplage $M_{i,f}$ peut lui aussi se calculer en prenant en compte le champ électromagnétique du vide. On trouve [105] :

$$M_{i,f}^2 = \frac{(q \hat{D}_{i,f})^2 \hbar \omega}{6\epsilon_0 V_0} \quad (4.9)$$

Finalement, le taux d'émission spontanée dans l'espace libre s'écrit :

$$\Gamma_{\text{quantique}}^{\text{vide}} = \frac{1}{\tau} = \frac{\omega^3 (q \hat{D}_{i,f})^2}{6\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \quad (4.10)$$

où τ représente la durée de vie radiative dans l'espace libre. On peut donc comparer les deux taux classique et quantique et remarquer que la théorie quantique prévoit une dépendance en fonction du moment dipolaire et de la fréquence optique comme attendu.

4.1.3 Emission spontanée en cavité, effet Purcell

Si le processus d'émission spontanée ne peut être décrit que dans un cadre quantique, sa modification par la présence d'une cavité peut en revanche être décrite dans les deux cadres : classique et quantique. L'approche classique utilise le point de vue de la réaction de rayonnement : la modification de la dynamique d'émission spontanée est alors induite par le champ rayonné par le dipôle lui-même et réfléchi sur son propre site. D'un point de vue quantique, la structuration modale du champ du vide par la présence de la cavité induit une modification de la dynamique d'émission spontanée. Nous allons maintenant calculer le taux d'émission spontanée d'un dipôle émetteur ponctuel isolé dans une cavité optique

monomode dans un régime de couplage faible. Nous préciserons par la suite les limites et conditions de validité d'un tel modèle. Ce problème fut mis en évidence pour la première fois par E. M. Purcell en 1946. Il prévoit une modification du taux d'émission spontanée lorsque l'émetteur est placé en résonance spectrale et spatiale avec le mode d'une cavité. Dans le régime d'accélération du processus d'émission spontanée, on parle alors d'**effet Purcell**.

On note cette fois V_0 le volume modal de la cavité. On suppose cette cavité monomode, ce qui signifie qu'il y a un seul mode résonant dans la cavité, à une longueur d'onde proche du dipôle. On néglige ainsi tous autres modes situés loin de la résonance. L'hypothèse de couplage faible nous permet d'utiliser une méthode dite perturbative, similaire au calcul de l'émission spontanée dans l'espace libre. On note ω_c et $\Delta\omega_c$ la pulsation de résonance du mode et sa largeur à mi-hauteur. On introduit dès lors le facteur de qualité de cavité Q , donné par $Q = \omega_c/\Delta\omega_c$. On suppose que la densité d'état $g(\omega)$ est de forme lorentzienne :

$$g(\omega) = \frac{2}{\pi\Delta\omega_c} \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (4.11)$$

La condition monomode s'écrit :

$$\int_0^\infty g(\omega) d\omega = 1 \quad (4.12)$$

On considère enfin que le dipôle émetteur placé est proche de la résonance spectrale de la cavité est à résonance : $\omega \simeq \omega_0$, ω_0 correspondant à la pulsation de transition du dipôle.

On peut également évaluer le terme d'interaction dipolaire $M_{i,f}$. Un calcul similaire au cas de l'émission dans l'espace libre donne [105] :

$$M_{i,f}^2 = \Theta^2 \frac{(q\hat{D}_{i,f})^2 \hbar\omega}{2\epsilon_0 V_0} \quad (4.13)$$

avec un terme Θ normalisé, qui prend en compte l'orientation du dipôle par rapport au champ E :

$$\Theta = \frac{|\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}|}{|\mathbf{d}| |\mathbf{E}|} \quad (4.14)$$

Ainsi, en utilisant la règle d'or de Fermi, on obtient l'expression du taux d'émission spontanée Γ_{cav} en cavité :

$$\Gamma^{cav} = \frac{2Q(q\hat{D}_{i,f})^2}{\hbar\epsilon_0 V_0} \Theta^2 \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega_0 - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (4.15)$$

On peut remplacer les termes c/ω par $(\lambda/n)/2\pi$ où λ est la longueur d'onde dans le vide et n l'indice du milieu à l'intérieur de la cavité. Enfin, on introduit le facteur de Purcell généralisé F par :

$$F = \frac{\Gamma^{cav}}{\Gamma^{vide}} \quad (4.16)$$

En utilisant l'expression 4.3, on peut introduire le facteur F de modification de la dynamique d'émission spontanée par la présence de la cavité, exprimé comme suit :

$$F = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2V_0} \Theta^2 \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega_0 - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (4.17)$$

Le terme $F_p = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2V_0}$ est appelé **facteur de Purcell**. Dans l'expression 4.17, on remarque que la modification de la dynamique d'émission spontanée apparaît comme le produit de trois termes. Le premier facteur, F_p est caractéristique de la cavité et ne dépend pas du dipôle émetteur. Il représente l'amplitude maximale d'accélération de la dynamique d'émission spontanée observable dans une telle cavité. En quelque sorte, il constitue un facteur de mérite de la cavité. Pour exalter ce facteur, il conviendra de maximiser le rapport Q/V , ce qui suppose le recours à des cavités de faibles pertes et fort confinement spatial. Le deuxième terme, Θ , prend en compte l'orientation du dipôle et sa position par rapport au champ dans la cavité. Enfin, le dernier terme décrit l'accord spectral entre l'émetteur et la fréquence de résonance de la cavité. On retiendra les trois conditions suivantes afin d'obtenir une accélération significative du taux d'émission spontanée, sans qu'elles aient besoin d'être simultanément et strictement remplies :

1. Maximiser le rapport Q/V
2. Avoir un dipôle situé sur un ventre du champ intra-cavité et si possible colinéaire au champ électrique
3. Avoir un dipôle spectralement en résonance avec le mode de la cavité

Or on voit tout de suite que dans le cas des boîtes auto-organisées, les deux derniers points sont difficiles à satisfaire. En effet, le mode de croissance des boîtes entraîne une dispersion en hauteur des boîtes qui se traduit par une largeur spectrale inhomogène relativement importante par rapport à la largeur des modes de cavité. De plus la croissance se fait de manière aléatoire sur le substrat. Il est donc impossible de prévoir la position de la boîte quantique par rapport à la distribution spatiale du champ dans la cavité. Nous reviendrons par la suite aux solutions possibles pour répondre à ces problèmes, notamment via l'étude de boîtes 'nano-épitaxiées' ou 'boîtes localisées' qui pourraient permettre de palier à ces inconvénients.

4.1.4 Taux de couplage au mode de la cavité : facteur β

Nous avons jusqu'à présent considéré le cas d'une cavité monomode. Cependant, de façon plus réaliste, une cavité est rarement monomode et l'émetteur est susceptible de se coupler à d'autres modes du champ que le mode de la cavité. On doit donc en toute rigueur enfermer la cavité proprement dite dans un volume de quantification plus grand, et on peut alors décomposer le champ électromagnétique sur les modes propres de ce nouvel ensemble. Dans ce contexte, on peut montrer que la modification de l'émission spontanée est alors égale à $F + \gamma$, où F et γ sont respectivement l'amplitude de la modification de l'émission spontanée induite par le mode de la cavité et par les autres modes du champ que le mode de la cavité, modes que nous appellerons "modes de fuite".

Outre une modification de la dynamique d'émission spontanée, l'effet Purcell s'accompagne d'une redistribution spatiale intra-cavité du rayonnement. Cette redistribution spatiale peut être quantifiée par un facteur usuellement noté β , qui n'est autre que la fraction d'émission spontanée qui sera effectivement couplée dans le mode de cavité. En effet,

le dipôle peut émettre dans le mode de la cavité avec un taux d'émission Γ^{cav} , ou bien dans les modes de fuite avec un taux Γ^{fuite} . On peut alors facilement exprimer le taux de couplage de l'émission spontanée dans le mode de la cavité comme :

$$\beta = \frac{\text{Emission dans le mode}}{\text{Emission totale}} = \frac{\Gamma^{cav}}{\Gamma^{cav} + \Gamma^{fuite}} = \frac{F}{\gamma + F} \quad (4.18)$$

où $\gamma = \frac{\Gamma^{fuite}}{\Gamma^{vide}}$. Ainsi, pour obtenir une cavité à fort taux de couplage, on cherchera à maximiser le facteur F et réduire le facteur γ . Nous reviendrons sur ce point notamment pour la réalisation de nano-laser à fort taux de couplage β .

Pour réaliser une source de photon unique efficace, l'obtention d'un fort facteur β est une condition nécessaire mais pas suffisante. En effet, plus le facteur β sera important, plus la lumière sera redirigée vers les modes de cavités. Il faut ensuite pouvoir collecter de manière efficace les photons provenant de ces modes. En particulier, on cherchera à obtenir des géométries de cavité telle que le mode soit très directif dans une direction particulière. Dans les expériences que nous avons menées pendant ce travail de thèse, la collection des photons se fait par l'intermédiaire d'un objectif (O.N=0.4) dans la direction verticale. On peut également envisager une collection par couplage évanescent à travers une fibre optique étirée proche de la cavité. Dans tous les cas, ceci demande une géométrie particulière de la cavité afin de contrôler leur diagramme de rayonnement.

4.1.5 Limites du régime en couplage faible

Lorsque l'on parle de couplage d'un dipôle avec une cavité, on peut mettre en évidence deux régimes de couplage. On parle de couplage fort lorsque l'émission spontanée est réversible : le photon émis a le temps d'être réabsorbé par le dipôle avant de sortir de la cavité. On observe alors un échange périodique (oscillations de Rabi) d'énergie entre l'émetteur et le mode de la cavité. Les états propres du système dipôle-cavité sont alors des superpositions d'états 'lumière-matière', appelés polaritons en physique des semiconducteurs. Si on se place en régime dit de couplage faible, le processus d'émission est irréversible, comme pour un rayonnement dans l'espace libre, à la différence que le taux d'émission est modifié par la cavité, comme on a pu le montrer dans les paragraphes précédents. Plus particulièrement, l'approche précédente est valable uniquement si les modifications dues au couplage au continuum sont négligeables devant la largeur en énergie du continuum. Cela implique que la largeur naturelle $\hbar\Gamma$ acquise par l'émetteur, qui se décompose comme la largeur naturelle du dipôle associée au taux d'émission spontanée $\hbar\Gamma_1$ et la largeur due à l'élargissement homogène $\hbar\Gamma_2^*$, est très faible devant la largeur du continuum $\hbar\Delta$ ¹ :

$$\Gamma = \Gamma_1 + \Gamma_2^* \ll \Delta$$

Le respect de cette condition suffit pour pouvoir appliquer le raisonnement mené jusqu'à présent : on est alors en régime dit de couplage faible. Dans le système InAsP/InP, les temps de vie radiatifs sont de l'ordre de $1/\Gamma_1 = 1$ ns correspondant à des largeurs naturelles

¹En toute rigueur, il conviendrait d'ajouter une seconde condition : le déplacement en énergie δE du spectre rayonné par l'émetteur dû à l'effet Purcell doit aussi être très faible devant la largeur du continuum $\hbar\Delta$.

associées au taux d'émission spontanée d'environ $\hbar\Gamma_1 \simeq 0,6 \mu\text{eV}$. Quant à l'élargissement homogène, nous avons indiqué dans le chapitre 2 que son ordre de grandeur était de l'ordre de la dizaine de μeV à basse température. En absence d'effets de cavité, la largeur en énergie de la boîte est donc dominée par les effets d'élargissement homogène : $\hbar\Gamma = \hbar(\Gamma_1 + \Gamma_2^*) \simeq \hbar\Gamma_2^*$; en présence d'effet Purcell, cette largeur devient : $\hbar\Gamma = \hbar(F \times \Gamma_1 + \Gamma_2^*)$. Or, dans nos expériences, les largeurs de raie des modes $\hbar\Delta$ seront de l'ordre de quelques meV pour des cavités H1 et l'amplitude F des effets Purcell mis en jeu seront au plus de l'ordre de la dizaine. Au regard de l'ensemble de ces ordres de grandeur, on constate que la condition énoncée ci-dessus $\Gamma \ll \Delta$ est bien satisfaite : le régime de couplage lumière-matière sera donc, dans nos expériences, le régime de couplage faible.

4.2 Vers une mise en œuvre d'effets d'Electrodynamique Quantique en cavité : réalisation de microcavités optiques

4.2.1 Confinement de la lumière

Nous avons vu dans le paragraphe précédent qu'il était important de confiner la lumière par l'intermédiaire d'une cavité, pour mettre en œuvre des effets d'Electrodynamique Quantique en Cavité et réaliser une source pratique de photons uniques à partir de boîtes quantiques semiconductrices. Nous avons également vu que l'amplitude de l'accélération de l'émission spontanée était liée au facteur de Purcell F_p . Nous allons voir quelles peuvent être les stratégies pour réaliser des cavités de faible volume modal et de fort facteur de qualité à partir de matériaux semiconducteurs.

Le confinement optique en physique du solide peut recourir à principalement deux mécanismes : la réflexion totale interne et le processus interférentiel provoqué par la propagation de l'onde lumineuse dans un milieu périodique.

Réflexion totale interne

Une manière simple de confiner la lumière dans un matériau semiconducteur est d'utiliser la différence d'indice de réfraction entre deux diélectriques d'indice de réfraction différents. Considérons un empilement de deux matériaux, l'un d'indice n_1 et l'autre d'indice n_2 tels que $n_2 < n_1$. Si le rayon lumineux se propage dans le matériau d'indice n_1 , il y aura réflexion totale au niveau de l'interface entre les deux matériaux pour des angles d'incidence par rapport à la normale supérieurs à $\theta_{lim} = \arcsin(n_2/n_1)$. Dans notre cas, le milieu d'indice n_2 sera l'air d'indice 1 et le milieu d'indice n_1 sera composé d'InP d'indice de réfraction égal à 3,17 à 300 K. Les cavités microdisques ou microsphères sont des exemples de réalisation qui reposent exclusivement sur ce mode de confinement. Dans nos expériences, ce type de confinement n'est que partiel et intervient sur une seule dimension. Le confinement dans les autres dimensions est alors obtenu par des processus d'interférences.

Processus interférentiel : les cristaux photoniques

Une autre stratégie pour confiner la lumière utilise le phénomène d'interférence constructive lorsqu'une onde se propage dans un milieu structuré, tel qu'un cristal photonique.

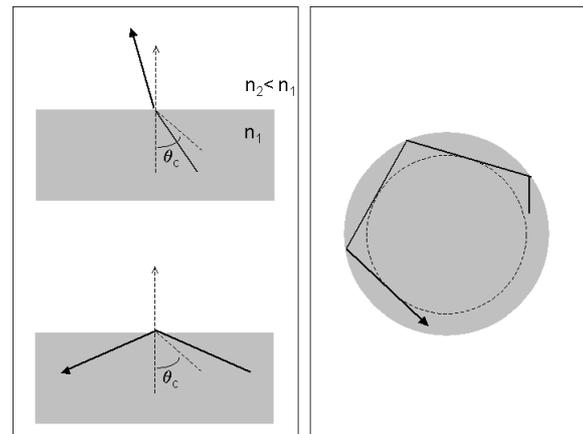


FIG. 4.1 – *A gauche : principe du confinement par réflexion interne totale dans un milieu d'indice de réfraction n_1 entouré d'un milieu d'indice $n_2 < n_1$ (en haut, le rayon d'angle d'incidence inférieur à l'angle critique θ_{lim} est transmis ; en bas, le rayon d'angle d'incidence supérieur à l'angle critique est réfléchi). A droite : principe du confinement des modes de galerie suivant la théorie des rayons dans une cavité de type microdisque ou microsphère.*

En toute rigueur, on appelle cristal photonique un arrangement totalement périodique de différents diélectriques. Par extension, on appelle cristal photonique toute structure photonique présentant une structuration de l'indice de réfraction sur une échelle de l'ordre de la longueur d'onde. Nous présentons dans le paragraphe suivant le principe physique de fonctionnement des cristaux photoniques et le concept de bande interdite photonique.

4.2.2 Structure de bande interdite dans un cristal photonique

Un confinement de nature interférentielle

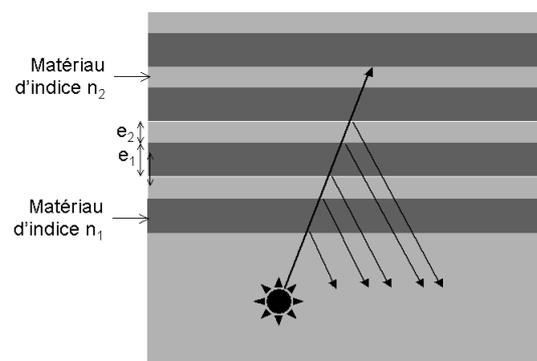


FIG. 4.2 – *Schéma des réflexions multiples successives aux interfaces d'un empilement périodique de deux diélectriques d'indice de réfraction n_1 et n_2 .*

En guise d'introduction, considérons le problème unidimensionnel d'un empilement

de Bragg classique (Fig. 4.2). C'est un empilement périodique formé de l'alternance d'une couche plane d'un diélectrique 1 d'épaisseur e_1 et d'indice de réfraction n_1 et d'une couche plane d'un diélectrique 2 d'épaisseur e_2 et d'indice de réfraction n_2 . Si, pour une certaine longueur d'onde λ_v , les épaisseurs sont telles qu'elles vérifient :

$$n_1 e_1 = n_2 e_2 = \frac{\lambda_v}{4}$$

nous obtenons un phénomène d'interférences destructives à la longueur d'onde λ_v entre les ondes transmises et réfléchies sur les différentes interfaces. Finalement, la structure se comporte comme un miroir à la longueur d'onde λ_v .

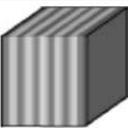
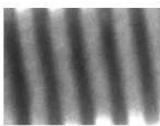
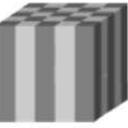
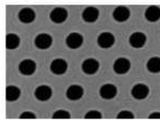
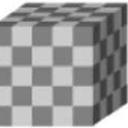
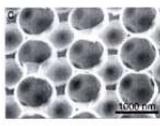
Dimension	Réseau	Confinement	Exemple
1D		 uni-directionnel	
2D		 bi-directionnel	
3D		 omnidirectionnel	

FIG. 4.3 – Cristal photonique 1D, 2D et 3D avec indiquées les directions interdites de propagation (Schémas issus de [106]). Chaque type de réseau est illustré par un exemple de réalisation ; les cristaux photoniques 1D et 2D sont des réalisations du CNRS-LPN et le cristal photonique 3D a été fabriqué à l'ICM-CSIC[107].

Nous voyons sur un exemple simple à une dimension, qu'il est possible de réaliser un miroir par l'intermédiaire d'une structure périodique. Si maintenant on vient périodiser l'indice de notre matériau dans deux (ou trois) directions de l'espace, nous pouvons réaliser un confinement 2-D (ou 3-D respectivement) (Fig. 4.3). On parle alors de cristaux photoniques 2-D ou 3-D. On retrouve dans ces cristaux photoniques les mêmes principes d'interférences entre les ondes transmises et réfléchies par une structure que l'on viendra périodiser en fonction de la longueur d'onde souhaitée.

En pratique cette vision en terme d'interférence n'est envisageable que pour le cas 1-D. Pour décrire et dessiner des structures périodiques 2-D et 3-D, il est préférable de faire appel au concept de bande interdite photonique, qui délimite une plage de fréquence pour laquelle la propagation est impossible dans le cristal. Ce concept de bande interdite photonique a été introduit en 1987 dans des contextes différents par E. Yablonovitch [108] et S. John [109]. On peut alors faire l'analogie avec la théorie des bandes électroniques en

physique du solide, l'électron jouant le rôle du photon. La variation périodique d'indice est analogue au potentiel périodique induit par les atomes. Enfin, les équations de propagation possède le même formalisme à cause de la nature ondulatoire du photon et de l'électron.

Diagramme de bandes et bande interdite photonique

Dans ce paragraphe, nous exposons les concepts théoriques principaux nécessaires à la lecture et à la compréhension d'un diagramme de bande d'un cristal photonique. De manière générale, les équations de Maxwell dans un milieu diélectrique s'écrivent :

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) &= 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B}(\vec{r}, t) \\ \vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}, t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \vec{D}(\vec{r}, t)\end{aligned}$$

avec \vec{D} le vecteur déplacement électrique, \vec{B} le champ magnétique et \vec{E} le champ électrique. On se place dans le cas d'un milieu non magnétique, isotrope à l'échelle microscopique et linéaire. Les relations constitutives des différents diélectriques s'écrivent donc :

$$\begin{aligned}\vec{D}(\vec{r}, t) &= \epsilon_0 \epsilon(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}, t) \\ \vec{B}(\vec{r}, t) &= \mu_0 \vec{H}(\vec{r}, t)\end{aligned}$$

Dans le cas d'un cristal photonique, on s'intéresse à un milieu formé de l'arrangement périodique de différents diélectriques ; $\epsilon(\vec{r})$ est donc périodique. La substitution de ces relations dans les équations de Maxwell conduisent, après élimination de $\vec{H}(\vec{r}, t)$ et $\vec{B}(\vec{r}, t)$, à :

$$\begin{aligned}\frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \left\{ \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) \right\} &= -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) \\ \vec{\nabla} \times \left\{ \frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}, t) \right\} &= -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{H}(\vec{r}, t)\end{aligned}$$

où c désigne la vitesse de la lumière dans le vide.

Les modes de pulsation ω de la structure à cristal photonique sont les solutions de ces équations de Maxwell, oscillant à la pulsation ω . On suppose donc une dépendance temporelle des champs de la forme :

$$\begin{aligned}\vec{E}(\vec{r}, t) &= \vec{E}(\vec{r}) e^{-i\omega t} \\ \vec{H}(\vec{r}, t) &= \vec{H}(\vec{r}) e^{-i\omega t}\end{aligned}$$

En injectant ces équations dans les expressions précédentes, on obtient :

$$\frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \left\{ \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}) \right\} = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{r})$$

$$\vec{\nabla} \times \left\{ \frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}) \right\} = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{H}(\vec{r})$$

En posant :

$$\Theta_E = \frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \left\{ \vec{\nabla} \times \dots \right\}$$

$$\Theta_H = \vec{\nabla} \times \left\{ \frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \dots \right\}$$

les dépendances spatiales des champs E et H apparaissent alors comme les valeurs propres des opérateurs Θ_H et Θ_E avec comme valeurs propres ω^2/c^2 . Compte tenu de la périodicité de $\epsilon(\vec{r})$ sur le cristal photonique, les deux opérateurs Θ_H et Θ_E commutent avec tous les opérateurs de translation selon les vecteurs de base du réseau. Ceci est une condition suffisante pour appliquer le théorème de Floquet-Bloch. Les valeurs propres de Θ_H et Θ_E sont donc nécessairement de la forme :

$$u(\vec{r}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$$

où la fonction u est périodique sur le cristal photonique. Les modes propres d'un cristal photonique sont donc des modes de Bloch caractérisés par un vecteur \vec{k} .

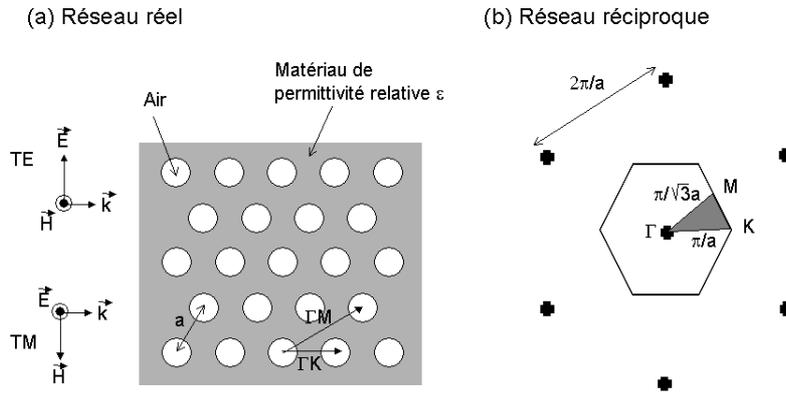


FIG. 4.4 – Réseau triangulaire de trous d'air cylindriques. (a) : Plan de périodicité de la structure triangulaire de trous d'air de période a . Le champ électromagnétique est polarisé TM lorsque le champ électrique \vec{E} est dans la direction parallèle à l'axe des trous et polarisé TE lorsque le champ magnétique est parallèle à l'axe des trous. (b) : Réseau réciproque du réseau triangulaire. Ce réseau, indiqué par les croix, forme aussi un réseau triangulaire avec une période $b = 2\pi/a$. La zone de Brillouin est hexagonale. Les points de haute symétrie sont notés Γ (vecteur d'onde nul dans le plan), K (ΓK correspond à la direction entre trous plus proches voisins) et M (ΓM correspond à la direction entre trous les plus éloignés).

Le diagramme de bandes fait la synthèse de l'ensemble des diagrammes de dispersion $\omega(\vec{k})$ du cristal photonique que l'on peut calculer par le modèle des ondes planes. Pour être complet, il faudrait considérer toutes les directions de propagation et ce pour tous les cristaux. On montre que moyennant certaines symétries, comme en physique du solide,

il est possible de réduire l'étude aux vecteurs \vec{k} situés à l'intérieur d'une zone restreinte appelée première zone de Brillouin. Pour chaque vecteur \vec{k} de la première zone de Brillouin, le diagramme de bandes donne les pulsations ω des modes. Pour certains arrangements périodiques du cristal, le diagramme de bandes fait apparaître une gamme de fréquence pour laquelle aucun mode ne peut exister dans la structure. De nombreux arrangements périodiques sont envisageables dans le cas des cristaux photoniques bi-dimensionnels. Néanmoins, nous prendrons l'exemple d'un cristal photonique bi-dimensionnel formé d'un arrangement triangulaire de trous d'air dans un diélectrique de permittivité ϵ puisque c'est celui que nous étudierons par la suite (voir Figure 4.4). On peut y associer un réseau réciproque dans l'espace des vecteurs d'ondes. Un tel réseau est un hexagone et présente trois points de haute symétrie : Γ , M et K . La caractérisation complète de la structure modale peut être connue simplement en connaissant les propriétés du cristal pour une onde se propageant dans les deux directions de haute symétrie (ΓM et ΓK). On obtient alors le diagramme présenté sur figure 4.4. Cette figure représente la pulsation ω des modes en fonction du vecteur d'onde suivant les directions de haute symétrie dans la première zone de Brillouin. Ce diagramme révèle l'existence d'une bande photonique interdite pour les deux polarisations TE et TM : la polarisation TE correspond au mode de champ magnétique est perpendiculaire au plan du cristal photonique et la polarisation TM correspond au mode de champ électrique perpendiculaire au plan du cristal photonique. Une onde incidente de vecteur d'onde contenu dans le plan de périodicité du réseau de trous sera entièrement réfléchi si sa pulsation se situe à l'intérieur de la bande photonique interdite. Pour la polarisation TE, une large bande interdite apparaît autour de la valeur $\frac{a}{\lambda} = 0,43$. Par contre, seul un gap réduit est observé pour la polarisation TM dans ce cas.

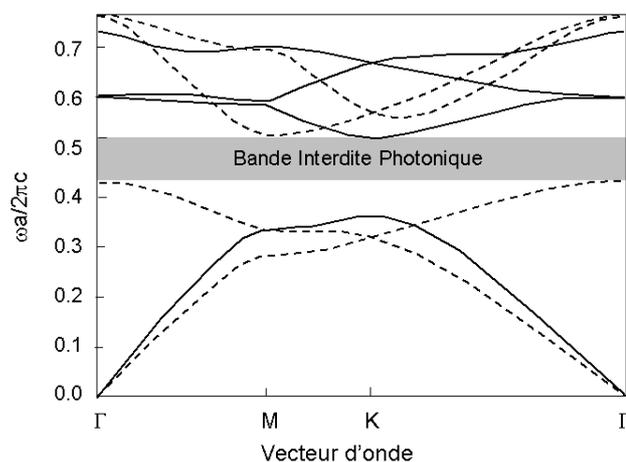


FIG. 4.5 – Exemple de diagramme de bandes calculé pour la polarisation TE (traits pleins) et TM (traits pointillés) pour un réseau triangulaire bidimensionnel de trous d'air dans un diélectrique de permittivité relative $\epsilon = 13$; le rayon des trous est égal à $0,48a$ [110].

4.2.3 Confinement mixte

La réalisation d'un réseau tridimensionnel de diélectriques présentant une bande interdite omnidirectionnelle dans le visible ou le proche infrarouge est d'une grande difficulté technologique. C'est en grande partie pour cette raison que la majorité des cristaux photoniques réalisés aujourd'hui sont en pratique des structures hybrides : le confinement est assuré par un milieu diélectrique qui n'est périodique que dans une ou deux directions de l'espace. Dans ce type de géométries, le confinement dans les directions périodiques est interférentiel et le confinement dans les directions restantes est obtenu par réflexion totale interne. Dans la suite du manuscrit, nous nous intéresserons essentiellement à une classe de structures hybrides : les cristaux photoniques bidimensionnels sur membrane suspendue. Dans ces structures, le confinement latéral est assuré par le cristal photonique bidimensionnel. Ce cristal photonique est gravé dans une membrane suspendue, qui confine la lumière par effet de guidage dans le plan de la membrane. Il est alors possible, par des ajustements judicieux et adéquats de l'arrangement périodique des trous, de former des cavités confinant la lumière sur des volumes ultimes et des temps très longs. Plusieurs approches sont possibles. On peut ainsi réaliser des cavités par l'insertion de défauts ponctuels dans le cristal ou bien par une ingénierie judicieuse des courbes de dispersion de la lumière dans le cristal. Nous ne parlerons ici que de la première approche et donnerons un exemple de la seconde approche dans le prochain chapitre.

Cavités à défauts ponctuels

Dans le cas des cristaux photoniques bidimensionnels, la création des défauts ponctuels de périodicité peut être réalisée par l'introduction locale de lacunes, par exemple en omettant de percer un certain nombre de trous dans un réseau périodique parfait bidimensionnel de trous traversant un matériau diélectrique. La présence d'un défaut ponctuel peut conduire à l'existence de niveaux discrets d'énergie dans une ou plusieurs bandes interdites à la fois. L'exemple le plus simple est la cavité dite "H1" (voir Fig. 4.6). Il s'agit d'un cristal photonique à maille hexagonale dans lequel on omet de percer un trou. Suivant les paramètres géométriques du cristal (le pas du réseau et la taille des trous), cette cavité peut être le siège de plusieurs modes. Le mode fondamental dipolaire est doublement dégénéré et il existe à cette longueur d'onde deux modes de polarisation orthogonale. Il possède un facteur de qualité modéré, de l'ordre de quelques centaines. En revanche, ce mode présente un volume modal très faible de l'ordre de $0.3 (\lambda/n)^3$. Ces cavités peuvent donc être le siège d'effets d'électrodynamique quantique en cavité importants. Pour un émetteur idéalement couplé au mode, le facteur de Purcell peut théoriquement atteindre une valeur de 70.

Indiquons que l'agencement des trous aux voisinage de la cavité ainsi que leur diamètre, jouent un rôle primordial sur les propriétés optiques des résonateurs. Prenons pour illustrer ce point l'exemple des cavités à cristaux photoniques appelées "L3 modifiée" gravée dans une membrane suspendue de diélectrique. Cette cavité consiste en trois trous manquants sur une même ligne d'un cristal photonique parfait à maille hexagonale gravé sur une membrane suspendue. En modifiant légèrement la position des trous externes de la cavité, l'équipe de l'Université de Kyoto a démontré que le facteur de qualité peut être fortement exalté [111](voir figure 4.7).

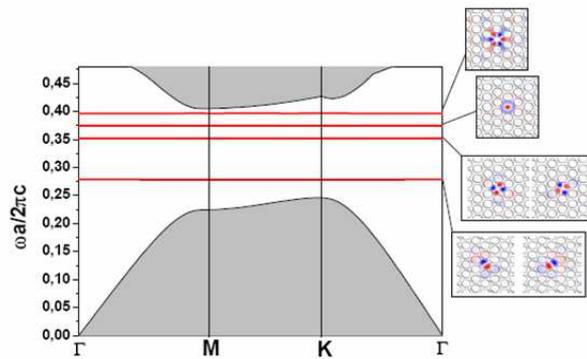


FIG. 4.6 – Diagramme de bandes de la structure H1 ; quatre niveaux d'énergie, correspondant aux modes confinés dans le défaut, apparaissent dans la bande interdite photonique délimitée par les deux régions grisées. Les distributions spatiales du champ H_{\perp} associés à chaque mode sont indiqués à droite.

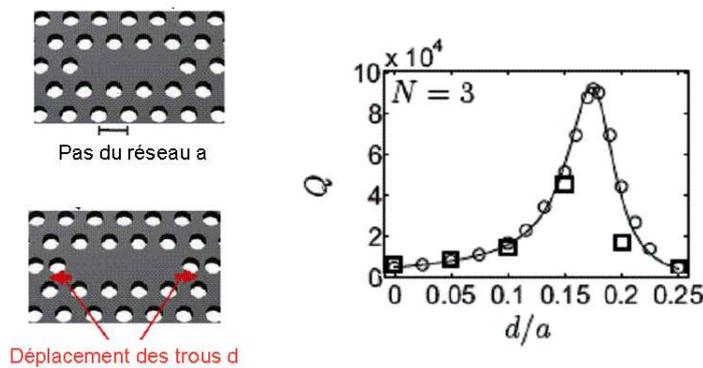


FIG. 4.7 – Gauche : Représentation schématique de la cavité L3 de paramètre de maille a . Droite : Facteur de qualité de la cavité optique en fonction du déplacement des trous d ; les carrés sont les résultats expérimentaux issus de [111] et le trait plein superposé de cercles sont les résultats numériques issus de [112].

L'équipe du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique donne une interprétation de ces phénomènes [112, 113]. Les éléments qui entrent en jeu dans le facteur de qualité d'une cavité sont donc :

- Une augmentation de la réflectivité des miroirs entourant la cavité par un léger déplacement des trous, grâce à une meilleure adaptation du profil des modes dans le corps de la cavité et dans les miroirs ;
- Une diminution de la vitesse de groupe du mode de la cavité.

Ainsi, le facteur de qualité de la cavité L3 varie de près d'un ordre de grandeur, suivant l'amplitude du déplacement des trous plus proches voisins de la cavité. Ces travaux ont permis ainsi la réalisation de cavités de très faible volume modal (environ $(\lambda/n)^3$) et de

très grand facteur de qualité (environ 10^4 en GaAs et 45000 sur Si).

4.2.4 Etape de fabrication

Le but de ce paragraphe est d'exposer les étapes de réalisation des cavités à cristaux photonique sur membrane. Ce travail est réalisé en salle blanche au laboratoire par R. Braive et I. Sagnes. Pour plus de détails techniques sur ces différentes étapes, on peut se référer aux travaux de thèse de K. H. Lee (LPN) et [114].

La première étape consiste en l'épitaxie de la structure par épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM). Elle débute par la croissance d'une couche sacrificielle d'InGaAs d'épaisseur $1,16 \mu\text{m}$ sur un buffer d'InP. Cette épaisseur est choisie égale à $3\lambda/4$ en prenant $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$. Pour cette épaisseur, l'émission verticale est inhibée et l'émission dans les modes horizontaux sera privilégiée. On vient ensuite croître une couche d'InP qui formera ensuite la membrane suspendue. Au sein de cette couche et en son centre, on fait croître un plan de boîtes quantiques. Les boîtes sont ensuite encapsulées avec de l'InP. L'épaisseur totale de la membrane égale à 262 nm dans nos expériences doit être choisie de manière judicieuse. Elle correspond à une épaisseur de $\lambda/2n_{eff}$, avec n_{eff} l'indice effectif de la cavité. On pourra se référer à [115] pour connaître l'impact de l'épaisseur de la membrane sur les modes de cavités et leurs diagrammes d'émission.

Après avoir effectué l'empilement des couches semiconductrices, il est indispensable de fabriquer un masque de gravure qui nous permet d'obtenir le dessin de la structure voulue. Ce masque est constitué d'une épaisseur de 300 nm de nitrure de silicium Si_3N_4 déposé à $300 \text{ }^\circ\text{C}$ par P.E.C.V.D (pour Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) sur les couches épitaxiées. Ce nitrure est recouvert par la suite d'une épaisseur de 450 nm de P.M.M.A (polyméthacrylate de méthyle). Cette couche de résine est alors polymérisée pendant une phase de recuit de 15 min à $150 \text{ }^\circ\text{C}$. Elle devient alors sensible à un rayonnement d'électrons. Notamment, sous l'effet d'un faisceau d'électron, les chaînes de molécules de la résine se brisent. On peut alors dissoudre les régions insolées par l'intermédiaire d'une solution chimique appropriée. Dans notre cas, les dessins de nos structures sont réalisés sur le logiciel 'L-Edit'. L'échantillon est placé dans un appareil de lithographie électronique (LEICA EBPG 5000 +), qui permet de venir focaliser un faisceau d'électrons sur la résine en suivant le dessin de la structure, et ce avec une très grande précision (2.5 nm de résolution).

Une fois la résine insolée dissoute, on vient alors transférer le motif réalisé dans le PMMA, dans la couche de nitrure par un procédé de gravure sèche. Cette étape se déroule dans un bâti de C.C.P.-R.I.E (pour Capacitively Coupled Plasma - Reactive Ion Etching), qui permet une gravure directionnelle. Dans ce bâti, on vient créer un plasma entre deux électrodes à partir d'un mélange gazeux. L'échantillon placé sur la cathode est ensuite gravé par l'action combinée du bombardement des ions positifs et de l'attaque chimique des espèces non ionisées de l'enceinte. On transfère par la suite les motifs gravés dans le masque de nitrure, dans le semiconducteur. Cette étape de gravure sèche se déroule dans un bâti d'I.C.P. - R.I.E. (pour Inductively Coupled Plasma - Reactive Ion Etching). Dans cette étape, des trous de plusieurs centaines de nm de profondeur sont percés dans la mem-

brane d'InP et atteignent la couche sacrificielle d'InGaAs.

Enfin, dans le but de réaliser une membrane suspendue, on vient ensuite graver la couche sacrificielle d'InGaAs. C'est une étape de gravure humide. L'attaque sélective de la couche se fait dans une solution chimique appropriée. La solution pénètre par les trous du cristal et vient dissoudre l'InGaAs. On appelle cette étape la sous-gravure.

4.2.5 Caractérisation optique des cavités pour la réalisation d'une source de photon unique

Description modale de la cavité H1

Rappelons que les cavités appelées H1 peuvent être le siège de plusieurs modes. Sans modification de la position ou du diamètre des trous proches du défaut, le mode fondamental dipolaire doublement dégénéré possède un facteur de qualité modéré, de l'ordre de quelques centaines mais un très faible volume modal, de l'ordre de $0.3(\lambda/n)^3$. Le maximum du champ électrique se trouve au centre du défaut formé par le trou manquant, au milieu de la membrane, et le vecteur champ électrique est dans le plan de la membrane. Ce mode doublement dégénéré en énergie présente deux polarisations orthogonales.

Afin de réaliser une source de photon unique efficace et d'observer un fort effet Purcell, il conviendrait d'isoler un dipôle émetteur au centre d'une cavité H1. Nous devons alors être capable de déterminer avec précision la longueur d'onde du mode afin de pouvoir l'accorder avec nos émetteurs. Pour déterminer les paramètres géométriques de la cavité, c'est-à-dire le pas du réseau, le rayon des trous, ainsi que l'épaisseur de la membrane, nous nous basons sur des travaux réalisés au laboratoire sur des cavités H1 fabriquées dans des membranes GaAs, et dont la longueur d'onde se situait vers 950 nm [115]. La technique utilisée constituait à traiter séparément le confinement latéral dans le plan du cristal et le confinement vertical dans la direction orthogonale. Nous exposons ici les idées utilisées. Par la suite, nous avons adapté ces résultats pour une émission vers $1.55 \mu\text{m}$. Le système est équivalent à condition de prendre une nouvelle longueur d'onde et des indices optiques différents.

Confinement vertical

Nous souhaitons ici réaliser une cavité gravée dans une membrane d'InP, dont le mode fondamental résonne vers $1.55 \mu\text{m}$, longueur d'onde correspondant à la transition excitonique des boîtes InAsP/InP. Afin de choisir l'épaisseur de la membrane, adoptons une vision simple 1-D. Nous voulons que notre émetteur soit le mieux couplé au mode de la cavité. Il convient donc de choisir une épaisseur telle que le champ électrique présente un maximum au milieu de la membrane. Si on considère dans un modèle 1-D un guide d'onde d'indice n et de longueur e et entouré d'air, on prendra une épaisseur e de la membrane telle que :

$$e = \frac{\lambda}{2n} \quad (4.19)$$

où n est l'indice du matériau constitutif de la membrane (ici l'InP). Ainsi, les émetteurs au milieu de la membrane sont placés au maximum du champ électrique.

Toutefois, dans nos structures, la membrane n'est pas une simple lame mince en matériau massif mais une lame mince percée de trous. Une approximation raisonnable consiste alors à prendre comme indice de réfraction non pas l'indice du matériau massif mais un indice moyenné géométriquement sur la surface. Il apparaît alors que le choix de l'épaisseur de la membrane nécessite de fixer au préalable à la fois la longueur d'onde de résonance de la cavité ($1.55 \mu\text{m}$), mais également le facteur de remplissage du cristal photonique f (rapport entre le rayon r des trous et le pas a du réseau). Pour nos structures, en admettant que l'on ait déjà choisi un rapport r/a égal à 0.3, on calcule un indice moyen de 2.96. On en déduit que l'épaisseur de la membrane doit être d'environ 262 nm.

Indiquons que nous supposons ici que nos boîtes sont bien placées au centre de la membrane. Si le plan de boîtes ne se situe pas au milieu de la membrane, la luminescence des modes est très faible, comme observé dans nos expériences avec une réduction de plus d'un facteur 10 en comparaison avec une structure comprenant des boîtes en son centre.

Choix des paramètres

Toujours en s'inspirant des travaux réalisés sur GaAs, nous choisissons un rapport r/a proche de 0.3. Pour plus de détails sur le choix de ce rapport, on peut se reporter aux travaux de thèse de S. Laurent [115]. En résumé, nous pouvons retenir que si ce rapport est inférieur à 0.3, la bande interdite photonique devient trop petite et peut même ne pas exister. Si $r/a > 0.4$, alors le nombre de modes dans la cavité augmente et le mode dipolaire décrit précédemment se rapproche du bord de bande interdite. Par conséquent, pour un rapport r/a proche de 0.3, la bande photonique interdite est large et le mode se situe au centre de cette bande. Les modes d'ordre plus élevés sont eux en dehors de la bande interdite. En pratique, on choisit un pas de réseau de 410 nm avec lequel on déduit la taille des trous. Sur un même échantillon, on vient ensuite insoler plusieurs champs de cavité correspondant chacun à une dose d'insolation différente. Plus la dose augmente, plus les trous sont gros et plus la longueur d'onde de résonance de la cavité diminue. Ainsi, par une étude systématique des spectres de luminescence, on peut repérer le champ de cavités qui sont le siège de modes émettant vers $1.55 \mu\text{m}$ (voir figure 4.8).

Analyse des spectres de photoluminescence

Des exemples de spectres observés sur ces cavités sont donnés sur la figure 4.10. Les facteurs de qualité mesurés sont de l'ordre de 400. Ils correspondent aux valeurs théoriques attendues. Nous observons également deux pics, de polarisations rectilignes et orthogonales, à deux longueurs d'onde différentes. Théoriquement, ce mode dipolaire est doublement dégénéré. On peut raisonnablement attribuer cette levée de dégénérescence à la géométrie imparfaite et non régulière du réseau de trous imprimés dans la membrane (trous de section non-circulaire et non-régulière dans le pavage, périodicité du réseau non constante...). Ces problèmes ont été abordés au laboratoire sur les cavités sur membrane GaAs. Avant d'aborder quelques solutions envisagées pour contrôler voire même diminuer cette levée de

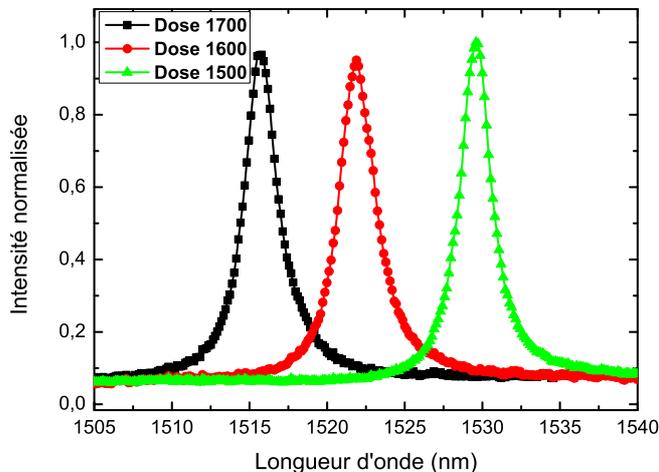


FIG. 4.8 – Spectres mesurés sur des cavités réalisées à partir de trois doses d'insolation différentes.

dégénérescence, voyons quels en sont ses inconvénients.

L'inconvénient majeur de cette levée de dégénérescence des modes se manifeste si l'ont veut par exemple utiliser ces cavités pour réaliser des sources de photons intriqués en polarisation. L'existence de deux niveaux à une paire électrons trou offre deux chemins de désexcitation pour une boîte initialement dans l'état biexciton (figure 4.9). C'est à partir de ce schéma qu'a été proposée l'ingénierie de sources de photons intriqués en polarisation, basées sur l'émission de paires de photons par recombinaisons radiative en cascade des états excitoniques et biexcitonique (voir par exemple [116]). Le biexciton est formé de deux paires électron-trou confinées spatialement dans la boîte. Le moment angulaire des électrons est alors opposé (Principe de Pauli), et le niveau biexcitonique (XX) possède un moment angulaire nul. Le niveau intermédiaire excitonique (X) possède, après recombinaison d'une première paire électron-trou, un moment angulaire ± 1 dépendant de quelle paire électron-trou s'est recombinaisonnée (ce choix est équiprobable). Le niveau fondamental de la boîte vide de charges possède un moment angulaire nul. Comme ces trois niveaux possèdent des moments angulaires bien déterminés, l'intrication des photons émis résulte de la règle de conservation du moment angulaire lors d'une transition optique : L'émission d'un photon depuis l'état XX de polarisation circulaire (σ_+ ou σ_-) à l'énergie biexcitonique projette la boîte dans l'état excitonique de moment angulaire opposé. La boîte se désexcite de nouveau en émettant un deuxième photon depuis l'état X de polarisation circulaire inverse (σ_+ ou σ_-). Si la boîte est idéale, les deux niveaux excitoniques relai sont à la même énergie. La fonction d'onde de l'état lumineux produit peut s'écrire :

$$|\Phi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\sigma_+^{XX}; \sigma_-^X\rangle + |\sigma_-^{XX}; \sigma_+^X\rangle) \quad (4.20)$$

L'état final est un état intriqué. Ces états permettent notamment de violer les inégalités de Bell. Dans la pratique cependant, le niveau relai présente une légère levée de dégénéres-

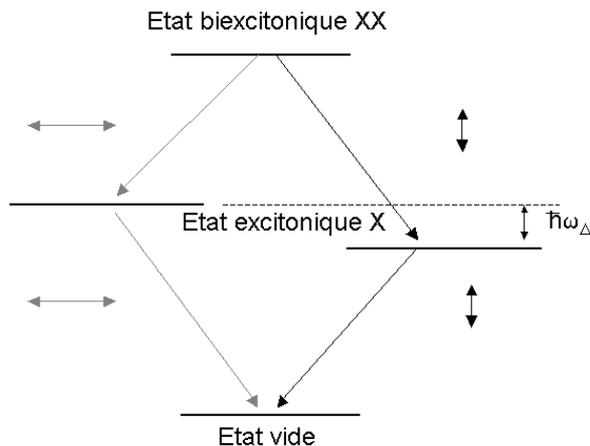


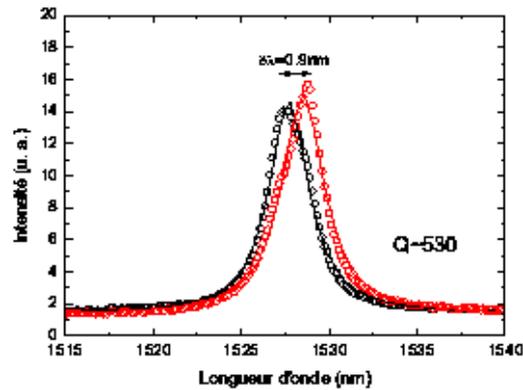
FIG. 4.9 – Schéma des transitions optiques polarisées linéairement de l'exciton et du biexciton pour une boîte quantique de symétrie réduite

cence. De plus, des processus de déphasage et d'échange incohérent de populations entre les deux niveaux exciton peuvent aussi contribuer à réduire la visibilité de l'intrication voir même détruire l'intrication. Une solution pour rétablir l'intrication pourrait être de recourir à l'effet Purcell [103]. Ceci suppose cependant d'isoler la boîte quantique dans une cavité optique présentant deux modes dégénérés en polarisation. De ce point de vue, le mode dipolaire de la cavité H1 pourrait satisfaire cette contrainte. Toutefois, dans la pratique, ce mode fondamental dipolaire présente une levée de dégénérescence pour deux polarisations orthogonales. Cela signifie que d'une part l'effet Purcell vu par chaque exciton sera d'amplitude différente. D'autre part, comme les modes sont non-dégénérés, la cavité effectue alors une pré-mesure de la polarisation des photons. En effet, une simple mesure de la polarisation à l'une des deux longueurs d'onde permet de déterminer le chemin de la cascade. L'état intriqué est alors détruit.

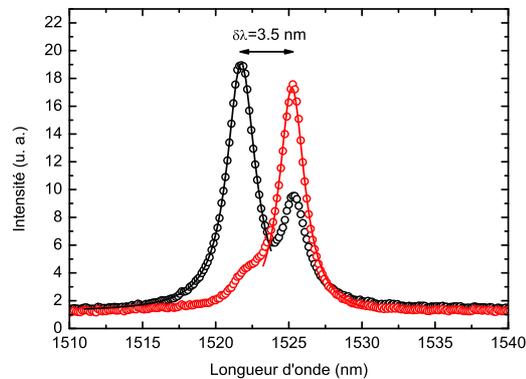
Les travaux d'investigation pour comprendre l'origine de la levée de dégénérescence des modes ont commencé pendant la thèse de S. Laurent [115] sur des cavités sur membrane GaAs. Nous avons repris ces travaux cette fois sur InP. Il est question de savoir quelle est l'étape technologique qui entraîne cette levée de dégénérescence. Pour le moment, ce point n'a pas été résolu. Nous présenterons en annexe du manuscrit les différentes pistes et solutions que nous avons envisagé pour supprimer cette dégénérescence de mode en polarisation.

Diagramme de rayonnement

En insérant les émetteurs en cavité, on cherche également à rediriger l'émission vers des modes privilégiés. Lors du dessin des cavités, on cherche donc également à avoir le meilleur diagramme de rayonnement. Dans notre cas, on vient collecter la lumière par le dessus de la cavité par l'intermédiaire d'un objectif de microscope d'ouverture numérique 0.4. Au sein de l'équipe, les travaux théoriques de M. Larqué ont mis en évidence



a)



b)

FIG. 4.10 – Spectres de cavités H1 résolues en polarisation (a) cavité présentant une levée de dégénérescence faible du mode dipolaire (b) cavité présentant une levée de dégénérescence importante du mode dipolaire. En noir, mesure effectuée suivant un axe de polarisation linéaire. En gris, mesure effectuée suivant l'axe de polarisation croisé.

que le déplacement des trous proches du défaut de cavité ainsi que le changement de leur taille permettent de modifier le diagramme de rayonnement et le facteur de qualité des cavités [117]. Ces résultats théoriques montrent une forte interdépendance entre tous les paramètres. On remarque notamment qu'il existe un compromis entre l'obtention d'un bon facteur de qualité et une émission directive. Des études expérimentales sont actuellement en cours afin de confirmer ces résultats théoriques. Pour cela, la technique consiste à déplacer un trou micrométrique dans le plan de Fourier de l'objectif et de reconstruire le diagramme de rayonnement. Les résultats de ces études nous permettront de trouver en pratique un jeu optimum de paramètres pour la réalisation pratique d'une source de photons uniques indiscernables.

4.3 Vers le contrôle de la localisation spectrale et spatiale des boîtes quantiques.

Nous avons vu dans les paragraphes précédents qu'il était nécessaire d'insérer un émetteur unique dans une cavité à cristal photonique afin de réaliser une source de photon unique efficace à base de boîte quantique émettant à $1.55 \mu\text{m}$. Or, toutes les formules énoncées précédemment ne sont valables que pour un émetteur unique accordé spatialement et spectralement au mode de la cavité. Or, les boîtes étudiées dans les paragraphes 2 et 3 sont obtenues par croissance auto-organisée. Spatialement la croissance se fait donc au hasard. De plus, on a vu que les boîtes présentent une largeur inhomogène qui est reliée à leur dispersion en taille. Enfin, les densités obtenues sur les boîtes InAsP/InP sont très importantes et il paraît donc très difficile d'obtenir une boîte unique accordée spatialement et spectralement au centre d'une cavité H1. Avant de parler de la stratégie utilisée au laboratoire pour obtenir ces accords, nous ferons un inventaire des techniques proposées dans d'autres équipes pour obtenir ces accords spatiaux et spectraux.

4.3.1 Stratégies pour l'accord spatial et spectral

L'accord spectral entre la résonance du mode et la longueur d'onde d'émission de la boîte ne peut se faire, pour le moment et généralement, qu'à posteriori. Ceci suppose de recourir à diverses techniques pour accorder spectralement, après fabrication de la cavité optique, l'émission dipolaire avec le mode de la cavité. Par contre, l'accord spatial peut être intégré dans les étapes de fabrication au prix d'une plus grande complexité de fabrication.

Accord spatial

Deux approches sont à ce jour poursuivies. La première consiste à repérer la boîte quantique aléatoirement positionnée dans des échantillons de faible densité de boîtes quantiques et imprimer autour la cavité optique. La seconde repose sur une localisation du site de nucléation. Les premières études de repérage du site aléatoire de nucléation des boîtes quantiques reposent sur un repérage par A.F.M. du site de nucléation d'une boîte quantique, en réalisant un empilement vertical de boîtes quantiques. Le premier plan de boîtes émet à la longueur d'onde souhaitée. Les plans supérieurs émettent à des longueurs d'onde plus élevées. Les boîtes dans les plans supérieurs nucléant naturellement au dessus de celles situées sur le premier plan de boîtes, on peut repérer par A.F.M. la déformation induite par la boîte du plan supérieur et donc confirmer la présence d'une boîte en dessous sur le premier plan. Par la suite, cette même équipe [118] a pu s'affranchir du recours à un empilement de plans de boîtes quantiques en repérant simplement par A.F.M. la déformation induite à la surface du plan de boîtes quantiques 'utiles'. Les résolutions obtenues avec cette technique sont de l'ordre de 60 nm (20-30 nm d'erreur sur le repérage à l'A.F.M et 20-30 nm sur le positionnement de la cavité). Par contre, cette méthode ne permet pas de réaliser l'accord spectral. Une approche, développée au laboratoire, consiste à repérer la boîte quantique par spectroscopie [119]. Nous décrirons cette approche plus en détails dans le prochain paragraphe.

Une autre approche consiste à localiser le site de nucléation des boîtes quantiques. Les travaux pionniers de l'équipe de E. Kapon *et al.* utilisent la croissance au sein de pyramides inversées gravées dans le substrat de croissance [120]. Cette technique présente quelques limitations, notamment la difficulté d'intégrer ces boîtes dans des microcavités.

Accord spectral

Pour assurer l'accord spectral entre la boîte quantique et le mode de la cavité, deux approches ont été jusqu'à présent utilisées : le déplacement de la résonance de la cavité post-fabrication ou bien le déplacement de la longueur d'onde d'émission de la boîte quantique. La longueur d'onde de résonance d'une cavité à cristal photonique est très sensible à la variation de la taille des trous ou du pas du réseau. Les aléas de la fabrication ne permettent pas de contrôler de façon précise cette longueur d'onde et déplacent la résonance de la cavité de quelques nanomètres. Mais on peut venir faire une étape de post-fabrication pour obtenir l'accord spectral, par des techniques de gravure humide contrôlée. Or, ces techniques modifient l'ensemble des cavités et ne permettent pas de modifier qu'une seule cavité à la fois. Une autre approche consiste à venir chauffer l'échantillon. En effet, la longueur d'onde d'émission d'une boîte quantique varie plus vite que celle du mode de cavité lorsque la température augmente. C'est avec ce genre de technique que des équipes ont pu mettre en évidence du couplage fort avec des boîtes quantiques dans des microcavités [46].

Enfin citons une technique originale réalisée dans une équipe du laboratoire qui permet d'obtenir à la fois un accord spatial et spectral, le tout sur plusieurs cavités à la fois [119]. Ici, on vient repérer une boîte InAs/GaAs par des techniques de microphotoluminescence. Les cavités sont de type micropiliers. Le plan de boîtes se trouve entre des couches de semiconducteur avec une alternance périodique d'indice de réfraction qui forment deux miroirs de Bragg. Le haut de l'échantillon est recouvert d'une résine photo-sensible. Lorsque le signal d'une boîte est repéré, on vient insoler un disque dans la résine au dessus de la boîte avec un laser spécifique. Le diamètre du cercle est calibré de façon à obtenir après gravure un pilier spectralement accordé avec la boîte. Les résolutions obtenues sur le positionnement de la boîte au maximum du champ électrique de la cavité sont de l'ordre de 50 nm. Cette technique n'est malheureusement pas utilisable à ce jour pour des boîtes InAsP/InP pour deux raisons :

- d'une part, il est très difficile de réaliser des piliers dans le système InP car la différence d'indice entre l'InP et l'InGaAs est trop faible ($\delta n \approx 0.4$). Il faudrait alors un très grand nombre de périodes pour former les miroirs de Bragg, et la gravure de tels piliers serait délicate.
- d'autre part, cette technique s'applique aisément sur des échantillons présentant des densités de boîtes quantique relativement faibles, densités encore inaccessibles avec les techniques de croissance que nous utilisons sur InP.

Néanmoins, cette méthode reste à l'heure actuelle l'unique technique permettant de garantir à la fois l'accord spectral et spatial sur un grand nombre de cavités.

4.3.2 Boîtes nano-épitaxiées InAs/InP

Dans ce contexte très compétitif, nous développons au laboratoire une technique de croissance localisée des boîtes quantique InAs/InP [121]. Cette technique a pour but d'obtenir à la fois l'accord spatial puis spectral de boîtes uniques dans des cavités à cristaux photoniques sur membrane. Dans les paragraphes suivants, nous détaillerons les différentes étapes de croissance de ces boîtes (voir figure 4.11). Enfin, nous montrerons les premiers résultats encourageants de luminescence issue de matière localisée.

Etapes de fabrication

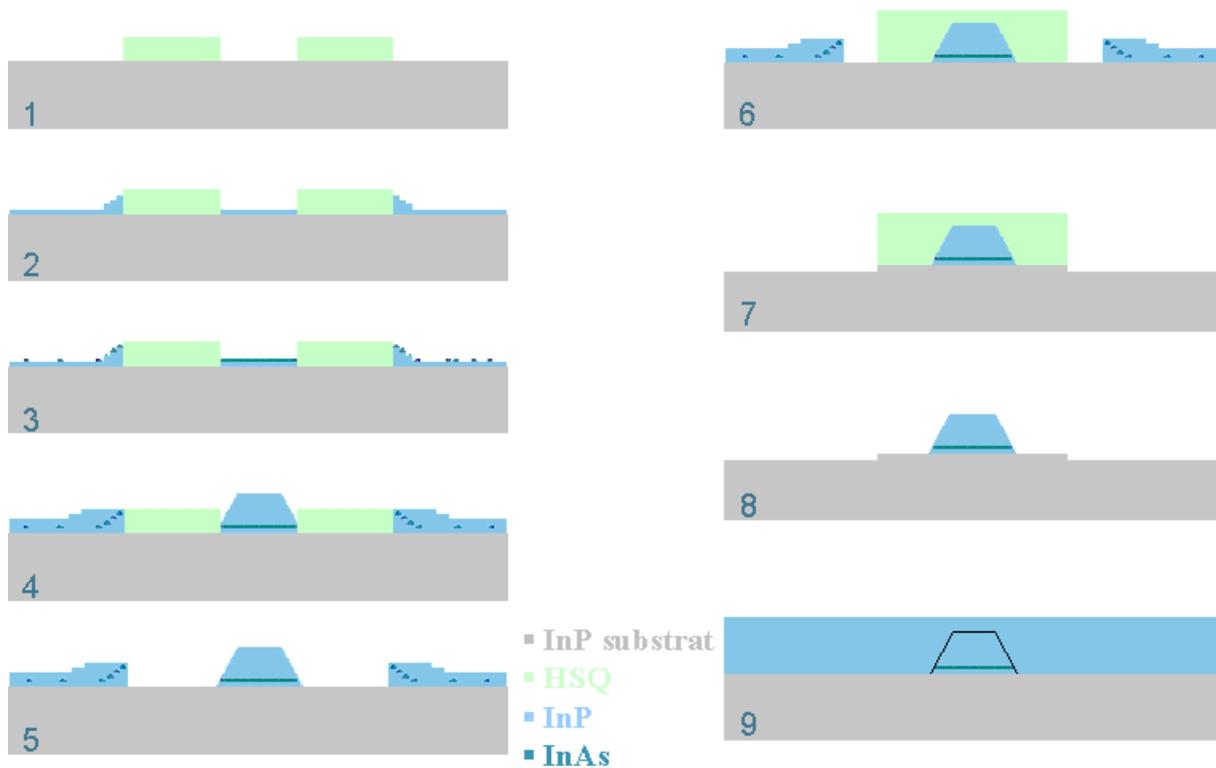


FIG. 4.11 – Étapes de croissance des boîtes localisée InAs/InP

La première étape consiste à venir recouvrir partiellement le substrat monocristallin d'InP avec une résine négative, appelée HSQ (pour Hydrogen Silsesquioxane). C'est une résine à fort contraste ayant une haute résolution (± 5 nm sur des trous de 80 nm de diamètre) et une bonne tenue à la température. Sur ce matériau diélectrique, les adatoms ne peuvent pas se fixer. C'est une propriété très importante, car elle nous permet d'inhiber la croissance là où l'on dépose de la résine et inversement de permettre la croissance dans les zones où la résine est absente. L'échantillon est donc insolé dans le masqueur électronique et on révèle ensuite la résine. Les motifs obtenus sont des carrés de résine de 500 nm de côté, à l'intérieur desquels on vient ouvrir un cercle de diamètre variable (de 40 nm à 100 nm) (étape 1). Ces motifs sont répétés sur une grande zone (typiquement, on réalise des motifs de 100×100 carrés). La dimension des carrés est inférieure à la longueur de diffusion des espèces. Ainsi, on peut relier de manière précise la quantité de matière qui

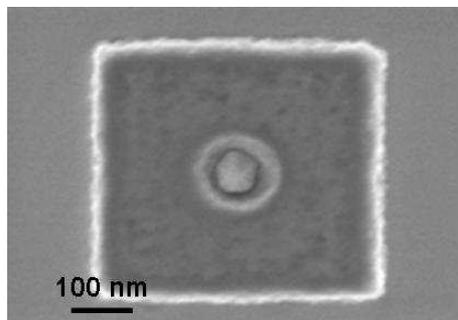
se forme dans l'ouverture à partir de celle déposée en dehors du motif. On réalise ensuite une première croissance d'InP (étape **2**) afin d'obtenir une surface bien régulière pour la croissance de l'InAs (étape **3**). On dépose ensuite de l'InAs qui est ensuite recouvert par de l'InP afin de garantir un confinement énergétique et pour éviter que la couche d'InAs ne désorbe (étape **4**). A la fin ces étapes, il y a eu formation de boîtes auto-organisées sur les marches atomiques proche du motif. La résine est ensuite retirée par une attaque chimique (étape **5**). On vient ensuite redéposer une couche de résine sur l'îlot (étape **6**) pour venir graver les boîtes auto-organisées par gravure sèche dans le bâti d'I.C.P.-R.I.E. (étape **7** et **8**). La dernière étape consiste à encapsuler les îlots avec de l'InP (étape **9**). Des exemples de photos et d'images à différentes étapes de la fabrication sont présentés sur la figure 4.12.

4.3.3 Premiers résultats optiques et perspectives pour la méthode de croissance

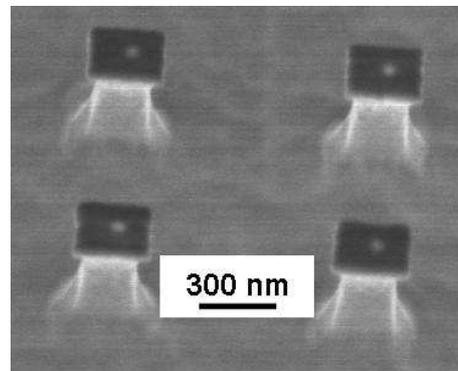
Sur un des échantillons, nous avons visé un dépôt d'une épaisseur nominale de 8 monocouches d'InAs dans les trous. Les trous au centre du carré font 60 nm de diamètre. Nous avons alors mené des expériences de micro-photoluminescence sur ce type d'échantillon à 5 K. L'excitation se fait en continu à une longueur d'onde de 532 nm. Sur la figure 4.13, sont représentés deux spectres de luminescence obtenus sur ces objets. Le spectre *a*) est enregistré sur une zone au sein de laquelle aucun dépôt localisé n'a été réalisé. Sur cette zone, toutes les boîtes quantiques auto-organisées ont été gravées, et le signal de photoluminescence est très faible voire nul sur un large spectre. On observe quand même du signal vers 1.2 μm que l'on attribue à des défauts du substrat ou à la luminescence du substrat dopé Fe. En revanche, lorsque l'on pointe avec le laser d'excitation sur une zone comprenant des motifs localisés, on observe des raies de 3 à 5 nm de largeur. La longueur d'onde de ces raies varie sur l'échantillon, preuve que les trous ne sont pas homogènes et que la matière déposée n'est pas la même dans tous les motifs. Nous observons également un signal très large spectralement à partir de 1450 nm jusqu'à 1.6 μm (longueur d'onde de coupure de la caméra InGaAs). L'origine de ce signal n'est pas encore compris. En revanche, le pic de luminescence provient bien du dépôt de matière localisé, puisqu'il n'apparaît que sur les zones présentant de tels motifs et varie d'un motif à un autre.

Ces résultats sont très encourageants car ils constituent la première mise en évidence de l'émission d'îlots d'InAs localisés. Le signal collecté est relativement plus faible que pour les boîtes InAsP auto-organisées (d'un facteur 40 environ dans le cas des raies fines observées à 1.3 μm au chapitre 2). D'autre part, les pics de luminescence observés sont spectralement larges. Nous ne sommes pas en mesure actuellement de réaliser des expériences de mesures de durée de vie ou des mesures de corrélations sur ces objets. Il est donc encore très difficile de déterminer l'impact des états de surface sur les facettes des îlots, qui pourraient être responsables de phénomènes non-radiatifs. De plus, l'absence de couche de mouillage sous les îlots doit modifier les propriétés d'absorption des porteurs. Tous ces effets pourraient expliquer la faible luminescence des îlots.

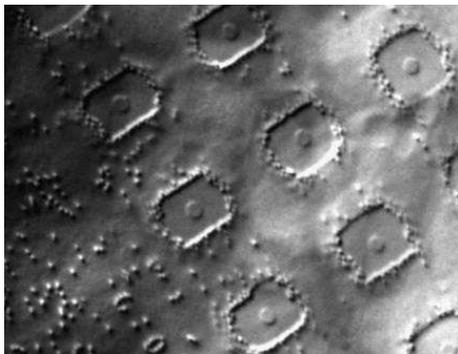
Des travaux sont actuellement en cours pour mieux contrôler la quantité de matière déposée dans les nano-ouvertures. Nous essayons notamment de rendre l'ouverture des trous



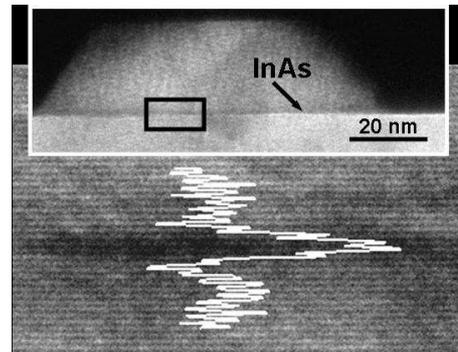
a)



b)



c)



d)



e)



f)

FIG. 4.12 – (a) et (b) Photos au microscope électronique à balayage des échantillons au niveau de l'étape 8; Images TEM en vue plane à l'étape 6 (c) (Les boîtes auto-organisées sont visibles à l'extérieur du champ de boîtes nano-épitaxiées), et à l'étape 8 (vue en coupe); e) et f) Images AFM à l'étape 8. Les îlots d'InAs sont clairement visibles au sommet des plots

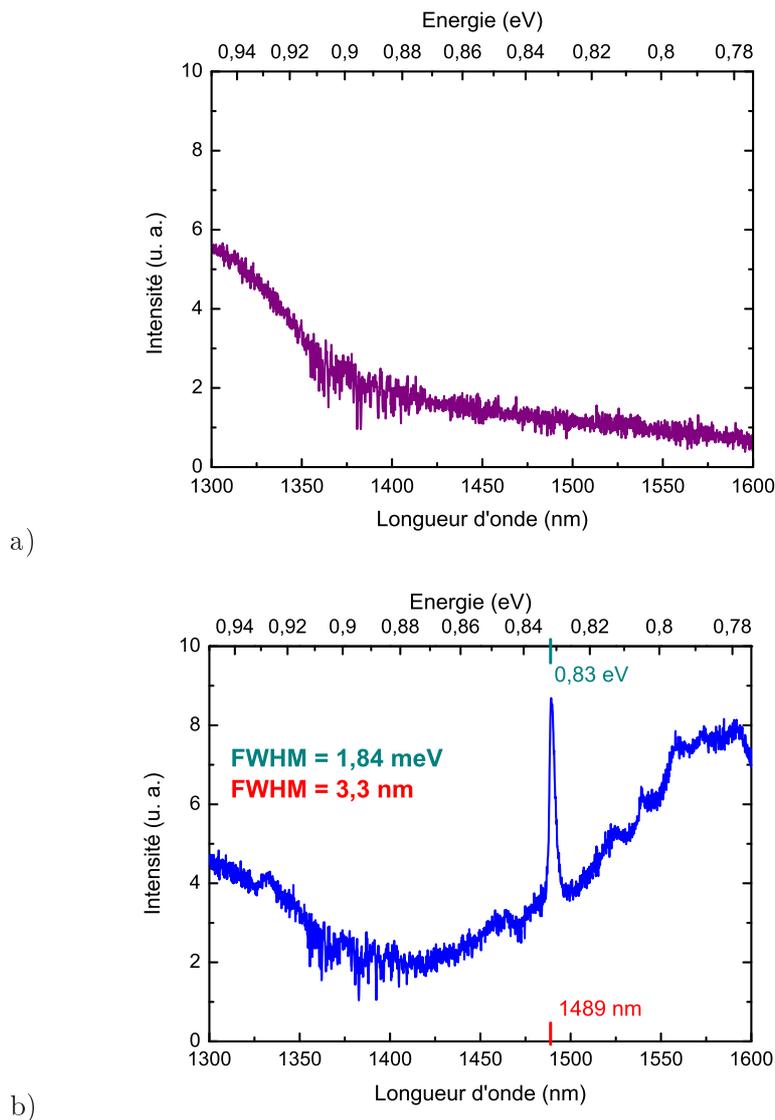


FIG. 4.13 – (a) : Signal de photoluminescence en dehors des zones épitaxiées. L'absence de signal signifie que les boîtes auto-organisées ont été gravées ; (b) : Signal de photoluminescence sur la zone contenant les îlots nano-épitaxiés. En plus du signal continu, on observe une émission piquée à 1490 nm de 3 nm de largeur.

la plus homogène possible. C'est une étape critique car elle conditionne la reproductibilité des îlots sur l'échantillon.

4.3.4 Vers une boîte localisée en cavité

Les premiers résultats de photoluminescence des îlots localisés sont prometteurs et on pourra envisager de prolonger cet effort par la suite vers la maîtrise de la reproductibilité de la longueur d'onde de ces objets. Le couplage de la boîte au sein d'une cavité optique avec un bon accord spectral et spatial sera alors aisément obtenu. Sur ce point, nous avons en place une procédure d'alignement qui permet de venir graver un cristal photonique (cavité

H1, L3 ou autre) autour des îlots (voir figure 4.14). Grâce à un système de marque, on vient positionner le motif de la cavité sur les îlots lors de l'étape d'insolation. La précision de cet alignement est de l'ordre de 30 nm.

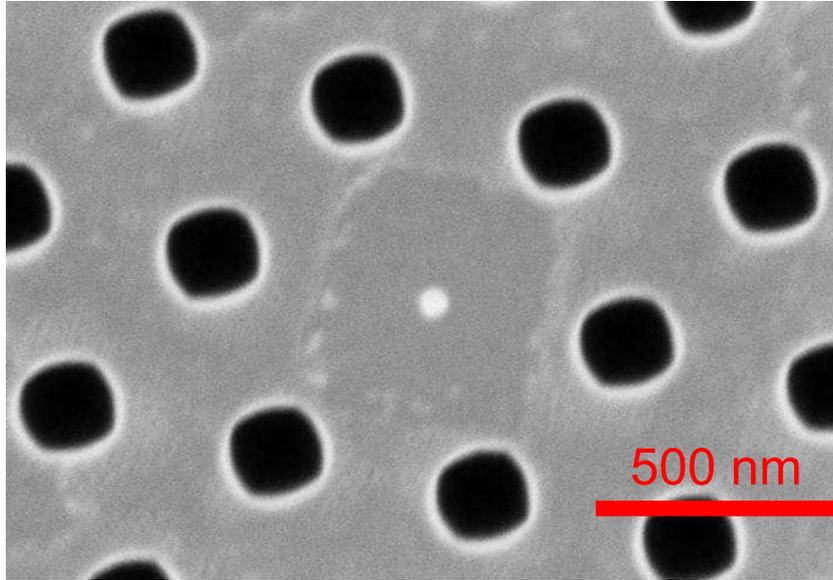


FIG. 4.14 – Photo au microscope électronique à balayage d'un îlot nano-épitaxié au milieu d'une cavité à cristal photonique "H1". L'accord spatial est réalisé.

4.4 Conclusion

Dans le chapitre précédent nous avons démontré que les boîtes quantiques In-AsP/InP étaient de bonnes candidates pour la réalisation d'une source de photons uniques. Pour utiliser ce type de source dans des systèmes de cryptographie quantique, il est nécessaire de rendre cette source performante. L'utilisation d'effets d'électrodynamique quantique en cavité permet à la fois d'accélérer la dynamique d'émission spontanée et de rediriger l'émission dans un mode de cavité bien choisi. Nous avons montré dans ce chapitre qu'il était possible de réaliser de telles cavités sur membrane InP. Mais, pour tirer pleinement profit des ces effets, la boîte quantique doit être accordée spatialement et spectralement au mode de la cavité. Les boîtes quantiques auto-organisées ne sont pas les candidates idéales pour satisfaire ces conditions, car leur positions et leur tailles ne peuvent pas être contrôlées pendant la croissance. L'utilisation de boîtes quantiques localisée permettrait néanmoins d'obtenir les deux accords souhaités. En effet, l'accord spatial est automatiquement réalisé et les premiers résultats préliminaires de photoluminescence montrent une émission vers $1.5 \mu\text{m}$. La maîtrise et la compréhension de la croissance de ces nano-objets restent les enjeux des travaux à venir afin de réaliser l'accord spectral. En combinant des effets CQED avec la croissance localisée de matériaux peu sensibles à des défaut non-radiatifs, la réalisation d'une source de photons uniques, et également de photons indiscernables, à $1.55 \mu\text{m}$, fonctionnant à 77 K, devient fortement envisageable.

Chapitre 5

Application à la réalisation de 'NanoLaser' à boîtes quantiques émettant à $1.55 \mu\text{m}$

Les mesures menées au chapitre 2 ont permis de mettre en évidence la faible influence des effets non-radiatifs à température ambiante sur les boîtes quantiques InAsP/InP. Nous allons démontrer dans ce chapitre qu'il est possible d'utiliser ces boîtes quantiques comme milieu à gain dans des lasers innovants à cristaux photoniques, fonctionnant à température ambiante. Ces lasers à fort facteur de qualité et à faible volume modal, présentent un fort taux de couplage β de l'émission spontanée dans le mode laser. Nous rappellerons dans un premier temps les équations qui régissent ce type de lasers. Nous mettrons en évidence les différences en termes de passage du seuil avec les lasers conventionnels. Après une présentation des cavités choisies pour l'étude, nous exposerons les mesures de facteur de qualité et des mesures de durée de vie qui nous permettent de quantifier l'effet Purcell dans ce type de cavité. Enfin, la dernière partie de ce chapitre sera consacrée à la mise en évidence expérimentale d'effet laser à 300 K, par des mesures d'intensité collectée en fonction de la puissance de pompe et des mesures de corrélations de photons en régime impulsionnel. A cette occasion, nous verrons que l'établissement de l'émission cohérente dans ces lasers à fort β diffèrent par rapport aux lasers conventionnels.

5.1 Lasers à émission spontanée contrôlée

Dans un laser, l'émission stimulée est déclenchée par l'émission spontanée dans le mode laser, alors que l'émission spontanée dans les autres modes induit des pertes en dissipant de l'énergie. Dans les lasers à semiconducteur conventionnels à émission par la tranche, employés notamment dans les télécommunications optiques, la fraction utile β de l'émission spontanée véhiculée dans le mode laser est très faible, de l'ordre de 10^{-5} , et le courant de seuil est d'autant plus élevé. Augmenter β dans les lasers permettrait notamment de réduire ce courant de seuil. Nous avons vu dans le chapitre 4 que l'augmentation du facteur β peut être obtenue en accélérant le processus d'émission spontanée (effet Purcell) : la fraction β d'émission spontanée dans le mode utile du laser devient alors égale à $\beta = F/(F + \gamma)$, où

F désigne l'accélération de l'émission spontanée dans le mode laser et γ l'amplitude de la modification de la dynamique d'émission spontanée dans les autres modes du composant. Ainsi, une accélération importante de la dynamique d'émission spontanée du milieu actif induit un couplage préférentiel de l'émission spontanée dans le mode laser. Parallèlement, plusieurs propositions et expériences indiquent que les effets de modification de l'émission spontanée permettent de réduire le temps d'allumage du laser, d'accroître la bande de modulation directe de ces composants et éventuellement réduire le bruit d'intensité relatif [122].

Depuis 1990, ces lasers à émission spontanée contrôlée ont fait l'objet de nombreuses études théoriques [122, 123] et ont fortement motivé les études des effets de CQED dans les semiconducteurs. Ces travaux ont suscité une polémique notamment dans la définition du seuil laser. Nous reviendrons sur ce point dans les paragraphes suivants. Depuis, quelques réalisations expérimentales ont pu confirmer, du moins qualitativement, les attendus théoriques, notamment en termes de seuil et de dynamique. Des études récentes effectuées au laboratoire sur des structures en GaAs ont pu mettre en évidence expérimentalement l'impact d'un fort facteur β sur les caractéristiques spectrales et temporelles de l'émission laser [124, 9]. Afin de mieux cerner l'impact des effets de contrôle de l'émission spontanée sur les caractéristiques des lasers, revenons dans un premier temps sur les équations d'évolution qui décrivent l'effet laser.

5.1.1 Equations d'évolution en présence d'un contrôle de l'émission spontanée

Dans cette partie, nous introduirons les équations couplées [125] de populations des porteurs et des photons dans la cavité. Cette description sera utile afin de dégager les paramètres influant sur le fonctionnement du laser en s'appuyant sur des arguments phénoménologiques.

Dans nos expériences, le milieu actif est formé d'un plan de boîtes quantiques semiconductrices d'InAsP dans une matrice d'InP à 300 K. L'excitation se fait optiquement de manière non-résonante dans l'InP environnant. La relaxation des porteurs depuis la matrice vers les boîtes quantiques est très efficace et s'effectue sur des échelles de temps de l'ordre de quelques dizaines de ps. Après cascade non-radiative des porteurs injectés, il y a ainsi création de paires électron-trou sur les transitions optiques discrètes des boîtes. Plusieurs effets peuvent contribuer à réduire la fraction des porteurs initialement injectés qui relaxent ensuite vers les boîtes. On peut citer notamment la durée de vie finie des porteurs dans la couche de mouillage et les mécanismes de recombinaisons non-radiatives aux interfaces comme les surfaces libres (phénomène moins marqué sur InP que sur GaAs). Du fait de leur dispersion en taille, chaque boîte quantique possède des énergies de transition distinctes avec un certain élargissement homogène. Il n'y aura donc qu'une partie des dipôles optiques qui seront couplés au mode laser. Nous noterons η_i la fraction de porteurs injectés qui relaxent vers les transitions optiques "utiles" et N la densité de porteurs de charge piégés sur les transitions optiques "utiles", i.e. couplées au mode laser. Les variations de la densité de porteurs seront alors gouvernées par quatre processus :

- La création de porteurs de charge par l'excitation (optique dans notre cas, mais on peut également envisager un pompage électrique) ;

- L'émission spontanée de lumière par recombinaison radiative des porteurs piégés dans les boîtes ;
 - Les recombinaisons non-radiatives des porteurs piégés ;
 - L'émission stimulée de lumière par recombinaison radiative des porteurs piégés.
- Ainsi, l'équation d'évolution des porteurs peut s'écrire de la manière suivante :

$$\frac{dN}{dt} = \frac{\eta_i I}{qV_N} - \left(\frac{N}{\tau_{nr}} + \frac{N}{\tau_{sp}} \right) - R_{st} \quad (5.1)$$

où $\eta_i I/q$ est le nombre d'électrons injectés par seconde dans la zone active et V_N est le volume du milieu actif. R_{st} désigne le taux d'émission stimulée, τ_{sp} et τ_{nr} désignent respectivement les temps d'émission spontanée et non-radiatif.

Les photons sont créés par émission spontanée et stimulée, à partir des porteurs excités "utiles" dans la cavité. Les pertes de photons se font soit par absorption, soit par échappement hors de la cavité. Cependant, le volume V_P de la cavité vu par les photons et celui V_N vu par les porteurs sont différents puisque l'espace dans lequel les photons peuvent évoluer librement est bien plus important que pour les porteurs confinés de la zone active. Ainsi, en première approximation, le nombre de photons créé par unité de volume (par émission spontanée et stimulée) sera diminué d'un facteur V_N/V_P . Ce rapport des volumes d'occupation est généralement appelé le facteur de confinement Γ_{conf} . D'autre part, seule une fraction β de l'émission spontanée est couplée au mode utile du laser. Ainsi, si on note P la densité de photons véhiculés dans le mode laser, l'équation d'évolution des photons peut s'écrire :

$$\frac{dP}{dt} = \Gamma_{conf} R_{st} + \Gamma_{conf} \beta \frac{N}{\tau_{sp}} - \frac{P}{\tau_c} \quad (5.2)$$

où τ_c est la durée de vie des photons dans la cavité.

Dans ces équations, le terme R_{st} est le gain net de photons. Si l'on considère une densité de photons P entrant dans une portion de zone active d'épaisseur Δz , on obtient alors une augmentation ΔP de la densité de photons, qui peut s'exprimer en fonction du gain par unité de longueur g :

$$P + \Delta P = P e^{g\Delta z} \quad (5.3)$$

Si Δz est suffisamment petit, $\exp(g\Delta z) \approx (1 + g\Delta z)$. En utilisant aussi le fait que $\Delta z = v_g \Delta t$, où v_g est la vitesse de groupe, on trouve que $\Delta P = P g v_g \Delta t$. On obtient ainsi le terme de création de photons $\Delta P/\Delta t$ par émission stimulée :

$$R_{st} = v_g g P \quad (5.4)$$

Dans les semiconducteurs, le gain g est égal, en première approximation, à $a(N - N_{tr})$, où $a = \partial g/\partial N$ est le gain différentiel et N_{tr} est la densité de porteurs à la transparence. Ainsi, on peut réécrire les équations d'évolution des populations de photons et de porteurs par unité de volume sous la forme des équations couplées suivantes :

$$\frac{dN}{dt} = \frac{\eta_i I}{qV_N} - \frac{N}{\tau_{nr}} - \frac{N}{\tau_{sp}} - v_g a(N - N_{tr})P \quad (5.5)$$

$$\frac{dP}{dt} = \Gamma_{conf} v_g a(N - N_{tr})P + \Gamma_{conf} \beta \frac{N}{\tau_{sp}} - \frac{P}{\tau_c} \quad (5.6)$$

Ce modèle est suffisant pour déterminer l'impact du contrôle de l'émission spontanée dans les cavités lasers mais présente de nombreuses limitations. Tout d'abord, nous avons considéré un taux d'émission spontanée $1/\tau_{sp}$ constant pour tous les porteurs. Or du fait de leur distribution spectrale et spatiale aléatoire, les boîtes présenteront des désaccords spectraux et spatiaux distincts par rapport au mode laser et ne subiront pas avec la même amplitude l'accélération de leur émission spontanée par la cavité. Nous nous contentons ici de moyenner ces différences pour aboutir à un taux d'émission spontanée "moyen" attribué à toutes les transitions optiques utiles. Parallèlement, nous négligeons ici les effets du taux de remplissage des boîtes et l'impact de la saturation des transitions optiques utiles à forte puissance. Enfin, la capture des porteurs par les boîtes quantiques est prise en compte mais pas le phénomène inverse d'émission thermoionique des boîtes quantiques vers les barrières. De façon générale, les effets thermiques ne sont pas introduits, alors que l'échauffement des structures microlaser est souvent non négligeable. Nous aurons l'occasion de traiter l'impact de ces effets thermiques dans les prochains paragraphes.

5.1.2 Impact du couplage de l'émission spontanée au mode laser sur les caractéristiques de la source

5.1.3 Impact sur le seuil laser

Avant de décrire l'impact du contrôle de l'émission spontanée sur le seuil laser avec un laser à fort β , il convient de définir le seuil d'un laser. La définition classique conventionnelle du seuil correspond au taux de pompage pour lequel le gain net du mode par émission stimulée est égal aux pertes optiques de la cavité. Une autre approche, dite quantique, définit le seuil comme la valeur de pompe telle que le nombre de photons moyens dans le mode laser est égal à 1 [122]. Notons que ces deux définitions se basent sur l'analyse de l'intensité émise par le laser. Nous verrons par la suite que l'on peut définir un seuil laser en s'intéressant aux propriétés statistiques de la lumière émise.

Dans les lasers conventionnels macroscopiques, dans lesquels la fraction d'émission spontanée dans le mode laser est très faible, ces deux définitions coïncident. En effet, la définition "classique" du seuil se traduit alors par l'égalité $1/\tau_c = \Gamma_{conf} v_g (N_{th} - N_{tr})$, où N_{th} est la densité de porteurs au seuil laser. La définition "quantique" du seuil quant à elle impose $PV_P = 1$. Or, en régime stationnaire, l'équation d'évolution des photons devient :

$$0 = (\Gamma_{conf} v_g a(N - N_{tr}) - \frac{1}{\tau_c})P + \Gamma_{conf} \beta \frac{N}{\tau_{sp}} \quad (5.7)$$

En négligeant la contribution de l'émission spontanée ($\beta \ll 1$), le passage du seuil ($PV_P = 1$) se traduit alors à nouveau par l'égalité : $1/\tau_c = \Gamma_{conf} v_g (N_{th} - N_{tr})$. Le seuil au sens "classique" coïncide donc avec le seuil au sens "quantique". En revanche, dans

les lasers à fort β , les approximations précédentes ne sont plus valables : on ne peut plus négliger l'impact de l'émission spontanée dans l'estimation du seuil et il apparaît alors une divergence entre les deux définitions. En effet, la condition "gain = pertes" qui donne le seuil au sens classique, revient à négliger la contribution de l'émission spontanée dans l'équation 5.7. Or en présence d'un contrôle de l'émission spontanée et d'un couplage efficace de l'émission spontanée au mode laser, cette approximation n'est plus valable. La définition classique du seuil ne peut donc plus être appliquée.

Déterminons alors la densité de porteurs et le courant d'injection au seuil suivant la définition quantique du seuil $PV_P = 1$. En régime stationnaire et au seuil, on a :

$$0 = \frac{\eta_i I_{th}}{qV_N} - \frac{N_{th}}{\tau_{nr}} - \frac{N_{th}}{\tau_{sp}} - v_g a(N_{th} - N_{tr}) \quad (5.8)$$

$$0 = \Gamma_{conf} v_g a(N_{th} - N_{tr}) + \Gamma_{conf} \beta \frac{N_{th}}{\tau_{sp}} - \frac{1}{\tau_c} \quad (5.9)$$

D'après les relations d'Einstein entre les coefficients A et B , le taux d'émission spontanée est égal au taux d'émission stimulée lorsque $PV_P \simeq 1$. En regard de l'équation d'évolution des photons, on en déduit que $v_g a = \beta V_P / \tau_{sp}$. En résolvant le système d'équations précédent, on en déduit que la densité de porteurs N_{th} et le courant d'injection au seuil défini dans un cadre quantique ($PV_P = 1$) s'écrivent :

$$N_{th} = \frac{N_{tr}}{2} \left(1 + \frac{1}{\xi}\right) \quad (5.10)$$

$$I_{th} = \frac{q}{2\eta_i \beta \tau_{sp}} \left(\left(1 + \frac{\tau_{sp}}{\tau_{nr}} + \beta\right) + \xi \left(1 + \frac{\tau_{sp}}{\tau_{nr}} - \beta\right) \right) \quad (5.11)$$

où $\xi = N_{tr} V_N \beta \tau_c / \tau_{sp}$. Ce paramètre ξ peut être interprété comme le nombre de photons dans le mode laser au seuil de transparence ($N = N_{tr}$). Le taux d'inversion au seuil est alors défini comme :

$$\frac{N_{th} - N_{tr}}{N_{th}} = \frac{1 - \xi}{1 + \xi} \quad (5.12)$$

Lorsque $\xi > 1$, le taux d'inversion au seuil est négatif : le seuil est atteint pour des densités de porteurs N_{th} inférieures à la densité de porteurs à la transparence N_{tr} . On peut donc atteindre un régime laser sans qu'il y ait pour autant inversion de population. Remarquons que la définition classique du seuil $1/\tau_c = \Gamma a v_g (N_{th} - N_{tr})$ ne prévoit pas un tel régime mais prédit au contraire que la transition vers l'émission stimulée s'accompagne nécessairement d'une inversion de population. Une stratégie possible pour la réalisation d'un tel laser sans inversion de population exploite les effets d'électrodynamique quantique en cavité : l'insertion du milieu actif dans une microcavité optique monomode de grand facteur de qualité a pour effet de rallonger τ_c qui est proportionnel à Q , de réduire τ_{sp} par l'accélération de l'émission spontanée et d'accroître β . Dans nos expériences, τ_c est de l'ordre de 40 ps et τ_{sp} de 70 ps à 700 ps pour les temps courts et longs respectivement (voir paragraphe 5.4.2) ; $N_{tr} V_N$ sera de l'ordre de quelques dizaines à la centaine et β de l'ordre de quelques 10^{-1} . Ainsi, il apparaît que le paramètre sans dimensions ξ devrait être

proche de l'unité, voir même supérieur à 1 (≈ 2).

Outre la réalisation de lasers sans inversion de population, l'exaltation du taux d'émission spontanée et du couplage de l'émission spontanée au mode laser devrait permettre de diminuer le seuil de fonctionnement d'un laser (on a : $\partial I_{th}/\partial\beta < 0$). Ceci est illustré sur la figure 5.1 qui représente le nombre de photons dans la cavité en fonction de l'excitation pour différentes valeurs de β . L'expression analytique de ces caractéristiques peut être aisément déduite à partir du système d'équations d'évolution de photons et des porteurs en régime stationnaire sous la forme :

$$\frac{\eta_i I}{q} = \frac{1}{\beta\tau_c} \left(p \frac{1+\xi}{1+p} \left(1 + \frac{\tau_{sp}}{\tau_c} + \beta p \right) - \beta \xi p \right) \quad (5.13)$$

où $p = PV_P$ est le nombre de photons dans la cavité. Il apparaît nettement que la transition autour de $PV_p = 1$ a lieu pour des puissances d'excitation réduites lorsque β augmente. A faible β , ce passage depuis l'émission spontanée vers l'émission laser est marqué par une forte non-linéarité sur le nombre de photons, qui s'accroît fortement au dessus du seuil. Cette transition devient de moins en moins abrupte lorsque β augmente : **le passage du seuil est moins marqué dans les lasers à fort β par rapport aux lasers conventionnels**. Lorsque l'on trace les caractéristiques du laser en échelle logarithmique (voir Fig. 5.1), le passage du seuil se traduit par une marche abrupte et nette dans la caractéristique du laser de faible β . En revanche, lorsque le couplage de l'émission spontanée au mode laser devient plus efficace, l'amplitude de cette marche diminue et le passage du seuil s'étale sur une plage de puissance d'excitation plus importante. Dans la limite ultime $\beta = 1$, la caractéristique du laser en échelle logarithmique suit une droite : il n'y a pas de saut d'efficacité de conversion des photons de pompe en photon émis par la cavité. Cette caractéristique particulière a conduit à la notion de "laser sans seuil" [126], bien que cette désignation soit abusive. En effet, le seuil du laser n'est pas nul car il est toujours possible de définir un courant de seuil d'après l'équation 5.11. A une puissance de pompe en dessous du seuil, le nombre moyen de photon émis est inférieur à 1, de sorte que le processus dominant est l'émission spontanée. Les photons émis sont incohérents. Par contre, pour une puissance de pompe nettement supérieure à la puissance seuil, le nombre de photons devient supérieur à l'unité. Dans ce cas, les photons émis par émission stimulée sont cohérents. La définition "quantique" du seuil correspond ainsi à la puissance à laquelle le nombre de photon dans la cavité vaut 1 en moyenne. Ces dernières remarques nous amènent à donner une nouvelle définition du seuil qui s'appuie sur la cohérence des photons émis.

Dans cette approche [123], le seuil est déterminé à partir de la fonction de corrélation de second ordre du signal et par le facteur de Fano respectivement définis par :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\bar{n}^2 - \bar{n}}{\bar{n}^2} \quad (5.14)$$

$$F_{Fano} = 1 + \bar{n}(g^{(2)}(0) - 1) \quad (5.15)$$

où \bar{n} est le nombre moyen de photons dans la cavité. On s'appuie donc ici sur une analyse statistique du signal émis par le composant, et le paramètre $g^{(2)}(0)$ mesure la cohérence

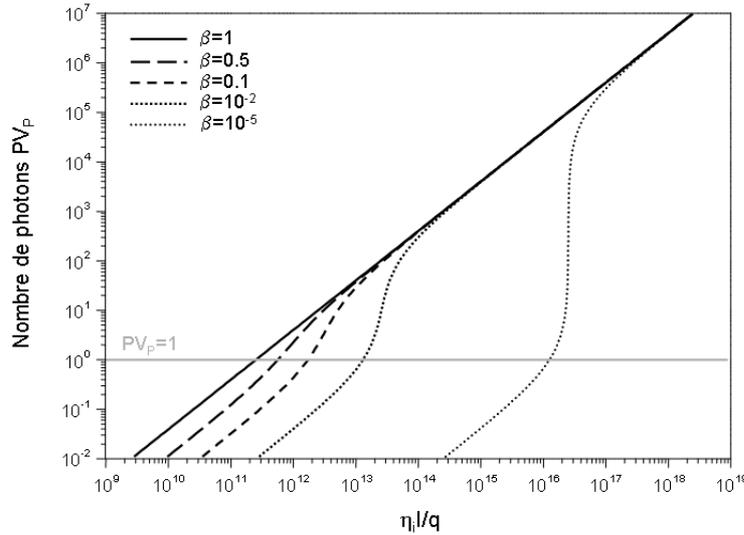


FIG. 5.1 – Courbes caractéristiques (nombre de photons en fonction de l'excitation) pour différentes valeurs de β . Dans ces simulations, nous avons supposé $N_{tr}V_N = 60$, $\tau_c = 40$ ps, $\tau_{sp} = 80$ ps et $\tau_{nr} = 10$ ns.

du signal émis. Pour une lumière thermique ou chaotique, $g^{(2)}(0) = 2$ et pour une source Poissonienne (cohérente), $g^{(2)}(0) = 1$ (voir Chapitre 4). Ainsi, pour un laser opérant bien en dessous du seuil sur un état thermique faiblement excité ($\bar{n} \simeq 0$), la fonction de corrélation de second ordre $g^{(2)}(0)$ vaut 2 et le facteur de Fano F_{Fano} tend vers 1. Lorsque le dispositif opère bien au dessus du seuil, $g^{(2)}(0)$ vaut 1 et le facteur de Fano F_{Fano} tend de nouveau vers 1. Cette approche définit le seuil "statistique" de la transition laser. Dans les lasers conventionnels, le passage de seuil se traduit par un pic étroit du facteur de Fano en fonction de la puissance de pompe et une chute abrupte de $g^{(2)}(0)$ qui passe de la valeur 2 à 1 au seuil. Les fluctuations importantes dans la région du seuil peuvent être comparées à une transition de phase. Lorsque le couplage de l'émission spontanée vers le mode laser augmente, ce pic du facteur de Fano diminue (son amplitude est proportionnelle à $1/\sqrt{\beta}$) et a lieu sur une plage de puissance d'excitation plus étendue (cette plage de puissance correspondant au passage du seuil est proportionnelle à $\sqrt{\beta}$). De même, la réduction au passage du seuil de la fonction de corrélation de second ordre en fonction de la puissance de pompe n'est plus abrupte mais s'effectue de façon plus lente sur un domaine plus large de puissance d'excitation. Nous reviendrons sur ce point lors des mesures de corrélation au paragraphe 5.5.3.

Nous venons d'introduire l'impact d'un laser à fort β sur ses caractéristiques comme le passage du seuil. Nous savons que pour réaliser un tel laser, on doit satisfaire à plusieurs contraintes, comme un faible volume modal et un fort facteur de qualité. Nous verrons dans le paragraphe suivant que les cavités à cristaux photoniques répondent à ces deux critères.

5.2 La cavité laser

5.2.1 Cavité à double hétérostructure

Nous avons vu au chapitre 4 que nous pouvions réaliser une cavité optique en introduisant un défaut ponctuel, qui peut être créé en enlevant un trou dans une maille triangulaire (cavité H1). On peut aussi réaliser des défauts étendus au sein d'un cristal photonique, par exemple en retirant une ligne de trous dans un cristal photonique parfait ou bien en modifiant le diamètre des trous d'une ligne entière. Ces défauts étendus permettent de réaliser des guides de lumière au sein du cristal. On appelle guide W1 un guide formé d'une ligne manquante de trous dans la direction ΓK (voir figure 5.2). Dans ce type de guide, le champ électromagnétique ne peut alors se propager que dans la direction d'invariance du défaut et il est confiné transversalement grâce à la présence d'un gap photonique. Ce guide présente une fréquence de coupure indiquée par la courbe en trait plein dans la bande interdite photonique sur la figure 5.2. Seules les ondes de fréquences supérieures à cette courbe pourront se propager dans le guide. La zone de coupure du guide est marquée par une courbe de dispersion très plate correspondant à une vitesse de groupe en théorie nulle au bord de la première zone de Brillouin. Si on augmente la période du cristal, ceci a pour effet d'abaisser la fréquence de coupure du guide. On peut donc ajuster de manière très simple la fréquence de coupure du guide.

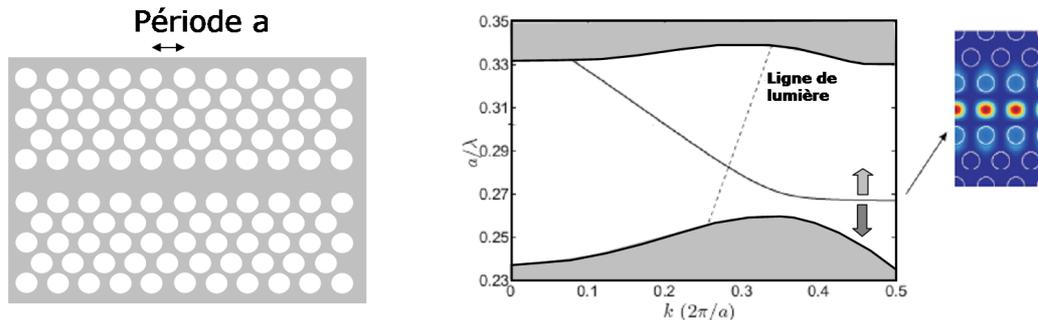


FIG. 5.2 – Représentation schématique du guide W1 (gauche) et de son diagramme de bande ainsi que la distribution spatiale du mode en bord de bande (droite).

Cet ajustement de la position de la fréquence de coupure à partir d'un changement de géométrie (tel que la période longitudinale) permet la réalisation de cavités optiques. La cavité dite "à double hétérostructure" [54], proposée et réalisée par l'équipe de l'Université de Kyoto, utilise ce principe. Le principe du confinement latéral dans cette cavité est d'augmenter localement (sur deux périodes) la périodicité longitudinale du réseau le long du guide (voir Fig. 5.3). On crée ainsi un guide avec un paramètre de maille a_c et de fréquence de coupure ν_c s'étendant sur deux périodes, encadré par deux guides W1 de paramètre a_g et de fréquence de coupure ν_g tels que $a_g < a_c$ et donc $\nu_c < \nu_g$. Ainsi, dans l'intervalle spectral $[\nu_c, \nu_g]$, des modes peuvent exister dans le guide central mais ne peuvent se propager dans les guides adjacents. De part la très forte similitude géométrique entre les deux zones du cristal photonique, la réflectivité des miroirs formés par les guides W1 de période longitudinale a_g est proche de 99,99%. De plus, la vitesse de groupe du mode de Bloch est très faible

(faible courbure de la courbe de dispersion). Ainsi, ces cavités présenteront de très grands facteurs de qualité tout en préservant de faibles volumes modaux qui restent de l'ordre de $(\lambda/n)^3$. Les facteurs de qualité sont d'autant plus élevés que l'écart de période entre le guide faisant office de cavité et ceux utilisés comme miroirs sera faible. Ainsi, le seul fait de juxtaposer des guides avec de très proches périodes suffit, en principe, à réaliser une cavité avec un excellent facteur de qualité et de très faible volume. Dans la pratique, la réalisation de ces cavités sur Si ont permis la fabrication de structures de facteurs de qualité de l'ordre de 10^6 [54]. Ces cavités fabriquées dans des matériaux semiconducteurs III-V sans milieu actif montrent des facteurs de qualité de l'ordre de quelques 10^5 [127, 128] (sur GaAs).

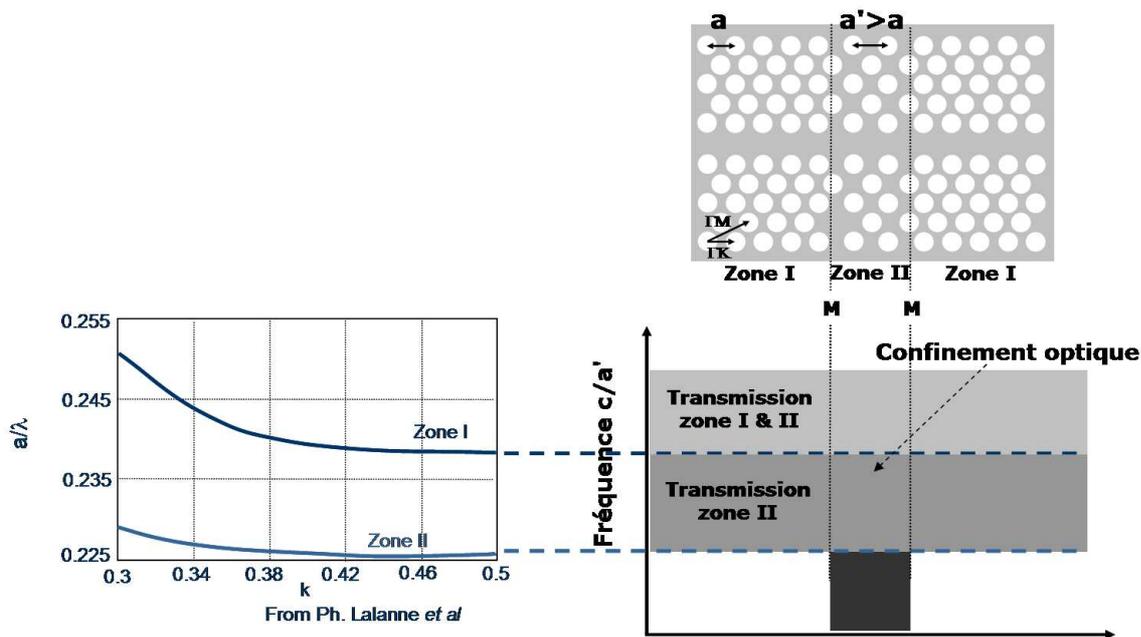


FIG. 5.3 – Schéma de principe d'une structure à double hétérostructure (en haut), diagramme de bande de deux guides W1 mais avec une périodicité différente dans la direction longitudinale (en bas à gauche) et une représentation du confinement optique dans une telle structure (en bas à droite)

5.2.2 Paramètres du cristal photonique et exemple de spectres

Les paramètres retenus pour ces cavités proviennent des cavités utilisées sur GaAs avec des boîtes InAs, utilisées pendant la thèse de R. Braive [124]. Nous avons adapté ces paramètres pour obtenir un mode autour de $1.55 \mu\text{m}$. On dispose donc d'un guide W1 au sein d'un cristal photonique arrangé suivant une maille hexagonale de pas $a_g = 410\text{nm}$. Au centre du guide, la cavité est formée de deux périodes de guide de pas $a_c = 440\text{nm}$. Le rapport r/a_m visé est proche de 0.3 et dépend de la dose utilisée pendant l'insolation des trous. De même que pour les cavités H1, on fait varier cette dose sur l'échantillon pour obtenir un ensemble de cavité émettant de $1.45 \mu\text{m}$ jusqu'à $1.6 \mu\text{m}$.

Les cavités à "double-hétérostructures" présentent toutes les caractéristiques nécessaires pour la réalisation de laser à fort β . Dans le prochain paragraphe nous allons

vérifier expérimentalement ces caractéristiques, en commençant par la mesure du facteur de qualité. Dans les mesures classiques présentées dans la littérature, on mesure la transmission du guide en fonction de la longueur d'onde avec un laser accordable. Dans notre cas, la présence d'un milieu à gain va nous contraindre à une autre approche que nous allons détailler.

5.3 Facteur de qualité des cavités à double-hétérostructure

Dans ce paragraphe nous cherchons à évaluer le facteur de qualité des cavités à "double hétérostructures" en présence d'un milieu à gain : les boîtes quantiques InAsP. La présence du milieu à gain nous contraint à quelques précautions à cause de l'absorption des boîtes, qui dégrade artificiellement le facteur de qualité. Nous reviendrons dans un premier temps sur les équations qui définissent le facteur de qualité ainsi que l'impact d'une cavité à fort β sur les caractéristiques spectrales de la lumière émise. D'autre part, nous attendons des facteurs de qualité supérieurs à 10^3 , ce qui est bien au-dessus de la résolution spectrale de notre montage. C'est pourquoi les mesures se font par des techniques de spectroscopie par transformée de Fourier. Nous reviendrons sur les détails expérimentaux de cette méthode déjà introduite au chapitre 3.

5.3.1 Facteur de qualité de la cavité froide et largeur de raie à mi-hauteur

Dans la présentation des équations d'évolution des densités de porteurs et de photons, nous avons introduit le paramètre τ_c défini comme la durée de vie du photon émis dans le mode de la cavité. En l'absence de sources, l'évolution de la densité de photons P prend la forme d'une exponentielle décroissante avec un temps caractéristique τ_c et la largeur à mi-hauteur $\Delta\omega_C$ du mode de la cavité est égale à $1/\tau_c$. Cette largeur spectrale correspond à ce que l'on appelle la largeur de la cavité froide et est reliée au facteur de qualité du résonateur par $Q = \omega_C/\Delta\omega_C$, où ω_C est la pulsation de résonance du mode optique.

En revanche, en présence d'un milieu à gain, nous devons inclure la contribution de l'émission stimulée. Le photon initialement émis peut être absorbé par un dipôle. Néanmoins, on peut encore écrire l'évolution de la population de photons comme une exponentielle décroissante mais cette fois le temps caractéristique s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{1}{\tau'_c} = \frac{1}{\tau_c} - \Gamma v_{gg} = \frac{1}{\tau_c} \left(1 - \xi \left(\frac{N}{N_{tr}} - 1 \right) \right) \quad (5.16)$$

où le deuxième terme de l'expression prend en compte l'émission stimulée. La largeur à mi-hauteur devient :

$$\Delta\omega = \frac{1}{\tau'_c} = \frac{1}{\tau_c} \left(1 - \xi \left(\frac{N}{N_{tr}} - 1 \right) \right) \quad (5.17)$$

Au seuil : $N = N_{tr}$, on obtient :

$$\Delta\omega = \frac{1}{\tau'_c} = \frac{1}{\tau_c} \quad (5.18)$$

C'est la largeur de la cavité froide, avec un milieu absorbant dans le résonateur. La mesure du facteur de qualité doit se faire à la transparence du milieu, lorsque tous les émetteurs sont saturés. En revanche, au dessus du seuil et en régime stationnaire, on a :

$$\frac{1}{\tau_c} - \Gamma v_g g = \frac{\beta \Gamma N}{\tau_{sp} P} \quad (5.19)$$

Rappelons que la largeur homogène de l'émission laser est donnée par les fluctuations de la phase du champ électro-magnétique, et on retrouve ici le comportement de la largeur à mi-hauteur en fonction de la puissance de pompe prévu par la formulation de Schalow-Townes. Comme la densité de photons croît plus rapidement que la densité de porteurs lorsqu'on augmente la puissance de pompe au dessus du seuil, la largeur de raie diminue avec la puissance d'excitation¹.

5.3.2 Principe de la spectroscopie par transformée de Fourier

Afin d'accéder au facteur de qualité de la cavité froide dans nos structures, nous avons effectué des mesures de largeurs de raies en se plaçant à la transparence du milieu à gain. Pour cela, on se place juste avant le seuil laser. Expérimentalement, on mesure l'intensité collectée en fonction de la puissance de pompe sous excitation continue et on se place à une puissance qui correspond au moment où l'intensité de sortie ne croît plus linéairement.

Cependant, la résolution de notre montage est de 0.3 nm et ne nous permet pas de mesurer directement cette largeur sur la caméra InGaAs. Nous utiliserons donc la méthode de spectroscopie par transformée de fourier, déjà introduite au chapitre 3.

Rappelons tout d'abord le principe de cette mesure, en commençant par des rappels simples sur les interférences à deux ondes en lumière polychromatique. Considérons une source de densité spectrale d'intensité continue $\mathcal{I}(\sigma)$, avec $\sigma = 1/\lambda$ le nombre d'onde en cm^{-1} , à travers un dispositif interférentiel à deux ondes comme un Michelson. La source étant polychromatique, nous devons sommer toutes les composantes spectrales dans le calcul de l'intensité en sortie du Michelson :

$$I = \int dI \quad (5.20)$$

Si on introduit la différence de chemin optique Δ entre les deux bras du Michelson, on trouve simplement :

$$dI = \mathcal{I}(\sigma)(1 + \cos(2\pi\Delta\sigma))d\sigma \quad (5.21)$$

Ainsi, l'intensité totale en sortie du dispositif s'écrit :

$$I(\Delta) = \int_0^{+\infty} \mathcal{I}(\sigma)(1 + \cos(2\pi\Delta\sigma))d\sigma \quad (5.22)$$

¹Notons toutefois que cette expression est incomplète. Cette largeur doit être multipliée par $(1 + \alpha_H^2)$ où α_H est le facteur de Henry. Nous avons en effet ignoré le couplage entre le gain et l'indice de réfraction au sein du milieu actif. Le comportement de la largeur de raie du laser au dessus du seuil peut alors être différent.

Si on introduit la fonction symétrique $\mathcal{I}_s = 1/2(\mathcal{I}(\sigma) + \mathcal{I}(-\sigma))$, on trouve la relation importante suivante :

$$I(\Delta) = I_0 + \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{I}_s(\sigma) \cos(2\pi\sigma\Delta) d\sigma \quad (5.23)$$

avec $I_0 = \int_0^{+\infty} \mathcal{I}(\sigma) d\sigma$. Le terme $\int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{I}_s(\sigma) \cos(2\pi\sigma\Delta) d\sigma$ est la transformée de Fourier de la densité spectrale $\mathcal{I}_s(\sigma)$. Ainsi, une acquisition de l'interférogramme $I(\Delta)$ et le calcul de sa transformée de Fourier nous permet de remonter à la densité spectrale.

Afin d'illustrer ce principe, mais aussi pour calibrer notre montage, nous présentons sur la figure 5.4 un exemple de spectre et d'interférogramme réalisés sur une cavité H1 présentant une forte levée de dégénérescence du mode dipolaire. Le spectre de la figure 5.4 (haut) représente les deux modes non-dégénérés de polarisation linéaire orthogonale. La mesure se fait à 45° des deux modes. Sur ce spectre, on mesure une largeur de mode à mi-hauteur $\delta\lambda = 1.82$ nm, pour un écart entre mode de $\delta\lambda^{split} = 3.5$ nm. L'analyse de l'interférogramme nous permet également de retrouver le facteur de qualité de la cavité ainsi que la valeur de l'écart en longueur d'onde entre les modes dipolaires de polarisation croisée. En effet, la densité spectrale est alors la somme de deux Lorentziennes, séparée par $\delta\lambda_{split}$. L'interférogramme doit alors s'écrire :

$$I(\Delta) \propto 1 + e^{-\pi|\Delta|\Delta\sigma} \cos\left(2\pi\frac{\sigma_1 + \sigma_2}{2}\Delta\right) \cos\left(2\pi\frac{\sigma_1 - \sigma_2}{2}\Delta\right) \quad (5.24)$$

avec σ_i le nombre d'onde de chaque mode ($\delta\lambda^{split} = 1/\sigma_2 - 1/\sigma_1$), et $\Delta\sigma$ leur largeur spectrale, directement reliée au facteur de qualité par la formule $\sigma/\Delta\sigma = Q$. On trouve alors des valeurs très proches que précédemment : $\delta\lambda = 1.85$ nm et $\delta\lambda = 3.47$ nm.

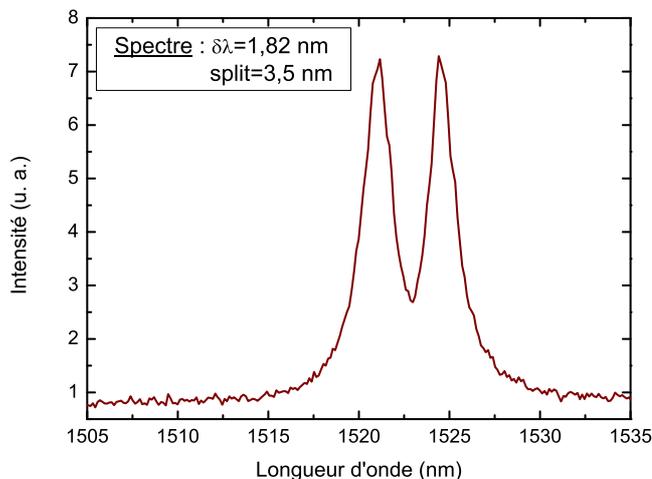
Enfin, afin de calibrer notre montage, nous avons alimenté notre interféromètre par la lumière issue d'un laser He-Ne stabilisé en fréquence. Ce type de laser possède une très grande longueur de cohérence (plusieurs mètres). On vérifie ainsi sur l'interférogramme de la figure 5.5 que la visibilité de l'interférogramme reste constante sur toute la distance correspondant au déplacement de la platine, soit 20 cm (la différence de marche correspondante valant 40 cm).

5.3.3 Mesures expérimentales

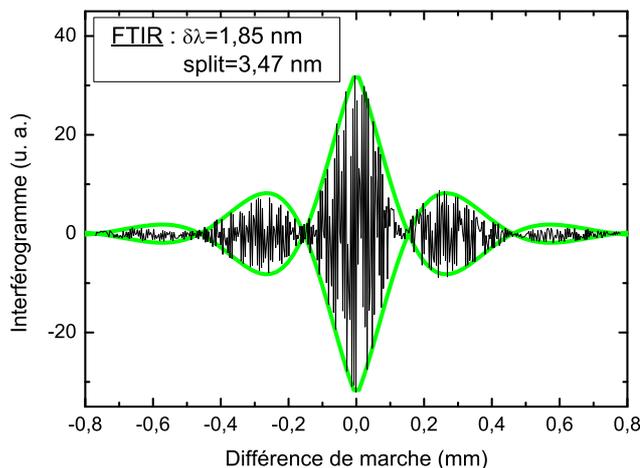
Les mesures suivantes sont faites sous excitation continue (532 nm). Les interférogrammes sont enregistrés à plusieurs puissances de pompe. On vérifie sur l'interférogramme que les modes ont un profil lorentzien. En pratique, on calcule le logarithme de la visibilité de l'interférogramme que l'on ajuste par une droite (voir figure 5.6). Le coefficient directeur de cette droite nous permet de remonter à la largeur spectrale du mode. En effet, pour un profil lorentzien, on a :

$$I(\Delta) = I_0(1 + e^{-\pi(|\Delta|\Delta\sigma)} \cos 2\pi\sigma_0\Delta) \quad (5.25)$$

Nous avons représenté sur la figure 5.7 l'ensemble des mesures en fonction de la puissance de pompe. Dans un premier temps, la largeur du mode diminue lorsque la puissance augmente. On sature de plus en plus les émetteurs et l'absorption de ces derniers diminue, d'où



a)



b)

FIG. 5.4 – (a) Spectre d'une cavité H1. On analyse la polarisation de telle manière à se placer à 45° des deux modes ; (b) Enregistrement de l'interférogramme pour la même cavité. On représente également en train plein un ajustement avec la formule 5.24. Les valeurs déduites des mesures par transformée de fourier, (b), sont en très bon accord avec les mesures directes, (a).

la diminution de la largeur de raie. Nous avons tracé sur le même graphique l'intensité intégrée du mode en fonction de la puissance de pompe. L'intensité croît dans un premier temps de manière linéaire, puis on observe un décrochement de la courbe vers $400 \mu\text{W}$. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que ce décrochement correspond à l'apparition de l'émission stimulée. Au niveau de ce décrochement, nous pouvons considérer qu'on se situe à la transparence du milieu à gain. C'est donc à cette puissance que nous pouvons extraire une largeur du mode de 34 pm . Ceci correspond à un facteur de qualité de la cavité froide de l'ordre de $Q = 44000$. La présence d'un milieu absorbant come les boîtes

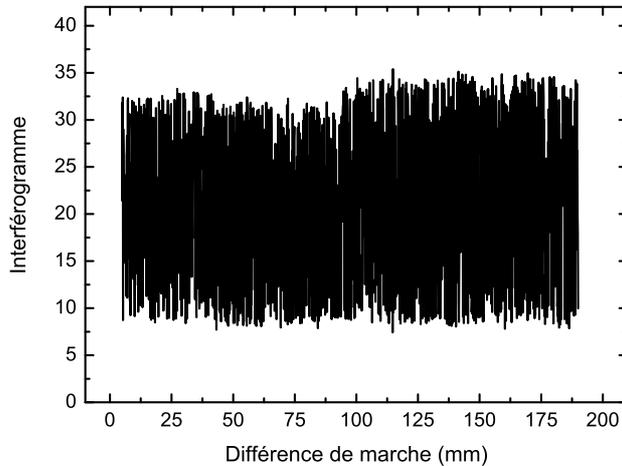


FIG. 5.5 – Interférogramme d'un laser He-Ne enregistré sur notre montage. L'amplitude des oscillations reste constante sur toute la plage d'utilisation de la platine motorisée. La visibilité $(I_{max} - I_{min})/(I_{max} + I_{min})$ reste constante à 65% sur toute la longueur de l'interférogramme.

quantiques explique² en partie la différence avec les facteurs de qualité de 10^5 observés sur GaAs sans milieu actif [127, 128]. On note que pour des puissances supérieures à $400 \mu\text{W}$, la largeur de raie continue à diminuer, conformément à la formule de Schalow-Townes. Par contre, pour des puissances supérieures à $700 \mu\text{W}$, la largeur de raie tend à augmenter. A ces puissances, nous ne pouvons pas négliger l'impact des effets thermiques dus la forte puissance d'excitation sur des objets ayant une faible capacité à évacuer la chaleur (l'interface air-semiconducteur ne présente pas un bon coefficient conducto-convectif). L'impact des effets thermiques est corroboré par un déplacement du mode sur plusieurs nm vers les hautes longueurs d'onde à partir de $500 \mu\text{W}$ sous excitation continue (voir figure 5.11). Pour des puissances plus élevées, ces effets thermiques peuvent même induire une destruction irréversible de la membrane. Nous reviendrons sur ce point dans le paragraphe 5.5.2.

5.4 Mesure de l'effet Purcell à 300 K

5.4.1 Facteur de Purcell et largeur homogène des émetteurs

Avec de tels facteurs de qualité, nous pouvons nous attendre à de forts effets Purcell. Rappelons que le facteur de Purcell F_p est directement proportionnel au rapport Q/V . Il nous reste à estimer le volume modal de ce type de cavité. Pour cela, des simulations FDTD (pour Finite Difference Time Domain) ont été réalisées au laboratoire par M. Larqué³.

²Il est en effet difficile de définir avec certitude la puissance correspondant à la saturation du milieu à gain

³Pour plus de détails sur la méthode de calcul FDTD, le lecteur peut se reporter à ses travaux de thèse [117]

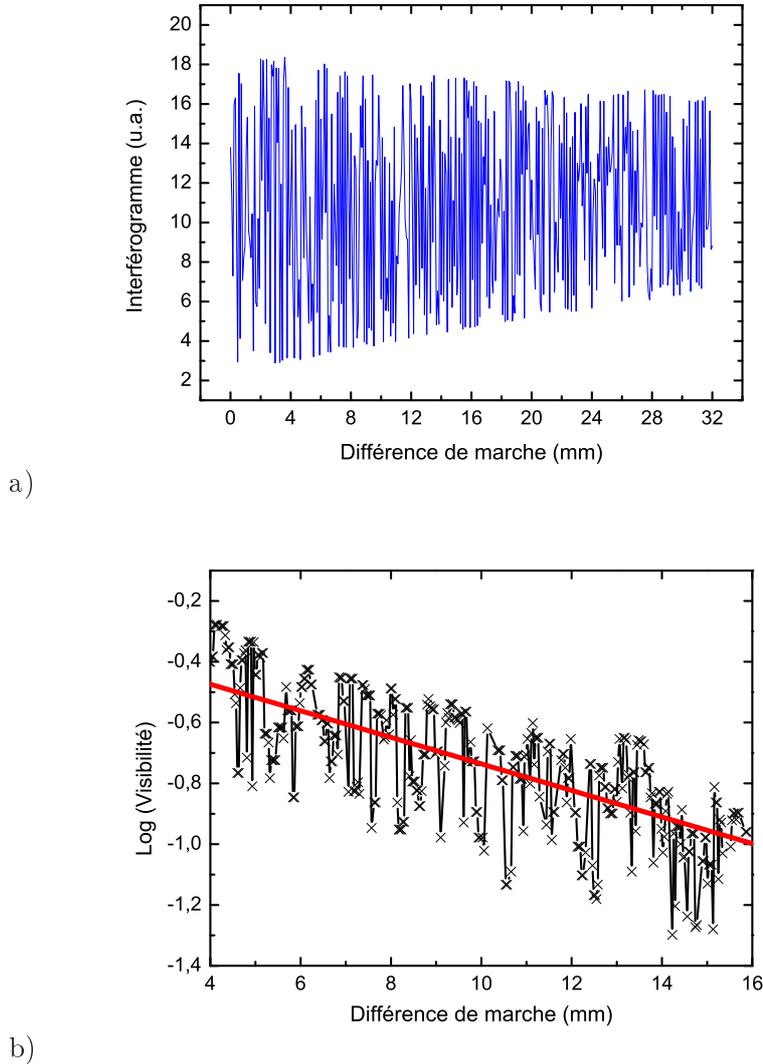


FIG. 5.6 – (a) Tracé de l'interférogramme pour une cavité à 'double hétérostructure' (on enregistre seulement la moitié de l'interférogramme, correspondant à des différences de marche positives, pour limiter la durée des acquisitions); (b) Logarithme du contraste de l'interférogramme (a). On représente en trait plein un ajustement linéaire de ce tracé.

Ces simulations sont faites à partir des photos des cavités prises au microscope électronique à balayage afin de prendre en compte la majeure partie des défauts de fabrication (irrégularités dans la forme et taille des trous, irrégularités dans la période). Les résultats donnent un volume modal de $1.2 (\lambda/n)^3$. En utilisant la formule 4.17, on s'attend donc à un facteur d'accélération de l'émission spontanée F de l'ordre de 2750, pour des dipôles en résonance spatiale et spectrale avec le mode spectral et colinéaire au champ électrique.

Nous verrons dans ce paragraphe que la valeur mesurée diffère de la valeur théorique de plusieurs ordres de grandeur. Ceci provient notamment du désaccord spatial et spectral des émetteurs par rapport à la cavité. De plus, le facteur de Purcell F_p est limité si la

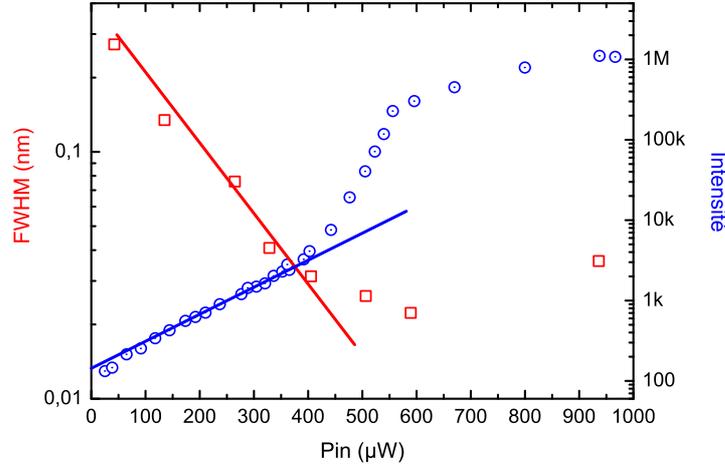


FIG. 5.7 – Evolution de la largeur spectrale du mode en fonction de la puissance d'excitation (carré). On représente également l'intensité collectée en fonction de la puissance de pompe (rond). Les droites représentées servent de repère visuel.

largeur spectrale $\delta\lambda_{em}$ de l'émetteur est plus grande que celle de la cavité : Si on introduit le facteur de qualité équivalent à l'émetteur Q_{em} , l'amplification de l'émission spontanée F s'écrit :

$$F = \frac{1}{2} \frac{\int_S |\vec{E}(x, y)|^4 dx dy}{|\vec{E}(x, y)|^2 \int_S |\vec{E}(x, y)|^2 dx dy} F_p \quad (5.26)$$

en notant S la surface du mode de la cavité et avec

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q_{em}(\lambda/n)^3}{V_{eff}} \quad (5.27)$$

Le premier terme $1/2$ dans l'expression de F résulte de l'orientation aléatoire des dipôles dans le plan de la cavité et le deuxième prend en compte la distribution spatiale aléatoire des dipôles dans la cavité. Ce terme est estimé à 0.17 par des calculs FDTD. Le dernier terme F_p est le facteur de Purcell maximum obtenu avec un dipôle unique résonnant en parfaite résonnance avec la cavité et spatialement accordé avec le mode. Par conséquent, en prenant un volume effectif V_{eff} de $1.2(\lambda/n)^3$, on obtient : $F = Q_{em}/186$. Comme la valeur de Q_{em} n'est pas mesurable à 300 K ⁴, nous pourrions la déduire de la mesure de F .

5.4.2 Mesure du taux d'accélération d'émission spontanée

Pour mesurer le facteur d'accélération de l'émission spontanée, nous nous sommes placés à des puissances correspondant à la transparence des boîtes, soit 18 μW en excitation pulsée (800 nm). Nous avons ensuite mesuré la durée de vie respectivement hors

⁴dès 60 K, nous avons vu au chapitre 3 qu'il est impossible d'extraire une largeur à mi-hauteur d'une boîte unique

et en résonance avec la cavité. Les mesures hors résonance sont faites sur une partie de l'échantillon non-traité. On observe une nette accélération de l'émission spontanée lorsque l'on se place à résonance avec la cavité (voir figure 5.8).

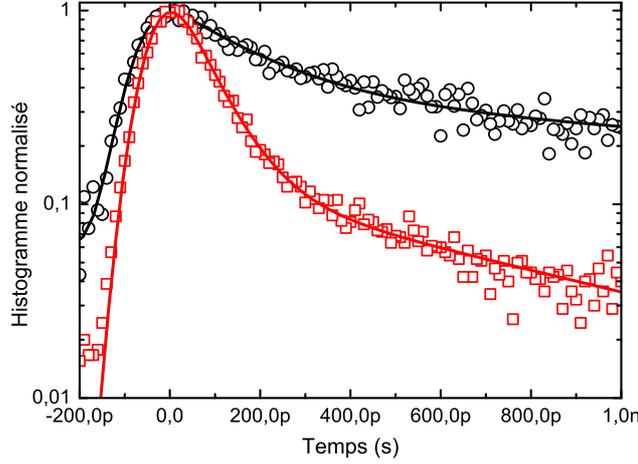


FIG. 5.8 – Histogrammes de durée de vie hors de la cavité (sur un ensemble de boîtes quantiques) à 1538 nm (cercle), et en résonance avec la cavité (carré)

Dans les deux cas (pour des boîtes en et hors résonance), on retrouve une durée de vie bi-exponentielle déjà mentionnée au chapitre 2. Notons τ_j^i les durées de vie, où $i = l, c$ désigne les temps longs et courts respectivement et $j = 0$ ou cav désigne les temps mesurés hors cavité et en résonance respectivement. De la même façon qu'au chapitre 2, les courbes sont ajustées par la formule suivante, qui prend en compte la réponse des détecteurs :

$$I(t) = \sum_{i=l,c} a_i e^{(\sigma^2/2(\tau_j^i)^2)-t/\tau_j^i} (1 - \text{Erf}(\frac{\sigma^2 - t\tau_j^i}{\sqrt{2}\sigma\tau_j^i})) \quad (5.28)$$

avec σ la largeur temporelle de la réponse du système de mesure (70 ps). Les amplitudes a_i sont des paramètres ajustables ainsi que τ_j^i . Les valeurs de τ_j^i sont regroupées dans le tableau 5.9.

Le rapport des temps τ_{cav}^i/τ_0^i nous permet de déterminer le facteur minimum d'accélération de l'émission spontanée F , qui est de l'ordre de 3. Cette mesure est la première démonstration directe d'effet Purcell sur un ensemble de boîtes InAsP émettant à 1.53 μm et à 300 K.

Pour une accélération de 2.7, on obtient, grâce à la formule 5.27, un Q_{em} de l'ordre de 500. On obtient donc une valeur de $\delta\lambda_{em}$ de l'ordre de 3 nm à 300 K. Ce résultat n'est pas en désaccord avec les mesure faites à basse température dans le chapitre 3. En effet la largeur de la boîte vaut 45 μeV à 4K (6×10^{-2} nm) et 440 μeV (0.6 nm) à 61 K. Dans l'hypothèse d'un élargissement linéaire, on trouve $\delta\lambda_{em}^{th}$ de 2.7 nm à 290 K, ce qui correspond à la déduction faites avec le facteur de Purcell.

Ces mesures sont la première démonstration d'une accélération du taux d'émission

	Hors résonance ($j = 0$) (ns)	Mode de cavité ($j = cav$) (ns)	Rapport des temps τ_{cav}^i/τ_0^i
Temps long ($i = l$)	2.14 ± 0.28	0.77 ± 0.06	2.8 ± 0.6
Temps court ($i = c$)	0.20 ± 0.02	0.07 ± 0.03	2.6 ± 0.3

FIG. 5.9 – Taux d'émission spontanée mesurés hors de la cavité et dans la cavité, à 1538 nm

spontanée sur des boîtes InAsP/InP à 1.54 μm , par mesure directe de la durée de vie. Malgré des facteurs de qualité très élevés (44000) et des volumes faibles (de l'ordre de $(\lambda/n)^3$), l'accélération reste limitée par l'élargissement homogène des boîtes quantiques à 300 K. Ces mesures démontre également que théoriquement le facteur β doit être élevé dans ce type de structures ($\beta = F/(F + \gamma)$). Les paragraphes suivant auront pour but de caractériser l'émission de ce type de laser à boîtes quantiques.

5.5 Mise en évidence d'effet laser à 300 K

Dans les commentaires de la figure 5.7, nous avons signalé que l'intensité augmentait de façon fortement non-linéaire à partir de 400 μW , sous excitation continue. Nous montrerons dans ce paragraphe que cette augmentation non-linéaire est la signature d'un effet laser. Nous montrerons que cet effet laser est également observable sous excitation impulsionnelle. Dans un premier temps, nous détaillerons les différents types de classe de laser et les impacts sur le passage du seuil. Nous tenterons d'interpréter nos mesures de corrélations en régime impulsionnel, afin d'estimer le facteur β et le type de laser que nous avons réalisé et caractérisé.

5.5.1 Classification des lasers

Dans ce paragraphe, nous allons introduire le modèle développé dans [129] par Van Druten *et al.*, et nous intéresser au calcul théorique du facteur de Fano précédemment introduit. Nous pouvons reprendre les équations 5.2 et 5.1, légèrement modifiées, en suivant le formalisme de [129]. Les deux équations couplées de l'évolution du nombre de photons n et des porteurs N s'écrivent⁵ :

$$\frac{dN}{dt} = S - \gamma_{sp}N - \beta\gamma_{sp}nN \quad (5.29)$$

$$\frac{dn}{dt} = -\Gamma_c n + \beta\gamma_{sp}nN + R_{sp} \quad (5.30)$$

⁵on ne parle plus ici de densité de photon ou de porteur

avec S le taux de pompage, $R_{sp} = N\beta\gamma_{sp}$ le taux d'émission spontanée dans le mode laser, $\Gamma_c = 1/\tau_c$ l'inverse du temps de vie des photons dans la cavité et $\gamma_{sp} = 1/\tau_{sp}$ le taux d'émission spontanée. En régime stationnaire, le nombre de porteurs N_0 et le nombre de photons n_0 sont donnés par :

$$N_0 = \frac{\Gamma_c}{\beta\gamma_{sp}} \frac{n_0}{n_0 + 1} \quad (5.31)$$

$$\frac{M}{1 + \beta n_0} = \frac{n_0}{n_0 + 1} \quad (5.32)$$

avec $M = S\beta/\Gamma_c$ le taux de pompage normalisé, correspondant à la définition classique du seuil "gain=perte". On obtient facilement que $n_0 = \beta^{-1/2}$ quand $M = 1$. La linéarisation des équations 5.30 autour du seuil ($n = n_0 + \delta n$ et $N = N_0 + \delta N$) s'écrit :

$$\dot{\delta N} = -\gamma_{sp}N_0\beta\delta n - \gamma_N\delta N \quad (5.33)$$

$$\dot{\delta n} = -\gamma_n\delta n + \beta\gamma_{sp}(n_0 + 1)\delta N \quad (5.34)$$

en introduisant $\gamma_N = \gamma_{sp}/(1 + \beta n_0)$ et $\gamma_n = \Gamma_c/(n_0 + 1)$ les taux "d'amortissement" des fluctuations du nombre de porteurs et de photons. Nous allons voir que ces deux paramètres, eux-mêmes reliés aux paramètres clés de notre système (β , γ_{sp} , Γ_c), et leur rapport permet de quantifier l'importance des fluctuations d'intensité du laser ainsi que le passage du seuil. A partir des équations 5.34, il est possible de calculer $(F_{Fano} - 1)/n_0 = g^{(2)}(0) - 1$ [129, 130] :

$$(F_{Fano} - 1)/n_0 = g^{(2)}(0) - 1 = 1 - \left(\frac{1}{1 + \frac{1+\beta n_0}{\beta n_0^2}}\right) \left(\frac{\gamma_N}{\gamma_N + \gamma_n}\right) \quad (5.35)$$

ou bien,

$$(F_{Fano} - 1)/n_0 = g^{(2)}(0) - 1 = 1 - \left(\frac{1}{1 + \frac{1+\beta n_0}{\beta n_0^2}}\right) \left(\frac{1}{1 + \frac{\Lambda}{n_0(1+\beta n_0)}}\right) \quad (5.36)$$

en introduisant le rapport $\Lambda = \frac{\Gamma_c}{\gamma_{sp}}$ et en négligeant la différence entre $n_0 + 1$ et n_0 . Le facteur Λ sert généralement à distinguer deux catégories de laser : les lasers de classe A et les lasers de classe B. Dans les lasers de classe A (la plupart des lasers à gaz), $\Lambda \ll 1$ alors que dans les lasers de classe B (lasers solides et une majorité de diodes laser) $\Lambda \gg 1$. On remarque dans l'équation 5.36, le passage d'une émission thermique ($g^{(2)}(0) = 2$) à une émission cohérente ($g^{(2)}(0) = 1$) se fait lorsque les deux termes de gauche sont proches de 1.

Dans les lasers de classe A conventionnel ($\beta \ll 1$ et $\Lambda \ll 1$), ces deux termes tendent vers 1 très vite au seuil ($n_0 = \beta^{-1/2}$). Expérimentalement, en plus du seuil très marqué sur les courbes "L-L" (pour "Light in-Light out"), la transition de la cohérence est très rapide et le facteur de Fano admet un maximum en $M = 1$ (voir figure 5.10). Dans ce régime, la cavité joue le rôle de filtre adiabatique et la cohérence du système est imposée par la cavité.

Pour les lasers de classe B et lorsque β est proche de l'unité, il faut considérer le rapport des termes Λ et β pour estimer les fluctuations au niveau du seuil. On peut introduire trois régimes distincts [131, 129] en fonction des paramètres Λ et β :

- le régime macroscopique, définit par $\beta < \Lambda^{-2}$. Dans ce régime, on retrouve les mêmes caractéristiques que pour les lasers de classe A, à savoir une transition abrupte du $g^{(2)}(0)$. La plupart des lasers semiconducteurs (de classe B) fonctionnent dans ce type de régime.
- le régime microscopique, définit par $\beta > \Lambda^{-1}$, où les fluctuations d'intensité deviennent non négligeables même après le seuil. La lumière émise possède une composante thermique, et ce après le seuil $M = 1$. Sur la courbe du facteur de Fano, cela se traduit par un décalage du maximum pour une puissance de pompe $M > 1$ (voir figure 5.10).
- le régime mésoscopique, avec $\Lambda^{-2} < \beta < \Lambda^{-1}$ qui est une zone intermédiaire à celles définies ci-dessus. Dans cette région, le maximum du facteur de Fano se retrouve également pour $M > 1$ mais présente une largeur moindre que dans le régime microscopique.

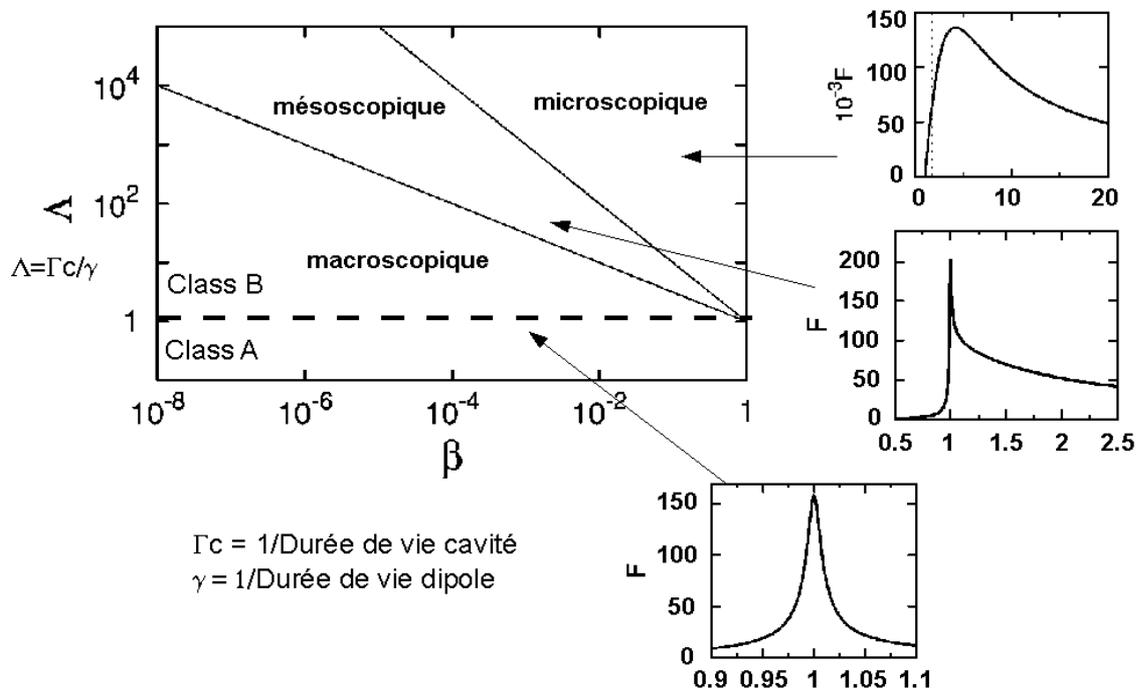


FIG. 5.10 – Différentes classes (A et B) et régime (macroscopique, mésoscopique et microscopique) des lasers en fonction des paramètres β et Λ

Compte tenu de nos estimations, qui se base sur de précédents travaux sur GaAs [9], le facteur β de nos structures devrait être de l'ordre de quelque 10^{-1} . De plus, $\Lambda^{-1} \approx 5 \times 10^{-1}$ pour les temps courts et $\approx 5 \times 10^{-2}$ pour les temps longs. Nous devrions donc nous situer dans le régime microscopique ou mésoscopique. Dans les deux cas, on s'attend à ce que le seuil statistique soit atteint plus tard que le seuil quantique.

Afin de caractériser expérimentalement nos lasers, nous avons procédé à des mesures en pompage continu et impulsionnel. Nous nous intéresserons à l'étude de la puissance de sortie en fonction de la puissance de pompe (courbes "L-L"), ainsi qu'aux mesures de $g^{(2)}(0)$. Après avoir normalisé les courbes "L-L", nous remonterons au facteur de Fano afin d'estimer le facteur β des lasers.

5.5.2 Courbe "L-L" ; effets thermiques et normalisation

Interressons nous dans un premier temps à l'évolution de l'intensité collectée en fonction de la puissance de pompe. Nous avons réalisé plusieurs études, à la fois en régime impulsionnel (longueur d'onde d'excitation de 840 nm, impulsions de 3-5 ps à une cadence de 80 MHz) et en continu (longueur d'onde d'excitation de 532 nm). Dans les deux cas, lorsque l'on trace la courbe d'intensité émise en fonction de la puissance d'excitation en échelle logarithmique, nous observons une courbe en forme de 'S', caractéristique du passage d'un seuil laser en régime d'un contrôle de l'émission spontanée (voir figure 5.11).

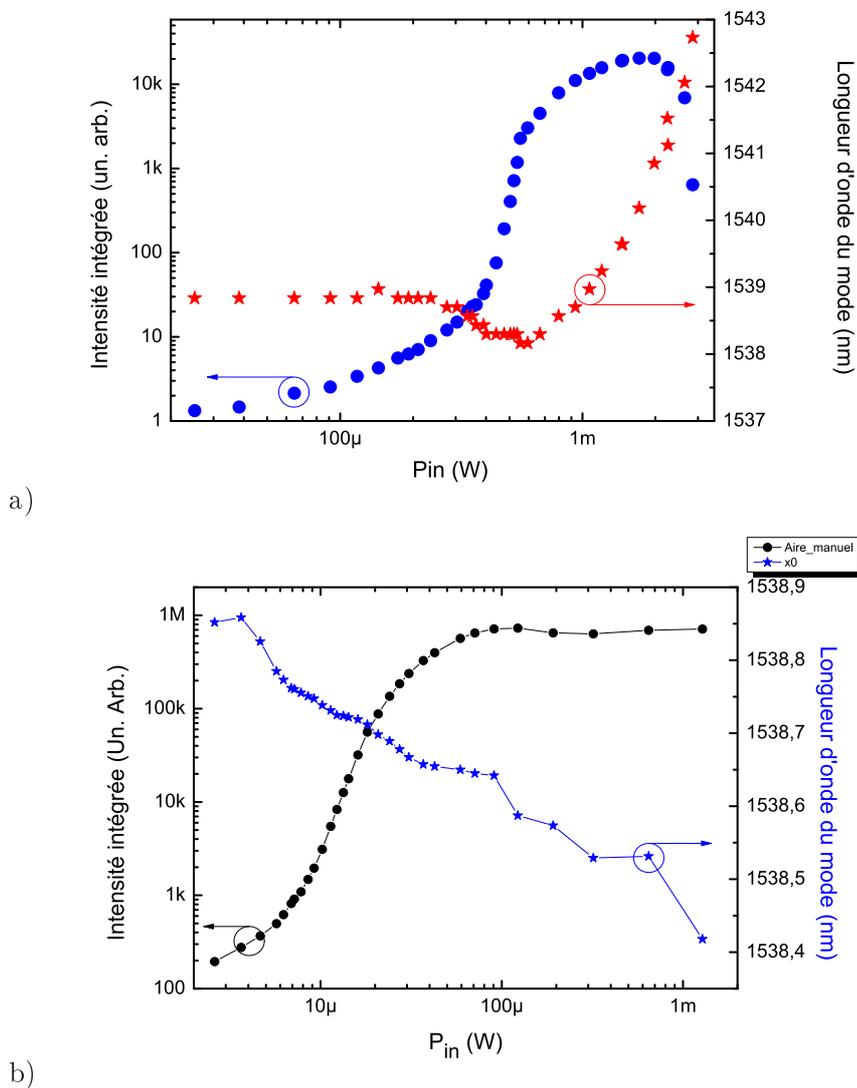


FIG. 5.11 – (a) Courbe 'LL' en échelle logarithme (carré et rond) et longueur d'onde du mode (étoile) en fonction de la puissance de pompe en régime continu (a) et impulsionnel (b)

Au delà d'une certaine puissance de pompe, l'intensité ne croit plus de façon linéaire. On passe alors en régime d'émission stimulée. Sur la courbe 5.11 (a), en régime continu, on observe une saturation et une diminution de l'intensité vers une puissance d'excitation de 1.5 mW. Nous attribuons cette saturation et cette diminution de l'intensité à la saturation du gain et à l'apparition de pertes induites par des effets thermiques. Afin de rendre compte de ce phénomène, analysons le comportement de la longueur d'onde du mode en fonction de la puissance de pompe.

Longueur d'onde du mode et effets thermiques

Deux phénomènes sont à l'origine du déplacement de la longueur d'onde du composant en fonction de la puissance d'excitation. En dessous du seuil, le décalage vers le bleu de la longueur d'onde (vers les faibles longueurs d'onde) de résonance provient de l'injection de porteurs. Lorsque la densité de porteur augmente, et c'est ce qu'il arrive sous le seuil, l'indice optique du matériaux est légèrement modifié, induisant un décalage vers le bleu [124]. Au passage du seuil ($P^{th}=2.4 \text{ kW.cm}^2$ en sortie d'objectif), nous observons une nette translation du mode vers le rouge, qui devient non-linéaire à forte puissance. Ce phénomène a été observé à plusieurs reprises (voir par exemple [132]) et est attribué à l'échauffement de la membrane. Cet échauffement provoque une déformation de la membrane et une augmentation des pertes de la cavité par diffraction. L'intensité collectée sature puis chute. Si nous continuons à augmenter la puissance de pompe, il est possible de détruire la membrane⁶.

Lorsque l'excitation est réalisée en régime impulsionnel, on observe le même comportement non linéaire sur la courbe "L-L". Concernant la variation de la longueur d'onde du mode, nous observons seulement un décalage vers le bleu. Compte tenu de la longueur d'onde d'excitation et du taux de répétition du laser impulsionnel de pompe, l'échauffement thermique est moins important. Nous n'observons donc pas de déplacement du mode vers les hautes longueurs d'onde. De plus on observe une saturation de l'intensité mais jamais de diminution, et ce même à une puissance dix fois supérieure à la puissance de seuil. Cette saturation est atteinte lorsque tous les émetteurs sont saturés de porteurs. Afin de se rendre compte du passage du seuil, nous avons également représenté sur la figure 5.12 l'intensité en échelle linéaire. On voit très nettement la présence d'un seuil vers 10 μW , suivie d'une augmentation fortement non-linéaire de l'intensité de sortie.

Rapport signal/bruit

Enfin, on notera que les rapports signal à bruit en régime impulsionnel et continu sont de l'ordre de 30 dB (voir figure 5.13). Les boîtes situées hors-résonance avec le mode sont complètement inhibées. En régime continu, la puissance collectée au niveau de la caméra InGaAs est de l'ordre du nanowatt.

⁶on évapore littéralement la membrane au niveau du spot laser d'excitation

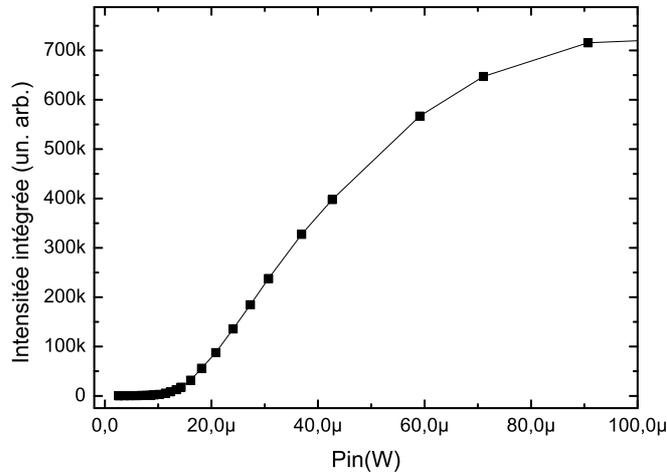


FIG. 5.12 – Courbe 'LL' en régime impulsionnel en échelle linéaire

Puissance au seuil et normalisation des courbes "L-L"

En régime continu, la puissance de seuil est mesurée à 500 μW au niveau de la sortie de l'objectif, juste avant l'échantillon. Compte tenu de la taille du spot laser (5 μm), de la réflexion à la surface de l'échantillon et du facteur de remplissage (20% de la lumière incidente [57]), la puissance réelle seuil vaut environ 490 W/cm^2 sous excitation continue. La puissance collectée sur la caméra InGaAs est de l'ordre de 100 nW.

En régime impulsionnel, la puissance de seuil moyenne mesurée en sortie d'objectif est de 13 μW . Ceci équivaut à une énergie par pulse de 0.16 fJ sur la taille du spot. Ceci correspond à une énergie par pulse et par unité de surface de 161 $\text{nJ}\cdot\text{cm}^2$, en prenant en compte le facteur 20% défini précédemment.

Afin de caractériser le seuil de notre laser du point de vue quantique, nous devons estimer le nombre moyen de photons dans la cavité (voir paragraphe 5.1.3). Considérons que la puissance de seuil P_{tr} correspond au point d'inflexion de la courbe "L-L", soit $P_{tr} = 13\mu\text{W}$. Soit $\langle N \rangle$ le nombre moyen de photons détectés par impulsion. Afin d'estimer le nombre moyen de photons dans la cavité par impulsion \bar{n} , introduisons le taux d'efficacité total de collection η . Ce taux est en réalité le produit de quatre termes :

$$\eta = \eta_{cav}\eta_{opt}\eta_{spec}\eta_{cam} \quad (5.37)$$

avec

- η_{cav} la fraction de photons de la cavité qui sont effectivement collectés par l'objectif de microscope. Cette fraction est déduite de simulations FDTD, qui permettent de remonter au diagramme d'émission de la cavité. Cette fraction vaut $\eta_{cav} = 0.004$. Cette valeur est, comme attendu, relativement faible car la majeure partie de l'émission se fait dans le plan du guide
- η_{opt} le taux de transmission du montage d'optique entre l'objectif et le spectro-

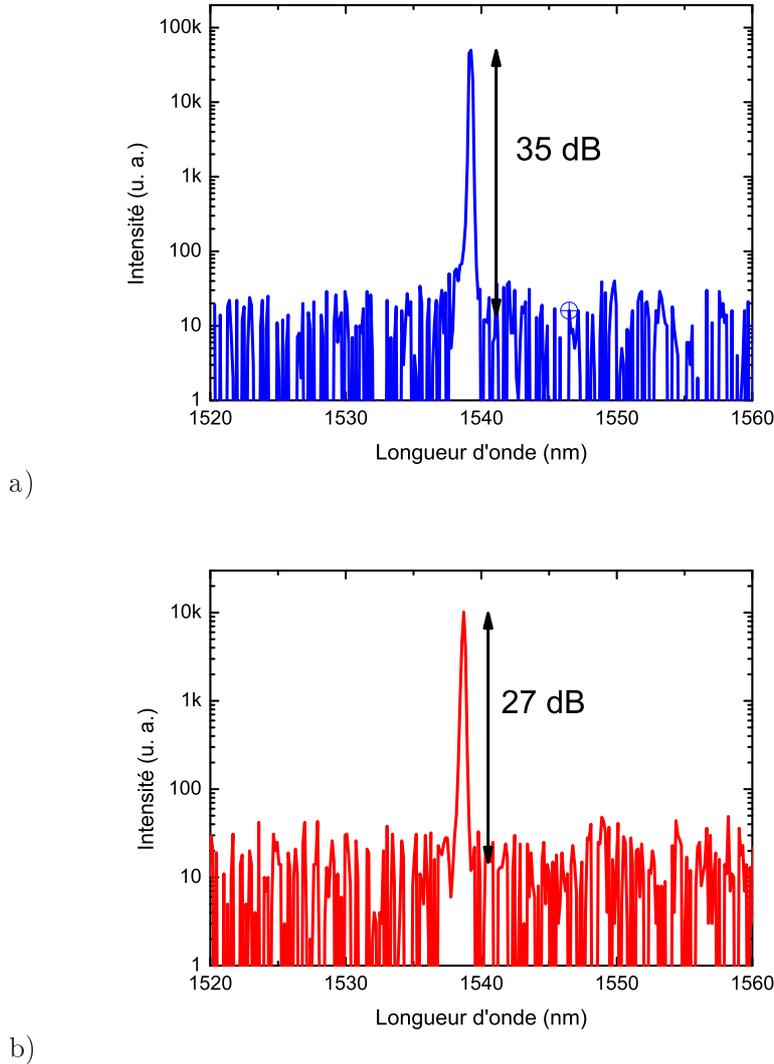


FIG. 5.13 – Spectres du laser à cristal photonique sous excitation continue (a) et pulsée (b), à des puissances de pompe deux (a) et trois (b) fois supérieures au seuil.

- mètre. Ce taux est mesuré grâce à une diode laser à $1.55 \mu\text{m}$ et vaut : $\eta_{opt} = 0.7$
- η_{spec} la transmission du spectromètre à $1.55 \mu\text{m}$, mesuré à : $\eta_{spec} = 0.7$
 - η_{cam} l'efficacité quantique de la caméra InGaAs, indiqué par le fabricant : $\eta_{cam} = 0.8$

Ainsi, on estime le facteur η à environ 1.568×10^{-3} . Ceci nous permet de tracer le nombre de photons dans la cavité en fonction de la puissance normalisée à P_{tr} (figure 5.14). On remarque qu'à P_{tr} , le nombre de photon dans la cavité vaut approximativement 1. Au sens quantique, P_{tr} est bien la puissance de seuil du laser⁷. Sur la courbe 5.1, on voit que pour des β de l'ordre quelque 10^{-1} , la définition quantique $\langle n \rangle = 1$ équivaut encore à la

⁷On estime que la barre d'erreur sur le nombre de photon dans la cavité est de l'ordre de 20 %. Cette erreur provient essentiellement du facteur η_{cav} , les autres facteurs étant mesuré avec une meilleure précision.

définition "gain=perte". Ce n'est que pour des β très proche de 1 que ces deux définitions diffèrent.

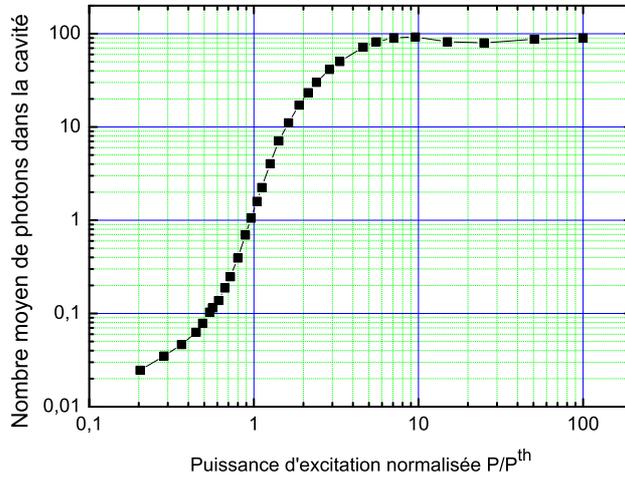


FIG. 5.14 – (Nombre moyen de photon dans la cavité en fonction de la puissance normalisée.

5.5.3 Mesures de corrélations et estimation de β

Dans cette partie, nous allons comparer la valeur P_{tr} , déterminée précédemment, à la valeur P_{stat} , correspondant au seuil statistique donné par le maximum du facteur de Fano (voir paragraphe 5.1.3). Le facteur de Fano se déduit des mesures de corrélations (en particulier la mesure de $g^{(2)}(0)$) que nous allons détailler.

Le dispositif expérimental est le même que celui utilisé au chapitre 3 pour les mesures de corrélations sur boîte unique, à la différence que le signal est filtré spectralement par l'intermédiaire d'un filtre accordable fibré (Santec) avec une bande passante de 0.4 nm et un facteur d'extinction de 20 dB. Un exemple de mesure est donné sur la figure 5.15 et l'ensemble des valeurs de $g^{(2)}(0)$ est regroupé sur la figure 5.16. Compte tenu du faible nombre de photons détectés sous le seuil, nous n'avons pas été en mesure de déduire expérimentalement $g^{(2)}(0)$ pour des puissances d'excitations inférieures à $0.9P_{tr}$. Au niveau du seuil, la valeur de $g^{(2)}(0)$ est largement supérieure à 1 et atteint 1.6 à P_{tr} . Nous mettons ainsi en évidence le caractère thermique (chaotique) de la lumière émise. La fonction d'autocorrélation à délai nul décroît ensuite **lentement** vers une valeur proche de 1, caractéristique d'une émission cohérente (statistique Poissonienne). La transition du régime chaotique vers un régime d'émission cohérente se fait sur une échelle de puissance d'excitation d'environ une décade.

Ces observations corroborent les hypothèses selon lesquelles ce type de laser possède un facteur β relativement élevé par rapport aux lasers conventionnels. Une façon courante d'estimer le facteur β (voir par exemple [133]) consiste à utiliser les équations d'évolution

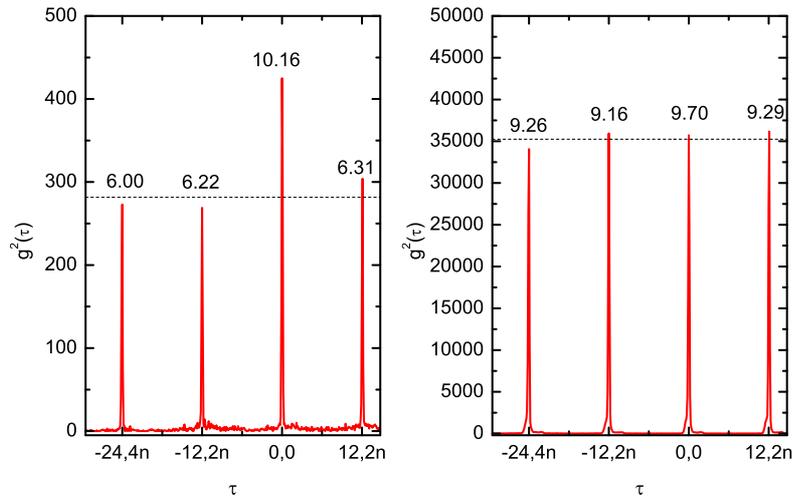


FIG. 5.15 – Exemple de mesures d'autocorrélation, au niveau du seuil, $P = P^{\text{th}}$ (gauche) et à 10 fois le seuil, $P = 10P^{\text{th}}$ (droite). On a également représenté les aires intégrées des pics (à un facteur 10^{-8} (gauche) et 10^{-6} (droite) près).

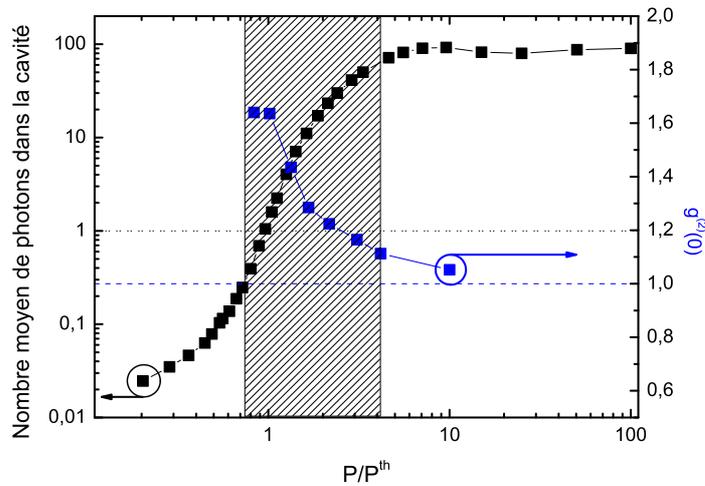


FIG. 5.16 – $g^{(0)}(0)$ et intensité intégrée en fonction de la puissance normalisée. Notons sur cette figure que $g^{(0)}(0)$ reste supérieur à 1 bien au delà de $P=P^{\text{th}}$

en fonction de la puissance de pompe (courbes 'L-L') et d'ajuster ces courbes avec des modèles théoriques. Or, le nombre de paramètres à fixer est trop important. Nous avons tenté d'ajuster nos courbes avec cette technique mais deux ajustements avec deux jeux de paramètres donnent des valeurs de β très différentes. Une autre manière d'estimer le facteur β est d'utiliser le facteur de Fano.

Calcul du facteur de Fano, estimation du facteur β

Observations On représente la courbe du facteur de Fano sur la figure 5.17 en utilisant la formule 5.15 et la normalisation effectuée au paragraphe précédent en extrapolant les points de la courbe 'L-L'. Le facteur de Fano augmente à partir de P^{seuil} et atteint son maximum pour une puissance $P_{Fano}^{max} \approx 3P^{th}$. **Le comportement est proche de celui décrit dans les courbes théoriques de la figure 5.10 pour le régime microscopique. Alors que l'intensité croît de manière non-linéaire à partir de P^{th} , la fraction d'émission spontanée reste non négligeable, et la transition vers un régime d'émission cohérente n'est toujours pas atteinte.** Cette observation est le point essentiel de ce paragraphe car c'est la signature d'un régime de type microscopique et donc d'un facteur β élevé (>0.1). L'analyse des courbes de Fano va nous donner un moyen d'estimer ce facteur.

Analyse des résultats Rappelons que pour des lasers standards, le passage du seuil se traduit par un pic étroit sur la courbe de Fano au niveau du seuil à une puissance notée P_{seuil}^{Fano} . Pour des lasers de classe A, les deux seuils définis précédemment coïncident : $P_{seuil} = P_{seuil}^{Fano}$. Pour les lasers de classe B ($\Lambda \gg 1$) fonctionnant en régime microscopique ou mésoscopique, les deux définitions du seuil ne coïncident plus. Dans notre cas, on trouve $P_{seuil}^{Fano} \cong 3.17P_{seuil}$.

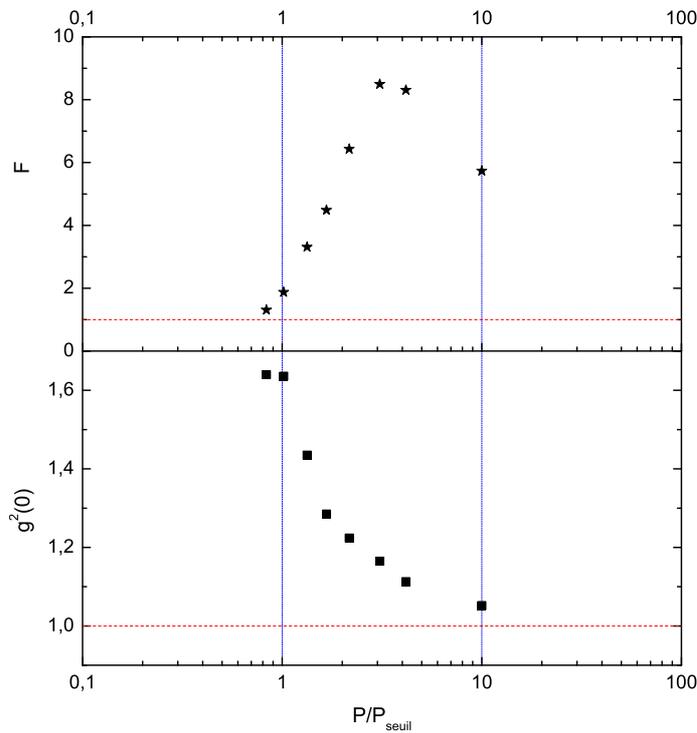


FIG. 5.17 – (haut) Facteur de Fano en fonction de la puissance d'excitation ;(bas) Auto-corrélation à délai nul en fonction de la puissance de pompe.

Dans [129], les auteurs relient la différence entre P_{seuil} et P_{seuil}^{Fano} au facteur β par la formule :

$$\frac{P_{seuil}^{Fano}}{P_{seuil}} = 1 + \sqrt{\Lambda\beta} \quad (5.38)$$

Cette formule est valable dans un régime mésoscopique et microscopique. La durée de vie du photon dans la cavité peut être déduite des mesures faites au paragraphe précédent. En effet, on a :

$$\Gamma_c = 1/\tau_c = \omega/Q \quad (5.39)$$

avec $Q = 44000$, on trouve $\tau_c \approx 36\text{ps}$. Nous avons également mesuré $\gamma_{sp}^{-1} = 700\text{ps}$ (pour les temps longs). Le laser se situe bien dans la classe B ($\tau_{sp} > \tau_c$). En insérant ces résultats dans l'équation 5.38, on trouve :

$$\beta = 0.20 \quad (5.40)$$

Si on considère les temps courts des émetteurs, alors Λ est proche de 1 et le modèle extrait de [129] n'est plus valable. Néanmoins, l'évolution de la courbe de Fano (maximum du facteur de Fano pour une puissance $P > P^{th}$) laisse supposer que le laser évolue dans une zone frontière entre le microscopique et le mésoscopique avec un β proche de 0.1.

5.5.4 Interprétation des résultats, modélisation de la transition laser

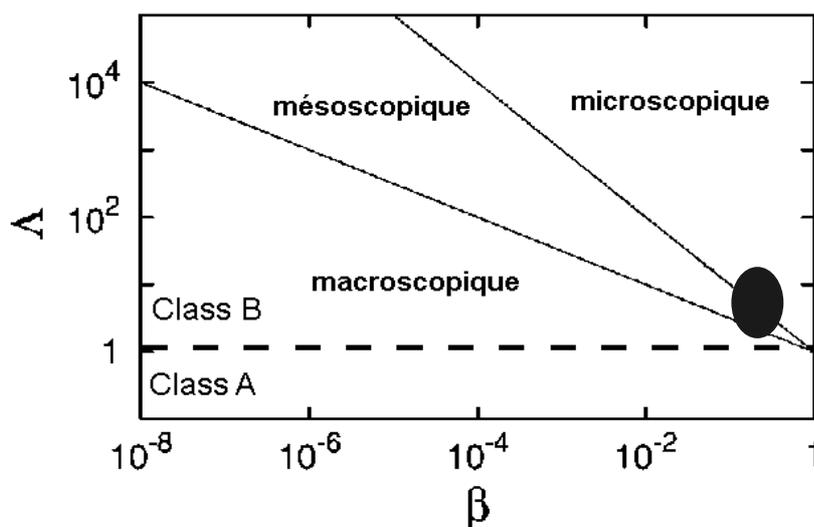
A partir du facteur β , nous pouvons également remonter à la valeur F_{max} maximale du facteur de Fano qui est définie par deux formules suivantes, [129], en fonction du régime mésoscopique ou microscopique (tout en considérant les temps longs pour les émetteurs) :

$$F_{max-meso} \approx \Lambda F_{max-micro} = \sqrt{\frac{\Lambda}{4\beta}} \quad (5.41)$$

Considérons dans un premier temps les temps longs des émetteurs. Alors $\Lambda \gg 1$. D'après [129], si on suppose un régime mésoscopique, on trouve une valeur théorique de $F_{max-meso}^{th} = 19$. Par contre, dans un régime microscopique, on trouve $F_{max-micro}^{th} \approx 5$. Or expérimentalement nous trouvons $F_{max}^{exp} = 8.48$. On se trouve donc dans un régime intermédiaire. Sur la figure 5.18, nous avons représenté en noir la zone dans laquelle notre laser devrait se trouver. Compte tenu des incertitudes sur l'estimation du nombre de photons dans le mode de cavité, on ne peut pas conclure avec certitude du régime dans lequel évolue notre laser, que l'on considère les temps longs et courts pour les émetteurs. Par contre, il paraît évident que le comportement proche du seuil relève de la présence de fluctuations quantiques du champ.

5.5.5 Bilan sur l'étude des caractéristiques de l'émission laser

A partir de l'étude de la fonction d'autocorrélation d'ordre deux $g^{(2)}(0)$ et du facteur de Fano, nous avons pu mettre en évidence le caractère singulier des lasers à boîtes quantiques InAsP/InP à base de cristaux photoniques. L'établissement du régime cohérent ne suit pas la même physique que dans les lasers conventionnels à faible β , et les théories usuelles d'établissement du régime cohérent ne sont plus valides. D'un point de

FIG. 5.18 – *En noir* : régime de fonctionnement du nanolaser

vue purement quantique, il serait intéressant d'étudier plus en détail cette transition. Plus particulièrement, si l'on part d'un état nombre à un photon (le premier photon émis dans la cavité), comment l'état cohérent se construit-il? À quel moment le régime dominé par l'émission spontanée devient-il cohérent? Les lasers à boîtes quantiques à base de cristaux photoniques offrent un bon moyen d'étude pour résoudre cette problématique. On peut facilement en modifiant les paramètres du cristal faire varier β (on modifie principalement le facteur de qualité), et donc étudier précisément son impact sur le seuil laser.

5.6 Conclusion et perspectives

Hormis la démonstration pratique d'un laser à boîtes quantiques émettant à 1.5 μm à température ambiante, nous avons démontré dans ce chapitre que la physique même de ces lasers diffère de la physique des lasers conventionnels. Ces lasers présentent de faibles puissances de seuil, en régime continu et impulsif. Il a été démontré qu'avec des boîtes quantiques InAs/GaAs, on pouvait atteindre de grande bande passante de modulation directe et un temps d'allumage réduit. Dans notre cas, nous n'avons pas été en mesure de mesurer expérimentalement la dynamique de ces lasers à cause de la résolution temporelle de notre montage (100 ps) (voir figure 5.19). Concernant les développements futurs, on peut imaginer de réaliser des lasers pompés électriquement et de développer des techniques de couplage par fibre optique pour augmenter ainsi la collection. Enfin, concernant la physique même de ces lasers, une nouvelle approche au niveau théorique et une étude expérimentale de l'influence des paramètres de cavité sur le facteur β permettraient une compréhension plus fine de la transition laser. Au delà des premiers résultats présentés dans ce mémoire, les travaux sur ces lasers se poursuivent au sein du LPN. Les études envisagées concernent l'étude du bruit de ces lasers et l'étude de l'impact des paramètres géométriques des cavités sur le facteur β et sur la physique du passage du seuil laser par rapport aux lasers conventionnels.

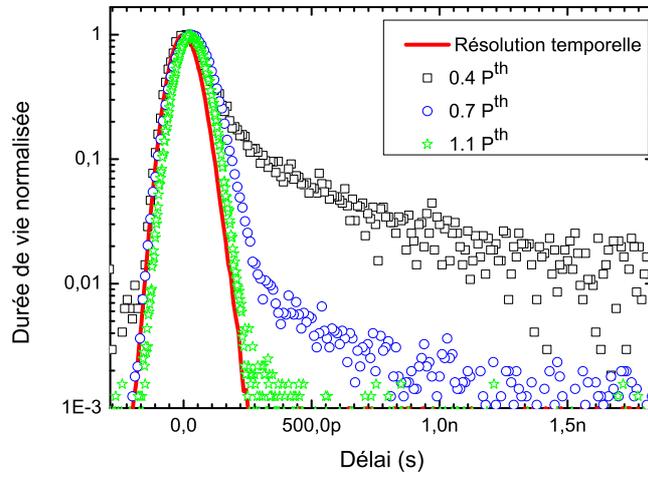


FIG. 5.19 – Mesure de durée de vie du pulse pour différentes puissances de pompe (0.4 , 0.7 et $1.1 \times P^{\text{th}}$). Au niveau du seuil, le mesure est déjà limitée par la résolution de notre montage (trait plein)

Conclusions et perspectives

L'objectif de ces travaux de thèse était l'étude des propriétés optiques des boîtes quantiques InAsP/InP obtenues par Epitaxie en Phase Vapeur aux OrganoMétalliques. L'application visée était la réalisation d'une source de photons uniques émettant à $1.5 \mu\text{m}$ pour une utilisation en cryptographie quantique. Pour cela, j'ai monté et développé un montage expérimental de micro-photoluminescence afin d'étudier les propriétés de boîtes uniques. Mon travail au laboratoire s'est fait en étroite collaboration avec les équipes d'épitaxie, les équipes de caractérisation structurale ainsi que les technologues en salle blanche pour la réalisation des structures nanométriques : mésas et cavités à cristaux photoniques.

L'étude d'un ensemble de boîtes quantiques en fonction de la température a permis de mettre en évidence la faible diminution de l'intensité totale intégrée à température ambiante. Les mesures de durées de vie indiquent que les porteurs de charges, une fois capturés dans la boîte, sont peu sensibles à l'échappement thermique hors de la boîte et à d'éventuels défauts non radiatifs thermiquement activés. Par conséquent, ces observations laissent envisager d'utiliser ces boîtes quantiques dans une source de photons uniques fonctionnant vers 77 K (température de l'azote liquide). D'autre part, ces boîtes quantiques sont de bonnes candidates pour la réalisation de milieu à gain pour des lasers à cristaux photoniques émettant à $1.5 \mu\text{m}$ et pouvant fonctionner à température ambiante.

Le dégroupement de photons, obtenu sur une boîte quantique unique émettant à $1.3 \mu\text{m}$, à 4 K, indique que les boîtes quantiques auto-organisées d'InAsP/InP peuvent en principe être utilisées pour la réalisation d'une source de photons uniques. Néanmoins, il reste encore des barrières technologiques à franchir pour réaliser une source de photons uniques compétitive et utilisable dans un réseau fibré de communications. Concernant la longueur d'onde d'émission, nous n'avons pas été en mesure d'isoler correctement une boîte quantique unique émettant à $1.5 \mu\text{m}$. Les mesures de dynamique effectuées sur les objets émettant à $1.5 \mu\text{m}$ démontrent pourtant un phénomène de cascade radiative, ce qui laisse envisager qu'il s'agit bien d'émetteurs de photons uniques. Pour la réalisation pratique d'une source de photons uniques, nous avons vu qu'il était nécessaire de modifier l'environnement électromagnétique de la boîte quantique. L'insertion de ces boîtes dans des cavités à cristaux photoniques permet à la fois d'accélérer la dynamique d'émission et de diriger l'émission vers un mode particulier, adapté à la collection des photons ainsi produits. L'accord spatial et spectral entre la cavité et les boîtes quantiques auto-organisées reste à l'heure actuelle le problème majeur. La croissance localisée de boîtes InAsP/InP permet-

trait de palier à ce désaccord. Des efforts technologiques sont développés au laboratoire pour comprendre et contrôler finement la croissance des boîtes InAs dans des nano-ouvertures. L'enjeu de ce contrôle est important car il constitue la dernière brique avant la réalisation de composants innovants pour l'optoélectronique. Les applications sont nombreuses : réalisation de sources de photons uniques, sources de photons indiscernables, ou même intriqués. On pourrait également contrôler le couplage entre la boîte et la cavité et passer entre un régime de couplage fort ou faible. On pourrait également imaginer des configurations exotiques où l'on place de façon contrôlée deux boîtes accordées sur la même cavité et étudier leurs interactions.

Dans le dernier chapitre de ce mémoire, nous avons pu mettre en évidence un effet laser à température ambiante, en utilisant les boîtes quantiques InAsP/InP, insérées dans une cavité à cristal photonique de faible volume modal et de fort facteur de qualité. Hormis l'intérêt de ce type de lasers pour des applications en optoélectronique, ces lasers à fort taux de couplage de l'émission spontanée dans le mode laser présentent des propriétés physiques singulières : l'établissement de l'état cohérent, caractéristique d'un laser, ne suit pas le schéma des lasers conventionnels. De nouveaux modèles sont nécessaires pour caractériser l'état quantique en sortie du laser en fonction des paramètres de cavité. Expérimentalement, on peut envisager d'améliorer la collection du signal émis en couplant par exemple la cavité avec une fibre optique par ondes évanescentes. La dynamique de ces lasers, comme le temps d'établissement du mode et la bande de modulation directe, présente également un enjeu dans les expériences futures.

En conclusion, ces travaux de thèse ont apporté une connaissance supplémentaire sur les propriétés optiques fondamentales de boîtes auto-organisées d'InAsP/InP. Les données acquises serviront à la compréhension d'objets nouveaux comme les boîtes localisées. Ces dernières peuvent constituer la base pour des sources innovantes d'états quantiques dans le domaine de l'information quantique. Enfin, l'étude des nanolasers à fort β offre un outil de choix pour la compréhension fine de l'établissement du régime laser dans des cavités contenant "peu" d'émetteurs. Par exemple, que se passerait-il dans le cas ultime d'un émetteur unique dans une cavité à fort β ?

Publications

Publications en lien avec le mémoire :

[1] Gogneau N., Le Gratiet L., Cambril E., Beaudoin G., Patriarche G., Beveratos A., Hostein R., Robert-Philip I., Marzin JY., Sagnes I.

One-step nano-selective area growth (nano-SAG) of localized InAs/InP quantum dots : First step towards single-photon source applications

Journal of Crystal Growth, 310, 3413 (2008)

[2] Michon A., Hostein R., Patriarche G., Gogneau N., Beaudoin G., Beveratos A., Robert-Philip I., Laurent S., Sauvage S., Boucaud P., Sagnes I.

Metalorganic vapor phase epitaxy of InAsP/InP(001) quantum dots for 1.55 μm applications : growth, structural and optical properties

Journal of Applied Physics, 104 (4), 043504 (2008)

[3] Hostein R., Michon A., Beaudoin G., Gogneau N., Patriarche G., Marzin JY., Robert-Philip I., Sagnes I., Beveratos A.

Time-resolved characterization of InAsP/InP quantum dots emitting in the C-band telecommunication window

Applied Physics Letters, 93, 073106 (2008)

[4] Hostein R., Braive R., Larque M., Lee KH., Talneau A., Le Gratiet L., Robert-Philip I., Sagnes I., Beveratos A.

Room temperature spontaneous emission enhancement from quantum dots in photonic crystal slab cavities in the telecommunications C band

Applied Physics Letters, 94, 123101 (2009)

[5] Hostein R., Braive R., Le Gratiet L., Talneau A., Beaudoin G., Robert-Philip I., Sagnes I., Beveratos A.

Room temperature lasing from photonic crystal nanocavities with controlled spontaneous emission

Soumis à Optics Letters (2009)

[6] Hostein R., Elvira D., Fain B., Beaudoin G., Braive R., Senellart P., Voisin P., Gogneau N., Robert-Philip I., Sagnes I., Beveratos A.
Characterization of ensemble and single InAsP/InP quantum dots as possible sources of single photons at telecommunication wavelength
Soumis à Physical Review B (2009)

Autres publications

[1] Semenova ES., Hostein R., Patriarche G., Mauguin O., Largeau L., Robert-Philip I., Beveratos A., Lemaitre A.
Metamorphic approach to single quantum dot emission at 1.55 μm on GaAs substrate
Journal of Applied Physics, 103 (10), 103533 (2008)

[2] Raineri F., Yacomotti AM., Karle TJ., Hostein R., Braive R., Beveratos A., Sagnes I., Raj R.
Dynamics of band-edge photonic crystal lasers
Optics Express, 17 (5), 3165 (2009)

[3] Brunstein M., Braive R., Hostein R., Beveratos A., Robert-Philip I., Sagnes I., Karle TJ., Yacomotti AM., Levenson JA., Moreau V., Tessier G., De Wilde Y.
Thermo-optical dynamics in an optically pumped Photonic Crystal nano-cavity
Optics Express, 17 (19), 17118 (2009)

Bibliographie

- [1] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux. Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices. *Applied Physics Letters*, 47(10) :1099–1101, 1985.
- [2] Y. Arakawa and H. Sakaki. Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. *Applied Physics Letters*, 40(11) :939–941, 1982.
- [3] Yasuhiko Arakawa and Mitsuru Sugawara. Advances in quantum dot lasers for high-speed and temperature-stable operation (invited paper). volume 5722, pages 45–48. SPIE, 2005.
- [4] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann. Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure. *Physical Review Letters*, 73(8) :1138–1141, Aug 1994.
- [5] H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Photon antibunching in resonance fluorescence. *Physical Review Letters*, 39(11) :691–695, Sep 1977.
- [6] Charles Santori, Matthew Pelton, Glenn Solomon, Yseulte Dale, and Yoshihisa Yamamoto. Triggered single photons from a quantum dot. *Physical Review Letters*, 86(8) :1502–1505, Feb 2001.
- [7] Charles H. Bennett, François Bessette, Gilles Brassard, Louis Salvail, and John Smolin. Experimental quantum cryptography. *Journal of Cryptology*, 5(1) :3–28, January 1992.
- [8] Adrien Michon. *Etude de la croissance de boîtes quantiques InAs/InP(001) par épitaxie en phase vapeur aux organométalliques pour des applications à 1,55 micron*. PhD thesis, Université Paris VI, 2007.
- [9] R. Braive, S. Barbay, I. Sagnes, A. Miard, I. Robert Philip, and A. Beveratos. Transient chirp in high-speed photonic-crystal quantum-dot lasers with controlled spontaneous emission. *Opt. Lett.*, 34(5) :554–556, March 2009.
- [10] Lieven M. K. Vandersypen, Matthias Steffen, Gregory Breyta, Costantino S. Yannoni, Mark H. Sherwood, and Isaac L. Chuang. Experimental realization of Shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. *Nature*, 414(6866) :883–887, December 2001.
- [11] Alberto Politi, Jonathan C. F. Matthews, and Jeremy L. O’Brien. Shor’s quantum factoring algorithm on a photonic chip. *Science*, 325(5945) :1221+, September 2009.
- [12] C. H. Bennett and G. Brassard. Public key distribution and coin tossing. *Proc. of IEEE International Conference on Computers*, pages 175–179, 1984.

- [13] Valerio Scarani, Antonio Acín, Grégoire Ribordy, and Nicolas Gisin. Quantum cryptography protocols robust against photon number splitting attacks for weak laser pulse implementations. *Physical Review Letters*, 92(5) :057901+, Feb 2004.
- [14] A. R. Dixon, Z. L. Yuan, J. F. Dynes, A. W. Sharpe, and A. J. Shields. Gigahertz decoy quantum key distribution with 1 mbit/s secure key rate. *Opt. Express*, 16(23) :18790–18979, November 2008.
- [15] id quantique - www.idquantique.com.
- [16] Gilles Brassard, Norbert Lütkenhaus, Tal Mor, and Barry C. Sanders. Limitations on practical quantum cryptography. *Physical Review Letters*, 85(6) :1330–1333, Aug 2000.
- [17] Frédéric Grosshans and Philippe Grangier. Continuous variable quantum cryptography using coherent states. *Physical Review Letters*, 88(5) :057902+, Jan 2002.
- [18] Hoi K. Lo, Xiongfeng Ma, and Kai Chen. Decoy state quantum key distribution. *Physical Review Letters*, 94(23) :230504+, Jun 2005.
- [19] X. Ma, B. Qi, Y. Zhao, and H. K. Lo. Practical decoy state for quantum key distribution. May 2005.
- [20] P. Grangier, G. Roger, and A. Aspect. Experimental evidence for a photon anticorrelation effect on a beam splitter : A new light on single-photon interferences. *EPL (Europhysics Letters)*, 1(4) :173–179, 1986.
- [21] T. Basché, W. E. Moerner, M. Orrit, and H. Talon. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid. *Physical Review Letters*, 69(10) :1516–1519, Sep 1992.
- [22] Christian Brunel, Brahim Lounis, Philippe Tamarat, and Michel Orrit. Triggered source of single photons based on controlled single molecule fluorescence. *Physical Review Letters*, 83(14) :2722–2725, Oct 1999.
- [23] F. De Martini, G. Di Giuseppe, and M. Marrocco. Single-mode generation of quantum photon states by excited single molecules in a microcavity trap. *Physical Review Letters*, 76(6) :900–903, Feb 1996.
- [24] B. Lounis and W. E. Moerner. Single photons on demand from a single molecule at room temperature. *Nature*, 407(6803) :491–493, September 2000.
- [25] Rosa Brouri, Alexios Beveratos, Jean-Philippe Poizat, and Philippe Grangier. Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond. *Opt. Lett.*, 25(17) :1294–1296, September 2000.
- [26] Christian Kurtsiefer, Sonja Mayer, Patrick Zarda, and Harald Weinfurter. Stable solid-state source of single photons. *Physical Review Letters*, 85(2) :290–293, Jul 2000.
- [27] A. Gruber, A. Drabenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, C. Borczyskowski, and Von. Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers. *Science*, 276(5321) :2012–2014, June 1997.
- [28] A. Dräbenstedt, L. Fleury, C. Tietz, F. Jelezko, S. Kilin, A. Nizovtzev, and J. Wrachtrup. Low-temperature microscopy and spectroscopy on single defect centers in diamond. *Physical Review B*, 60(16) :11503–11508, Oct 1999.

- [29] A. Beveratos. *Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés individuels dans le diamant; application à la cryptographie quantique*. PhD thesis, Université Paris XI, <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00008487>, 2002.
- [30] Alexios Beveratos, Rosa Brouri, Thierry Gacoin, André Villing, Jean P. Poizat, and Philippe Grangier. Single photon quantum cryptography. *Physical Review Letters*, 89(18) :187901+, Oct 2002.
- [31] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, 290(5500) :2282–2285, December 2000.
- [32] G. Messin, J. P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, and M. Dahan. Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals. *Opt. Lett.*, 26(23) :1891–1893, December 2001.
- [33] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus. Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals. *Nature*, 383(6603) :802–804, October 1996.
- [34] Al and M. Rosen. Random telegraph signal in the photoluminescence intensity of a single quantum dot. *Physical Review Letters*, 78(6) :1110–1113, Feb 1997.
- [35] F. Cichos, C. Vonborczyskowski, and M. Orrit. Power-law intermittency of single emitters. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 12(6) :272–284, December 2007.
- [36] Céline Vion. *Couplage de nanocristaux colloïdaux à des structures photoniques, contrôle de l'émission spontanée*. PhD thesis, Université Paris VI, <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00408758>, 2009.
- [37] Jean-Michel Gerard and Bruno Gayral. Strong purcell effect for inas quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities. *J. Lightwave Technol.*, 17(11) :2089+, November 1999.
- [38] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry Mieg, J. M. Gérard, and I. Abram. Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 87(18) :183601+, Oct 2001.
- [39] E. Moreau, I. Robert, J. M. Gérard, I. Abram, L. Manin, and V. Thierry Mieg. Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities. *Applied Physics Letters*, 79(18) :2865–2867, 2001.
- [40] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, Lidong Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld, and P. M. Petroff. Cavity-quantum electrodynamics using a single inas quantum dot in a microdisk structure. *Applied Physics Letters*, 78(25) :3932–3934, 2001.
- [41] G. Saint Girons, A. Michon, I. Sagnes, G. Beaudoin, and G. Patriarche. Inas/inp(001) quantum dots and quantum sticks grown by movpe : Shape, anisotropy and formation process. *AIP Conference Proceedings*, 893(1) :71–72, 2007.
- [42] A. Michon, R. Hostein, G. Patriarche, N. Gogneau, G. Beaudoin, A. Beveratos, I. Robert Philip, S. Laurent, S. Sauvage, P. Boucaud, and I. Sagnes. Metal organic vapor

- phase epitaxy of inasp/inp(001) quantum dots for 1.55 μm applications : Growth, structural, and optical properties. *Journal of Applied Physics*, 104(4) :043504+, 2008.
- [43] S. Laurent, S. Varoutsis, L. Legratiet, A. LeMaitre, I. Sagnes, F. Raineri, I. Robert-philip, and I. Abram. Indistinguishable single photons from a single inas quantum dot in a photonic crystal slab cavity. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 32(1-2) :480–483, May 2006.
- [44] Shinichi Tomimoto, Atsushi Kurokawa, Yoshiki Sakuma, Tatsuya Usuki, and Yasuaki Masumoto. Radiative recombination of excitons in disk-shaped inas/inp quantum dots. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 76(20) :205317+, 2007.
- [45] Daniel Granados and Jorge M. Garc'ia. In(ga)as self-assembled quantum ring formation by molecular beam epitaxy. *Applied Physics Letters*, 82(15) :2401–2403, 2003.
- [46] Emmanuelle Peter. *Couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique de GaAs en microdisque*. PhD thesis, Université Paris XI, 2006.
- [47] I. Favero, A. Berthelot, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph, R. Ferreira, and J. M. Gérard. Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in quantum dots : An effect of the fluctuating environment. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(7) :073308+, 2007.
- [48] K. J. Luo, J. Y. Xu, H. Cao, Y. Ma, S. H. Chang, S. T. Ho, and G. S. Solomon. Ultra-fast dynamics of inas/gaas quantum-dot microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 78(22) :3397–3399, 2001.
- [49] D. Bimberg, N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, Zh Alferov, P. S. Kop'ev, and V. M. Ustinov. Ingaas-gaas quantum-dot lasers. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 3(2) :196–205, August 2002.
- [50] N. N. Ledentsov, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, M. V. Maximov, Zh Alferov, and J. A. Lott. Quantum-dot heterostructure lasers. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 6(3) :439–451, August 2002.
- [51] S. Reitzenstein, T. Heindel, C. Kistner, A. Rahimi Iman, C. Schneider, S. Höfling, and A. Forchel. Low threshold electrically pumped quantum dot-micropillar lasers. *Applied Physics Letters*, 93(6) :061104+, 2008.
- [52] S. Reitzenstein, A. Bazhenov, A. Gorbunov, C. Hofmann, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, J. P. Reithmaier, V. D. Kulakovskii, and A. Forchel. Lasing in high-q quantum-dot micropillar cavities. *Applied Physics Letters*, 89(5) :051107+, 2006.
- [53] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, and J. Bloch. Strong coupling for a single quantum dot in a microdisk. *physica status solidi (c)*, 2(11) :3825–3828, 2005.
- [54] Bong-Shik Song, Susumu Noda, Takashi Asano, and Yoshihiro Akahane. Ultra-high-q photonic double-heterostructure nanocavity. *Nat Mater*, 4(3) :207–210, February 2005.
- [55] Y. S. Choi, M. T. Rakher, K. Hennessy, S. Strauf, A. Badolato, P. M. Petroff, D. Bouwmeester, and E. L. Hu. Evolution of the onset of coherence in a family of photonic crystal nanolasers. *Applied Physics Letters*, 91(3) :031108+, 2007.

- [56] Dirk Englund, Hatice Altug, and Jelena Vučković. Time-resolved lasing action from single and coupled photonic crystal nanocavity array lasers emitting in the telecom band. *Journal of Applied Physics*, 105(9) :093110+, 2009.
- [57] Frédéric Bordas, Christian Seassal, Emmanuel Dupuy, Philippe Regreny, Michel Gendry, Pierre Viktorovitch, M. J. Steel, and Adel Rahmani. Room temperature low-threshold inas/inp quantum dot single mode photonic crystal microlasers at 1.5 μm using cavity-confined slow light. *Optics Express*, 17(7) :5439–5445, March 2009.
- [58] Zhiliang Yuan, Beata E. Kardynal, R. Mark Stevenson, Andrew J. Shields, Charlene J. Lobo, Ken Cooper, Neil S. Beattie, David A. Ritchie, and Michael Pepper. Electrically driven single-photon source. *Science*, 295(5552) :102–105, January 2002.
- [59] M. Gendry, C. Monat, J. Brault, P. Regreny, G. Hollinger, B. Salem, G. Guillot, T. Benyattou, C. Bru Chevallier, G. Bremond, and O. Marty. From large to low height dispersion for self-organized inas quantum sticks emitting at 1.55 μm on inp (001). *Journal of Applied Physics*, 95(9) :4761–4766, 2004.
- [60] L. González, J. M. García, R. García, F. Briones, J. Martínez Pastor, and C. Ballesteros. Influence of buffer-layer surface morphology on the self-organized growth of inas on inp(001) nanostructures. *Applied Physics Letters*, 76(9) :1104–1106, 2000.
- [61] P. Caroff-Gaonac’h. *Croissance de boîtes quantiques InAs/InP(113)B pour des applications en télécommunications optiques*. PhD thesis, INSA de Rennes, 2005.
- [62] E. Dupuy, P. Regreny, Y. Robach, M. Gendry, N. Chauvin, E. Tranvouez, G. Bremond, C. Bru Chevallier, and G. Patriarche. Low density of self-assembled inas quantum dots grown by solid-source molecular beam epitaxy on inp(001). *Applied Physics Letters*, 89(12) :123112+, 2006.
- [63] H. Marchand, P. Desjardins, S. Guillon, J. E. Paultre, Z. Bougrioua, R. Y. F. Yip, and R. A. Masut. Metalorganic vapor phase epitaxy of coherent self-assembled inas nanometer-sized islands in inp(001). *Applied Physics Letters*, 71(4) :527–529, 1997.
- [64] N. Carlsson. Growth of self-assembled inas and inas(x)p(1-x) dots on inp by metalorganic vapour phase epitaxy. *Journal of Crystal Growth*, 191(3) :347–356, July 1998.
- [65] G. N. Gol’tsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams, and Roman Sobolewski. Picosecond superconducting single-photon optical detector. *Applied Physics Letters*, 79(6) :705–707, 2001.
- [66] A. Verevkin, J. Zhang, Roman Sobolewski, A. Lipatov, O. Okunev, G. Chulkova, A. Korneev, K. Smirnov, G. N. Gol’tsman, and A. Semenov. Detection efficiency of large-active-area nbn single-photon superconducting detectors in the ultraviolet to near-infrared range. *Applied Physics Letters*, 80(25) :4687–4689, 2002.
- [67] A. Verevkin, A. Pearlman, W. Slysz, J. Zhang, M. Currier, A. Korneev, G. Chulkova, O. Okunev, P. Kouminov, K. Smirnov, B. Voronov, G. N. Gol’tsman, and Roman Sobolewski. Ultrafast superconducting single-photon detectors for near-infrared-wavelength quantum communications. 51(9) :1447–1458, 2004.

- [68] Christian Colliex. *La microscopie Electronique*, volume 1045. http://serveurweb.lps.u-psud.fr/Collectif/gr_27/publications/books/christian/colliex_book.html, 1996.
- [69] M. Berti, A. V. Drigo, A. Giuliani, M. Mazzer, A. Camporese, G. Rossetto, and G. Torzo. Inp/gaas self-assembled nanostructures : Modelization and experiment. *Journal of Applied Physics*, 80(3) :1931–1933, 1996.
- [70] T. R. Ramachandran, A. Madhukar, I. Mukhametzhanov, R. Heitz, A. Kalburge, Q. Xie, and P. Chen. Nature of stranski–krastanow growth of inas on gaas(001). volume 16, pages 1330–1333. AVS, 1998.
- [71] A. Michon, G. Patriarche, G. Beaudoin, G. Saint Girons, N. Gogneau, and I. Sagnes. Density of inas/inp(001) quantum dots grown by metal-organic vapor phase epitaxy : Independent effects of inas and cap-layer growth rates. *Applied Physics Letters*, 91(10) :102107+, 2007.
- [72] Y. Sakuma, M. Takeguchi, K. Takemoto, S. Hirose, T. Usuki, and N. Yokoyama. Role of thin inp cap layer and anion exchange reaction on structural and optical properties of inas quantum dots on inp (001). volume 23, pages 1741–1746. AVS, 2005.
- [73] Y. Akanuma, I. Yamakawa, Y. Sakuma, T. Usuki, and A. Nakamura. Scanning tunneling microscopy study of interfacial structure of inas quantum dots on inp(001) grown by a double-cap method. *Applied Physics Letters*, 90(9) :093112+, 2007.
- [74] J. M. Gérard. *Croissance par épitaxie par jets moléculaires et études optiques des propriétés électroniques des hétérostructures semiconductrices très contraintes InAs/GaAs*. PhD thesis, Université Paris VI, 1990.
- [75] B. Salem, G. Bremond, T. Benyattou, C. Bruchevallier, G. Guillot, C. Monat, M. Gendry, G. Hollinger, A. Jbeli, and X. Marie. Evidence of excited levels in self-organized inas/inp(001) islands with low size dispersion. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 17 :124–126, April 2003.
- [76] C. Cornet, C. Labbé, H. Folliot, P. Caroff, C. Levallois, O. Dehaese, J. Even, A. Le Corre, and S. Loualiche. Time-resolved pump probe of 1.55 μm inas/inp quantum dots under high resonant excitation. *Applied Physics Letters*, 88(17) :171502+, 2006.
- [77] A. Fiore, P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam, U. Oesterle, R. Houdré, R. P. Stanley, and M. Illegems. Time-resolved optical characterization of inas/ingaas quantum dots emitting at 1.3 μm . *Applied Physics Letters*, 76(23) :3430–3432, 2000.
- [78] C. H. Lin, H. S. Lin, C. C. Huang, S. K. Su, S. D. Lin, K. W. Sun, C. P. Lee, Y. K. Liu, M. D. Yang, and J. L. Shen. Temperature dependence of time-resolved photoluminescence spectroscopy in inas/gaas quantum ring. *Applied Physics Letters*, 94(18) :183101+, 2009.
- [79] M. Gurioli, A. Vinattieri, M. Zamfirescu, M. Colocci, S. Sanguinetti, and Richard Nötzel. Recombination kinetics of inas quantum dots : Role of thermalization in dark states. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 73(8) :085302+, 2006.

- [80] Ming Gong, Kaimin Duan, Chuan F. Li, Rita Magri, Gustavo A. Narvaez, and Lixin He. Electronic structure of self-assembled inas/inp quantum dots : Comparison with self-assembled inas/gaas quantum dots. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 77(4) :045326+, 2008.
- [81] N. I. Cade, H. Gotoh, H. Kamada, H. Nakano, S. Anantathanasarn, and R. Noetzel. Optical characteristics of single wavelength-tunable inas/ingaasp/inp(100) quantum dots emitting at 1.55 μm . Mar 2006.
- [82] J. Hours, P. Senellart, E. Peter, A. Cavanna, and J. Bloch. Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot. *Physical Review B*, 71(16) :161306+, Apr 2005.
- [83] Charles Cornet. *Propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP*. PhD thesis, INSA, Rennes, 2006.
- [84] I. Friedler, P. Lalanne, J. P. Hugonin, J. Claudon, J. M. Gérard, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Efficient photonic mirrors for semiconductor nanowires. *Optics Letters*, 33(22) :2635+, November 2008.
- [85] Niels Gregersen, Torben Nielsen, Julien Claudon, Jean-Michel Gerard, and Jesper Mork. Controlling nanowire emission profile using conical taper. *OPTICS LETTERS*, 33(15) :1693+, 2008.
- [86] K. Takemoto, Y. Sakuma, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama, T. Miyazawa, M. Takatsu, and Y. Arakawa. Single inas/inp quantum dot spectroscopy in 1.3–1.55 μm telecommunication band. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 26(1-4) :185–189, February 2005.
- [87] T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, K. Takemoto, and T. Usuki. Single-photon interferography in inas/inp quantum dots emitting at 1300 nm wavelength. *Applied Physics Letters*, 91(22) :223113+, 2007.
- [88] G. Sek, P. Podemski, A. Musial, J. Misiewicz, S. Hein, S. Höfling, and A. Forchel. Exciton and biexciton emission from a single inas/inp quantum dash. *Journal of Applied Physics*, 105(8) :086104+, 2009.
- [89] P. J. van Veldhoven, N. Chauvin, A. Fiore, and R. Nötzel. Low density 1.55 μm inas/ingaasp/inp (100) quantum dots enabled by an ultrathin gaas interlayer. *Applied Physics Letters*, 95(11) :113110+, 2009.
- [90] Y. Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 34(1) :149–154, 1967.
- [91] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gerard. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nat Phys*, 2(11) :759–764, November 2006.
- [92] Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Christian Schulhauser, Alexander Hogele, Bernhard Urbaszek, Ewan J. McGhee, Alexander O. Govorov, Jorge M. Garcia, Brian D. Gerardot, and Pierre M. Petroff. Hybridization of electronic states in quantum dots through photon emission. *Nature*, 427(6970) :135–138, January 2004.
- [93] Martin Winger, Thomas Volz, Guillaume Tarel, Stefano Portolan, Antonio Badolato, Kevin Hennessy, Evelyn Hu, Alexios Beveratos, Jonathan Finley, Vincenzo Savona,

- and Atac Imamoglu. Mesoscopic cavity-qed : the physics behind off-resonant cavity excitation by a single quantum dot. Jul 2009.
- [94] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. Ram R. Mohan. Band parameters for iii–v compound semiconductors and their alloys. *Journal of Applied Physics*, 89(11) :5815–5875, 2001.
- [95] Yu, S. Noda, G. G. Tarasov, V. G. Dorogan, G. J. Salamo, O. Bierwagen, W. T. Masselink, Jr, and M. O. Manasreh. Excitonic band edges and optical anisotropy of inas/inp quantum dot structures. *Journal of Applied Physics*, 103(5) :054315+, 2008.
- [96] S. Laurent, S. Varoutsis, L. Le Gratiet, A. Lemaître, I. Sagnes, F. Raineri, A. Levenson, I. Robert Philip, and I. Abram. Indistinguishable single photons from a single-quantum dot in a two-dimensional photonic crystal cavity. *Applied Physics Letters*, 87(16) :163107+, 2005.
- [97] Spyridon Varoutsis. *Génération de photons uniques indiscernables par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique*. PhD thesis, Université Paris XI, 2005.
- [98] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel, and J. M. Gérard. Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects. *Physical Review B*, 66(4) :041306+, Jul 2002.
- [99] E. Moreau. *Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [100] Charles Santori, Glenn S. Solomon, Matthew Pelton, and Yoshihisa Yamamoto. Time-resolved spectroscopy of multiexcitonic decay in an inas quantum dot. *Physical Review B*, 65(7) :073310+, Feb 2002.
- [101] V. G. Dorogan, Yu, Jr, G. G. Tarasov, M. E. Ware, and G. J. Salamo. Hybridized quantum dot-wetting layer states in photoluminescence of in(ga)as/gaas dot chain samples. *Journal of Applied Physics*, 105(12) :124304+, 2009.
- [102] Charles M. Santori, David Fattal, Jelena Vuckovic, Glenn S. Solomon, and Yoshihisa Yamamoto. Indistinguishable single photons from a single quantum dot microcavity. volume 4969, pages 156–166. SPIE, 2003.
- [103] M. Larqué, I. Robert Philip, and A. Beveratos. Bell inequalities and density matrix for polarization-entangled photons out of a two-photon cascade in a single quantum dot. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 77(4) :042118+, 2008.
- [104] M. Larqué, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Entangling single photons on a beamsplitter. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 47(1) :119–125, April 2008.
- [105] Mark Fox. *Quantum optics : an introduction*. 2006.
- [106] A. Schwoob-Viasnoff. *Propagation et émission dans des guides multimodes à cristaux photoniques bidimensionnels*. PhD thesis, Université Paris XI, 2004.

- [107] Alvaro Blanco, Emmanuel Chomski, Serguei Grabtchak, Marta Ibisate, Sajeev John, Stephen W. Leonard, Cefe Lopez, Francisco Meseguer, Hernan Miguez, Jessica P. Mondia, Geoffrey A. Ozin, Ovidiu Toader, and Henry M. van Driel. Large-scale synthesis of a silicon photonic crystal with a complete three-dimensional bandgap near 1.5 micrometres. *Nature*, 405(6785) :437–440, May 2000.
- [108] Eli Yablonovitch. Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics. *Physical Review Letters*, 58(20) :2059–2062, May 1987.
- [109] Sajeev John. Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices. *Physical Review Letters*, 58(23) :2486–2489, Jun 1987.
- [110] Robert D. Meade, Karl D. Brommer, Andrew M. Rappe, and J. D. Joannopoulos. Existence of a photonic band gap in two dimensions. *Applied Physics Letters*, 61(4) :495–497, 1992.
- [111] Yoshihiro Akahane, Takashi Asano, Bong-Shik Song, and Susumu Noda. High-q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal. *Nature*, 425(6961) :944–947, October 2003.
- [112] C. Sauvan, P. Lalanne, and J. P. Hugonin. Slow-wave effect and mode-profile matching in photonic crystal microcavities. *Physical Review B*, 71(16) :165118+, Apr 2005.
- [113] Christophe Sauvan, Philippe Lalanne, and Jean-Paul Hugonin. Photonics : Tuning holes in photonic-crystal nanocavities. *Nature*, 429(6988), May 2004.
- [114] R. Braive, L. Le Gratiet, S. Guilet, G. Patriarche, A. Lemaître, A. Beveratos, I. Robert Philip, and I. Sagnes. Inductively coupled plasma etching of gaas suspended photonic crystal cavities. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 27(4) :1909–1914, 2009.
- [115] Stéphane Laurent. *Cavités à bande interdite photonique bidimensionnelle et application à une source de photons uniques indiscernables*. PhD thesis, Université ParisVI, 2006.
- [116] R. Hafenbrak, S. M. Ulrich, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt. Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30 k. *New Journal of Physics*, 9(9) :315, September 2007.
- [117] M. Larqué. *Towards the generation of entangled sources from single quantum dots in photonic crystal cavities*. PhD thesis, Université Paris VI, 2009.
- [118] Antonio Badolato, Kevin Hennessy, Mete Atature, Jan Dreiser, Evelyn Hu, Pierre M. Petroff, and Atac Imamoglu. Deterministic coupling of single quantum dots to single nanocavity modes. *Science*, 308(5725) :1158–1161, May 2005.
- [119] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczyński, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch, and P. Senellart. Controlled light-matter coupling for a single quantum dot embedded in a pillar microcavity using far-field optical lithography. *Physical Review Letters*, 101(26) :267404+, 2008.
- [120] M. H. Baier, E. Pelucchi, E. Kapon, S. Varoutsis, M. Gallart, I. Robert Philip, and I. Abram. Single photon emission from site-controlled pyramidal quantum dots. *Applied Physics Letters*, 84(5) :648–650, 2004.

- [121] N. Gogneau, L. Le Gratiet, E. Cambril, G. Beaudoin, G. Patriarche, A. Beveratos, R. Hostein, I. Robert-Philip, J. Y. Marzin, and I. Sagnes. One-step nano-selective area growth (nano-sag) of localized inas/inp quantum dots : First step towards single-photon source applications. *Journal of Crystal Growth*, 310(15) :3413–3415, July 2008.
- [122] Gunnar Björk, Anders Karlsson, and Yoshihisa Yamamoto. Definition of a laser threshold. *Physical Review A*, 50(2) :1675–1680, Aug 1994.
- [123] Perry R. Rice and H. J. Carmichael. Photon statistics of a cavity-qed laser : A comment on the laser–phase-transition analogy. *Physical Review A*, 50(5) :4318–4329, Nov 1994.
- [124] R. Braive. *Contrôle de l'émission spontanée dans les cristaux photoniques*. PhD thesis, Université Paris VII, 2008.
- [125] L. A. Coldren and S. W. Corzine. *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*. Wiley-Interscience, 1 edition, October 1995.
- [126] F. De Martini, M. Marrocco, and D. Murra. Transverse quantum correlations in the active microscopic cavity. *Physical Review Letters*, 65(15) :1853–1856, Oct 1990.
- [127] R. Herrmann, T. Sunner, T. Hein, A. Löffler, M. Kamp, and A. Forchel. Ultrahigh-quality photonic crystal cavity in gaas. *Opt. Lett.*, 31(9) :1229–1231, 2006.
- [128] Evelin Weidner, Sylvain Combrié, Nguyen Vi Quynh Tran, Alfredo De Rossi, Julien Nagle, Simone Cassette, Anne Talneau, and Henri Benisty. Achievement of ultrahigh quality factors in gaas photonic crystal membrane nanocavity. *Applied Physics Letters*, 89(22) :221104+, 2006.
- [129] N. J. van Druten, Y. Lien, C. Serrat, S. S. R. Oemrawsingh, M. P. van Exter, and J. P. Woerdman. Laser with thresholdless intensity fluctuations. *Physical Review A*, 62(5) :053808+, Oct 2000.
- [130] J. Arnaud. Photon-number variance in laser diodes with quiet pumps. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14 :2193+, 1997.
- [131] Holger F. Hofmann and Ortwin Hess. Thermal photon statistics in laser light above threshold. *Physical Review A*, 62(6) :063807+, Nov 2000.
- [132] U. Mohideen, R. E. Slusher, F. Jahnke, and S. W. Koch. Semiconductor microlaser linewidths. *Physical Review Letters*, 73(13) :1785–1788, Sep 1994.
- [133] Y. Yamamoto, S. Machida, and G. Björk. Microcavity semiconductor laser with enhanced spontaneous emission. *Physical Review A*, 44(1) :657–668, Jul 1991.