HAL
open science

Contrôle de l'émission spontanée de boîtes quantiques semiconductrices insérées dans des micro-structures à confinement optique originales

Maela Bazin

To cite this version:

Maela Bazin. Contrôle de l'émission spontanée de boîtes quantiques semiconductrices insérées dans des micro-structures à confinement optique originales . Matière Condensée [cond-mat]. Université de Grenoble, 2010. Français. NNT : . tel-00592414

HAL Id: tel-00592414

https://theses.hal.science/tel-00592414v1

Submitted on 12 May 2011

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.

Institut Néel – CNRS **École doctorale de Physique de Grenoble**
Institut Nanosciences et Cryogénie – CEA

Contrôle de l'émission spontanée de boîtes quantiques semiconductrices insérées dans des micro-structures à confinement optique originales

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 25 juin 2010

pour l'obtention du

Doctorat de l'Université de Grenoble

Spécialité Physique de la Matière Condensée et du Rayonnement

par

Maela BAZIN
Thèse dirigée par J.M. Gérard

Composition du jury

J.P. Poizat	*Président*
J. Even A. Lemaître	*Rapporteurs*
G. Almuneau J.Y. Duboz J.M. Gérard	*Examinateurs*

Equipe mixte CEA/CNRS/UJF — Nanophysique et Semiconducteurs

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Je tiens à remercier les membres de mon jury de thèse. Tout d'abord Jean-Philippe Poizat qui a accepté de le présider. Merci à mes rapporteurs, Aristide Lemaître et Jacky Even d'avoir rempli cette mission ainsi qu'à mes examinateurs Guilhem Almuneau et Jean-Yves Duboz.

Je remercie mon directeur de thèse, Jean-Michel Gérard pour son encadrement, sa disponibilité et sa patience. Un grand merci à Julien Claudon pour les étapes de fabrication, les simulations numériques ainsi que sa disponibilité, son enthousiasme et sa bonne humeur. Côté optique merci à Joël Bleuse, le "breton de coeur", et son enthousiasme débordant, pour m'avoir appris à débusquer LE photon unique, Megan Creasey pour les expériences de temps de vie de dernières minutes, Kuntheak Keng et Adrien Tribut pour m'avoir formée et aidée sur le set-up de micro-photoluminescence. Merci à Périne Jaffrennou sans qui je n'aurai pu finaliser mes mesures sur les microlasers, mais aussi pour nos nombreuses discussions scientifiques et ses corrections lors de ma rédaction. Merci à Nitin Singh Malik pour sa participation aux étapes de lithographie et aux expériences de luminescence.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude aux différents membres des collaborations, l'équipe de P. Lalanne de l'Institut d'Optique d'Orsay et N. Gregersen du DTU Fotonic de Copenhague pour tous les calculs réalisés sur les fils photoniques ainsi que l'équipe de Reitzenstein de l'Université de Würtzburg pour la gravure des micropiliers.

Je remercie aussi chaleureusement Yoanna Nowicki et sa bonne humeur pour sa formation sur la machine MBE III-V et tant d'autres choses, Yann Genuist, "mon sauveur de molyblocs", avec qui je pense avoir quasiment tout démonté sur cette machine et une bonne partie de la nouvelle, Jean Dussaut, Marion Noblet et Yoann Curé pour leurs nombreux coups de main. Merci à Eric Delamadeleine de Sinaps et sa grande gentillesse pour m'avoir formée sur le FTIR. Merci aussi à Stéphanie Pouget pour sa formation à la diffraction X. Tous les épitaxieurs II-VI, anciens ou présents, pour la bonne ambiance qui règne en salle et les coups de main en tous genres, Régis André, dont les conseils m'ont toujours été d'une grande utilité, Hervé Boukari, Thomas Aichele et les plus occasionnels.

Plus généralement je remercie Henry et toute l'équipe NPSC qui m'ont accueilli durant ces presque quatre années de thèse : Marlène, Serge, Catherine, Joël E., Alexia, Edith, Eva, Bruno G. et Bruno D.,... ; les thésards et post-docs qui ont partagé une partie de ces années : Fabien, Sylvain, Mathieu, Olivier, Julien R., Lise, Robert, Mohamed,... ainsi que tous les nouveaux arrivés qui contribuent à maintenir cette ambiance chaleureuse dans le labo. Une pensée particulière pour ma seconde ex-co-bureau Miryam Elouneg-Jamroz et son humour décalé, prends bien soin de "Crapouette". Je n'oublie pas ma chère Rita Najjar, ma première ex-co-bureau, merci pour nos discussions scientifiques ou non, nos nombreux fous rires, ton soutien de chaque instant et surtout l'amitié qui en a découlé.

Je tiens maintenant à remercier les personnes plus proches de moi : Gildas pour nos diverses expéditions de fin de journée, ainsi que David pour les escapades bibliothèque entre autres, sans oublier Germain pour les pauses café au soleil, merci à vous pour nos "pétages de plombs" collectifs du vendredi soir. Encore merci à vous pour tout ce temps passé ensemble, pour m'avoir supportée et soutenue pendant ces années. Je pense également à Danny pour les midis "geek", mais aussi aux plus occasionnels qui ont contribué à ma vie grenobloise : Meryll, Mali, Oanna,

Ion... Une petite pensée pour Maggy (et sa petite famille) et son amitié de longue date, merci d'avoir toujours été disponible lors de mes trop rares retours en Bretagne.

Je tiens à témoigner toute ma reconnaissance à mes parents pour leur soutien indéfectible, aussi bien moral que financier, pendant ma thèse et plus généralement pendant toutes mes études.

Les dernières lignes s'adressent à mon frère sans qui je n'en serais pas là, pour m'avoir communiqué sa passion de la Physique et soutenue dans cette voie. Merci d'avoir toujours répondu présent que ce soit pendant ma thèse, mon cursus universitaire ou même avant.

Table des matières

Introduction **1**

Chapitre 1 Exaltation et inhibition de l'émission spontanée dans les semiconducteurs **3**

1.1 Emission dans l'espace libre 4
1.2 Comment confiner la lumière ? 6
1.2.1 Paramètres clefs d'une cavité 6
1.2.2 Quelques géométries de confinement photonique 7
1.3 Contrôle du taux d'émission spontanée en cavité 11
1.3.1 Confinement bidimensionnel 11
1.3.2 Confinement unidimensionnel 12
1.3.3 Microcavité 0D 16
1.3.4 Conclusion 19
1.4 Quelques résultats expérimentaux : Exaltation et Inhibition de l'émission spontanée 20
1.4.1 Exaltation de l'émission spontanée 20
1.4.2 Inhibition de l'émission spontanée 25
1.5 Couplage fort 26
1.5.1 Principe 26
1.5.2 Premières démonstrations expérimentales 28
1.6 Conclusion 30

Chapitre 2 Méthodes expérimentales **31**

2.1 L'épitaxie par jets moléculaires, technique de croissance sous ultravide 31
2.1.1 Schéma de principe 31
2.1.2 Caractérisation *in-situ* : le RHEED 33
2.2 Méthode et mode de croissance des matériaux III-V 34
2.2.1 Préparation des substrats 34
2.2.2 Croissance bidimensionnelle et calibration des vitesses de croissance 36
2.2.3 Caractérisation électrique des couches et calibration du dopage 42

2.2.4 Croissance de boîtes quantiques InAs sur GaAs 46
2.2.5 Cavités à miroirs de Bragg AlAs/GaAs 52
2.3 Photoluminescence 55
2.3.1 Micro-photoluminescence 56
2.3.2 Photoluminescence résolue en temps 57

Chapitre 3 Source de Photons Uniques : une nouvelle géométrie, les nanofils 59
3.1 Propriétés d'une source de photons uniques 60
3.1.1 Définition 60
3.1.2 Applications potentielles 61
3.1.3 Obtention d'un photon unique 63
3.2 Vers une source de photons uniques efficace : contrôle de l'émission spontanée . . 67
3.2.1 Approche géométrique 68
3.2.2 Contrôle de l'émission spontanée par une microcavité 68
3.3 Une nouvelle géométrie de confinement optique : les fils photoniques 72
3.3.1 Contrôle de l'émission spontanée 73
3.3.2 Méthode de fabrication 85
3.4 Résultats expérimentaux 87
3.4.1 Mesures de micro-photoluminescence 87
3.4.2 Mesures de temps de vie 90
3.4.3 Mesures de corrélation de photons 91
3.4.4 Mesure d'efficacité 94
3.5 Perspectives 97
3.5.1 Pompage électrique 97
3.5.2 Applications potentielles 98
3.5.3 Inconvénient et solutions proposées 99
3.5.4 Génération de photons indiscernables 99
3.6 Inhibition de l'émission spontanée dans les fils photoniques 99
3.6.1 Mesure de l'inhibition dans les fils photoniques 100
3.7 Conclusion 101

Chapitre 4 Etude de l'effet laser pour des modes de galerie dans des micropiliers 103
4.1 Généralités 104
4.1.1 Rappel historique des modes de galerie 104
4.1.2 Les microdisques semiconducteurs 104
4.1.3 Lasers à microdisques suspendus 106

4.1.4 Limites des microdisques suspendus . . . 108
4.2 Des modes de galerie dans les cavités micropiliers . . . 109
4.2.1 Micropiliers à modes de galerie . . . 110
4.2.2 Description de l'échantillon étudié . . . 111
4.2.3 Mesures préliminaires . . . 112
4.3 Effet laser dans un micropilier à modes de galerie . . . 113
4.3.1 Configuration expérimentale . . . 113
4.3.2 Evolution de l'intensité intégrée en fonction de la puissance de pompe . . . 114
4.3.3 Largeur spectrale . . . 118
4.3.4 Evacuation thermique . . . 119
4.3.5 Températures de fonctionnement . . . 121
4.4 Modèle théorique . . . 123
4.4.1 Modèle à deux niveaux . . . 123
4.4.2 Extension du modèle à 4 niveaux . . . 129
4.5 Conclusion et Perspectives . . . 132

Conclusion **137**

Annexe A Inhibition dans les micropiliers métallisés **139**
A.1 Contrôle de l'émission spontanée dans un guide métallisé . . . 139
A.2 Miroir de Bragg métallisé . . . 141
A.2.1 Premier cas . . . 142
A.2.2 Second cas . . . 143
A.3 Application à l'expérience de Bayer et al [13] . . . 143

Bibliographie **145**

Glossaire **157**

Table des figures **159**

Introduction

C'est durant la seconde moitié du XIXe siècle que Maxwell posa les fondements de la physique moderne sur la lumière en proposant les postulats de base de l'électromagnétisme. Au XXe siècle, ce sont les lacunes non expliquées de cette théorie, comme l'effet photoélectrique ou les radiations du corps noir, qui menèrent des physiciens tels que Planck ou Einstein à la notion de quanta et donc à la théorie quantique. En se basant sur le modèle de Rutherford, Bohr, en 1913, applique ces concepts de quantification à l'atome en introduisant les niveaux d'énergie de ses électrons. Ce modèle baptisé "modèle de Bohr" permet alors de prédire leurs propriétés spectrales. Il est aujourd'hui connu que les transitions optiques de cet atome (absorption ou émission de la lumière) résultent d'un couplage entre ce système électronique et les modes du champ électromagnétique. Cependant, il a fallu attendre les travaux de Purcell, en 1946 [126], pour qu'on imagine modifier l'émission spontanée d'un atome en changeant son environnement électromagnétique. Purcell prévoit, dans un article sur les résonances magnétiques, que le taux d'émission spontanée est modifié pour un atome isolé couplé avec un mode discret d'un résonateur électromagnétique. Il faut ensuite attendre les années 1980 pour que les premières démonstrations expérimentales de tels phénomènes sur des atomes soient réalisées dans le domaine des micro-ondes [63]. On assiste à la même époque à l'émergence de nouvelles approches basées sur la mécanique quantique pour le traitement de l'information, telle que la cryptographie quantique [15].

C'est aussi à la fin des années 80 que se développent en physique du solide les méthodes de croissance dites auto-organisées [62], [66], [75], [121], [138]. C'est ainsi que la communauté des semiconducteurs voit émerger un nouveau type d'émetteurs : les boîtes quantiques. Ces structures s'avèrent très proches de l'atome, de part leur confinement tridimensionnel, elles présentent une émission quasi monochromatique à basse température et une séparation nette entre niveaux énergétiques. C'est pourquoi ces émetteurs seront par la suite appelés "atomes artificiels". C'est grâce au progrès des techniques de croissance et de lithographie des semiconducteurs dans les années 90, qu'il devient possible de structurer des cavités à l'échelle de la longueur d'onde et ainsi de réaliser les expériences d'électrodynamique quantique dans des microcavités optiques monolithiques. C'est ainsi que l'on a pu observer les principaux effets d'électrodynamique quantique en cavité dans des système solides : l'exaltation [61], l'inhibition de l'émission spontanée [97] et le régime de couplage fort entre émetteur et mode de cavité [167].

Les études sur les microcavités optiques ont aussi conduit au développement de nouveaux composants, tels que le VCSEL (Vertical Cavity Surface Emitting Laser). Ce composant est largement utilisé dans l'industrie du fait des propriétés intéressantes liées à sa géométrie verticale (faisceau à symétrie axiale, facilité à le coupler à une fibre optique, procédé à bas coût lié à une fabrication massivement parallèle et un test aisé sur la plaque, possiblité de réaliser des microlasers à très bas courant de seuil). On notera cependant que dans ce composant, quelques pourcents seulement de l'émission spontanée sont couplés au mode laser. Or l'émission spontanée joue un rôle clef dans les lasers. Dans le mode laser, elle sert à déclencher l'amplification par émission stimulée, tandis que l'émission spontanée dans les autres modes dissipe inutilement de

l'énergie. Depuis la proposition du "laser sans seuil" en 1982, la communauté scientifique rêve de contrôler l'émission spontanée de façon idéale, c'est à dire d'obtenir un couplage de 100% de celle-ci au mode laser [34], [35].

De façon générale, les effets de microcavité permettent de se rapprocher de ce régime de contrôle total de l'émission spontanée. Par exemple, l'effet Purcell a été mis en œuvre pour obtenir une bonne collection de photons émis par une boîte quantique dans les sources de photons uniques.

Dans cet esprit, je me suis intéressée à deux géométries originales pour le confinement photonique : les nanofils et les micropiliers à modes de galerie. Parmi les familles de semiconducteurs, celle des arséniures (GaAs/AlAs/InAs) est l'une des mieux connues de la littérature tant en terme de fabrication que de caractérisation. C'est pourquoi ces matériaux ont naturellement été utilisés pour la réalisation de ces structures photoniques.

Le premier chapitre est une introduction sur le contrôle de l'émission spontanée dans les semiconducteurs. Après une description des paramètres clefs et des principales cavités semiconductrices, nous décrirons donc le comportement du taux d'émission spontanée en cavité pour un confinement croissant : unidimensionnel, bidimensionnel et enfin tridimensionnel. Nous verrons ainsi qu'on peut exalter ou inhiber l'émission spontanée et nous en présenterons ensuite quelques démonstrations expérimentales. Enfin, nous décrirons rapidement le régime de couplage fort et ses premières observations.

Le second chapitre présentera le principe de croissance par épitaxie par jets moléculaires des semiconducteurs III-As. Nous décrirons les conditions de croissance notamment des boîtes quantiques et des microcavités ainsi que quelques méthodes de caractérisation structurale et optique.

Le troisième chapitre traitera d'une géométrie innovante dans le cadre de la réalisation d'une source de photons uniques de haute efficacité. Nous détaillerons l'état de l'art de cette thématique ainsi que le cheminement pour arriver à la géométrie finale des fils photoniques utilisés. Nous exposerons ensuite dans un premier temps les expériences de corrélation de photons réalisées sur ces sources puis les mesures d'efficacité. Nous montrerons enfin que cette géométrie permet d'observer une très forte inhibition de l'émission des boîtes quantiques.

Le quatrième chapitre sera consacré à l'étude des modes de galerie et plus spécifiquement à l'effet laser dans des cavités peu classiques : les micropiliers. Après un rappel sur les cavités conventionnelles à modes de galerie, les microdisques, nous exposerons dans un premier temps nos résultats expérimentaux sur l'effet laser des modes de galerie dans les micropiliers, puis nous finirons en proposant un modèle pour décrire les résultats obtenus.

Nous concluerons ce manuscrit en rappelant les résultats marquants puis en donnant quelques pistes pour les travaux futurs sur les sujets abordés dans ce manuscrit.

Chapitre 1

Exaltation et inhibition de l'émission spontanée dans les semiconducteurs

Sommaire

1.1 Emission dans l'espace libre **4**
1.2 Comment confiner la lumière ? **6**
1.2.1 Paramètres clefs d'une cavité 6
1.2.2 Quelques géométries de confinement photonique 7
1.3 Contrôle du taux d'émission spontanée en cavité **11**
1.3.1 Confinement bidimensionnel 11
1.3.2 Confinement unidimensionnel 12
1.3.3 Microcavité 0D 16
1.3.4 Conclusion 19
1.4 Quelques résultats expérimentaux : Exaltation et Inhibition de l'émission spontanée **20**
1.4.1 Exaltation de l'émission spontanée 20
1.4.2 Inhibition de l'émission spontanée 25
1.5 Couplage fort **26**
1.5.1 Principe 26
1.5.2 Premières démonstrations expérimentales 28
1.6 Conclusion **30**

L'étude du contrôle de l'émission spontanée s'est largement développée au cours des années 80 pour l'amélioration des composants optoélectroniques. Dans le domaine des semiconducteurs, pour les diodes électroluminescentes par exemple, on cherche à générer de la lumière le plus efficacement possible, c'est à dire à maximiser la conversion des paires électron-trou en photons tout en optimisant l'extraction. Dans le cas des lasers, on cherche à ce que l'émission spontanée parte de façon préférentielle dans le mode laser et prépare l'émission stimulée, l'émission spontanée présente dans les autres modes ne participe pas à cet effet et consomme donc inutilement des paires électron-trou. Enfin, le contrôle de l'émission spontanée d'un émetteur unique inséré dans une microcavité optique ou un fil photonique permet de réaliser un composant optoélectronique nouveau, la source de photons uniques, comme nous le verrons au chapitre 3.

Dans ce chapitre, nous présenterons dans un premier temps les calculs du taux d'émission spontanée dans l'espace libre. Dans un second temps nous exposerons comment confiner la lumière en cavité. Nous reprendrons alors le calcul du taux d'émission spontanée pour des degrés

grandissants de confinement. Nous rapporterons ensuite les premières démonstrations expérimentales d'exaltation et d'inhibition de l'émission spontanée. Enfin, nous détaillerons rapidement les mécanismes du couplage fort et les premières observations expérimentales.

1.1 Emission dans l'espace libre

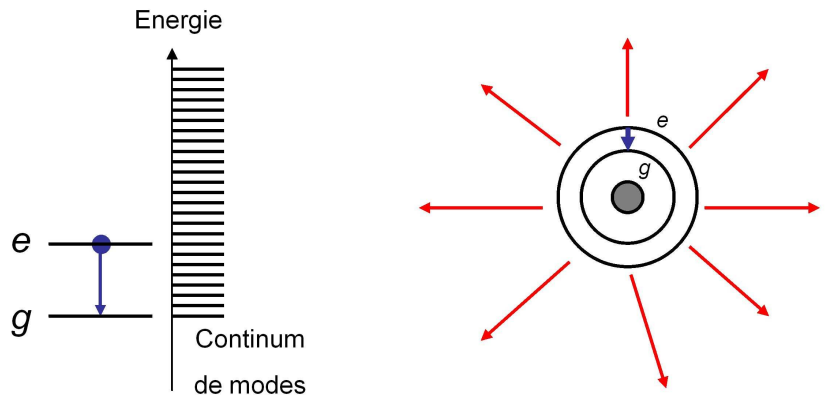


FIGURE 1.1 – Représentation d'un émetteur dans l'espace libre et de son émission spontanée.

Considérons ici un émetteur modélisé par un système à deux niveaux (figure 1.1), dans l'espace libre celui-ci voit un continum de modes, son taux d'émission spontanée est donné alors par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_{ES} = \frac{2\pi}{\hbar^2}\rho\left(\omega_E\right)\left|\langle e,0|\vec{d}.\vec{E}|g,1\rangle\right|^2 \tag{1.1}$$

Avec $\vec{d}$ le dipôle de l'émetteur, $\vec{E}$ le champ électrique du vide induisant l'émission spontanée, évalué à la position de l'émetteur et $\rho\left(\omega_E\right)$ la densité de modes optiques.

Les solutions propres de l'équation de Maxwell sont des ondes planes. Le champ électrique s'écrit sous la forme :

$$E_k(r) = E_0 e^{i(k.r)} \tag{1.2}$$

On isole fictivement un cube de côté L et de volume V, les conditions aux limites périodiques dans l'espace réciproque permettent d'écrire le vecteur d'ondes tel que : $k_{x,y,z} = n_{x,y,z}2\pi/L_{x,y,z}$ avec $n_{x,y,z} \in \mathbb{N}$. La caractéristique de dispersion s'écrit simplement :

$$\omega = \frac{c}{n}|k| \tag{1.3}$$

$$\text{Soit : } \omega d\omega = \left(\frac{c}{n}\right)^2 kdk \tag{1.4}$$

Pour un milieu d'indice homogène, la densité de modes correspondant au nombre de modes entre ω et $\omega + d\omega$ s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \rho(\omega)d\omega &= \frac{4\pi k^2 dk}{\left(\frac{2\pi}{L}\right)^3} \\ \rho(\omega)d\omega &= \frac{V k^2 dk}{2\pi^2} \end{aligned} \tag{1.5}$$

La densité de modes dans l'espace libre vaut donc :

$$\rho(\omega) = \frac{\omega^2 V n^3}{\pi^2 c^3} \tag{1.6}$$

D'après les équations de Maxwell, la densité d'énergie électromagnétique est uniforme pour un mode de l'espace libre. Si l'énergie ξ dans un mode est celle d'un photon, $\hbar\omega$, l'amplitude du champ électrique peut donc s'écrire :

$$|E| = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 n^2 V}} \tag{1.7}$$

car :

$$\xi = \iiint n^2 \epsilon_0 |\vec{E}|^2 d^3\vec{r} \tag{1.8}$$

A partir des expressions précédentes on peut ré-écrire la règle d'or de Fermi. Cependant il faut prendre en compte la polarisation aléatoire des modes de l'espace libre par rapport au dipôle, c'est pourquoi on introduit le cœfficient 1/3. On trouve alors le taux d'émission dans l'espace libre :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} &= \frac{2\pi}{\hbar^2}\frac{\omega^2 n^3 V}{\pi^2 c^3}\frac{d^2}{3}\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V} \\ \frac{1}{\tau} &= \frac{n^3\omega^3 d^2}{3\pi\hbar\epsilon_0 c^3} \end{aligned} \tag{1.9}$$

Cette analyse montre que l'émission spontanée n'est pas un phénomène qui dépend de l'émetteur seul ; il résulte en effet du couplage entre l'émetteur et les modes du rayonnement électromagnétique. De ce fait, on va pouvoir modifier et contrôler l'émission spontanée de l'émetteur en jouant sur son environnement électromagnétique.

On peut par exemple facilement modifier la densité de mode vue par l'émetteur en changeant l'indice du milieu ou la dimension du système électromagnétique. D'autre part, si on couple l'émetteur à un mode unique, on sort du champ d'application de la règle d'or de Fermi ; on rentre alors dans le régime dit de couplage fort où l'émission spontanée devient un phénomène réversible.

On voit donc que l'on peut avoir l'ambition de contrôler l'émission spontanée, par exemple pour des applications en optoélectronique. Pour cela, il faut au préalable fabriquer des structures capables de confiner les photons à 2D, 1D ou 0D.

1.2 Comment confiner la lumière ?

Une méthode pour confiner la lumière est d'utiliser une cavité. Dans la suite nous exposerons les paramètres clefs des cavités puis nous présenterons quelques microcavités optiques solides, pour les longueurs d'ondes du visible ou du proche infrarouge.

1.2.1 Paramètres clefs d'une cavité

Une cavité optique réalise à la fois les fonctions de confinement spatial et de stockage temporel de la lumière. De ce fait, on caractérise ses performances par deux paramètres primordiaux : son volume effectif et son facteur de qualité.

Volume effectif

V_{eff}, le volume modal ou volume effectif, traduit la capacité qu'a la cavité à confiner le champ électromagnétique dans un volume restreint. Dans un cavité réelle, le champ du vide (énergie dans le mode = $\hbar\omega_0/2$) est inhomogène et maximal au(x) ventre(s) du mode, le volume effectif correspond alors au volume qu'occuperait le champ du vide s'il était uniformément réparti et égal à sa valeur maximale dans la cavité (schéma 1.2). Il est défini par :

$$V_{eff} = \frac{\int\int\int_{espace} |\vec{E}|^2 d^3\vec{r}}{|\vec{E}_{max}|^2} \tag{1.10}$$

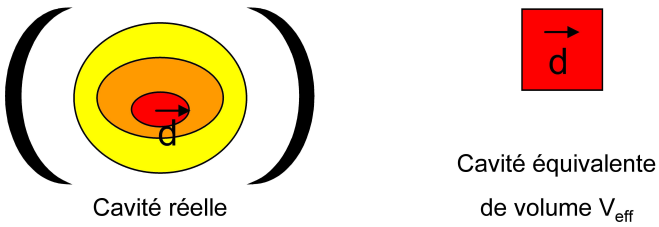


FIGURE 1.2 – Schéma de principe du volume effectif.

On notera que de façon générale, V_{eff} est nettement plus petit que le volume géométrique de la microcavité.

Facteur de qualité

Q, le facteur de qualité caractérise la capacité de la cavité à stocker l'énergie électromagnétique et est défini comme pour tout résonateur, par l'expression suivante :

$$Q = \frac{2\pi\,(\text{Energie stockée})}{\text{Energie dissipée par cycle}} \tag{1.11}$$

L'énergie stockée dans la cavité décroît exponentiellement en fonction du temps ; τ_p désigne le temps de vie du photon dans la cavité et correspond au temps caractéristique d'amortissement de l'énergie stockée. Si on écrit $\xi(t)$ l'onde stockée dans la cavité, on a :

$$E_{\text{stockée}} \propto e^{-t/\tau_p} \propto |\xi(t)|^2 \tag{1.12}$$

Soit :

$$\xi(t) \propto e^{-t/2\tau_p} e^{-i\omega_0 t} \tag{1.13}$$

Cette onde s'écrira alors dans l'espace de Fourier :

$$\xi(\omega) = \int_0^{+\infty} e^{-t/2\tau_p} e^{i\omega_0 t} e^{-i\omega t} dt \tag{1.14}$$

Soit :

$$\xi(\omega) = \frac{1}{\dfrac{1}{2\tau_p} + i(\omega_0 - \omega)} \tag{1.15}$$

La décomposition spectrale du mode, proportionnelle à $|\xi(\omega)|^2$, est donc une lorentzienne centrée en ω_0 et de largeur à mi-hauteur $\Delta\omega = 1/\tau_p$ (figure 1.3(b)) puisque :

$$|\xi(\omega)|^2 = \frac{1}{\dfrac{1}{4\tau_p^2} + (\omega_0 - \omega)^2} \tag{1.16}$$

Si on considère que le temps de stockage des photons en τ_p est grand par rapport à la période du cycle optique $T = 2\pi/\omega$, (figure 1.3(a)) alors on ne perd que $T/\tau_p = 2\pi/\omega\Delta\omega$ durant cette période. On a :

$$Q = \frac{2\pi E_{\text{stockée}}}{E_{\text{stockée}} \dfrac{2\pi}{\omega} \Delta\omega} \tag{1.17}$$

$$Q = \omega\tau_P = \frac{\omega}{\Delta\omega} \tag{1.18}$$

Le facteur de qualité Q est alors simplement relié au temps de stockage de la lumière dans la cavité et peut être simplement dérivé à partir de la réponse spectrale de la cavité. On notera d'autre part que pour une fréquence de résonance donnée, Q est simplement proportionnel au temps de stockage de la lumière dans la cavité, τ_p.

1.2.2 Quelques géométries de confinement photonique

Cavités planaires

Les cavités planaires sont constituées par deux miroirs plans et parallèles, séparés par une distance de l'ordre de la longueur d'onde. Les deux miroirs peuvent être séparés par du vide (cas des expériences sur les atomes) ou une fine couche diélectrique ou semiconductrice. Il ne s'agit pas de microcavités à trois dimensions, le confinement n'est que dans une direction. Elles peuvent cependant permettre de modifier l'émission spontanée d'un émetteur.

Il existe principalement deux types de microcavités planaires à base de miroirs métalliques ou de miroirs de Bragg. Les miroirs métalliques présentent une réflectivité de l'ordre de 95% et leurs facteurs de qualité sont très faibles. Par exemple pour une cavité $\lambda/2$, on obtient $Q = 2\pi\ 1/0.1 \sim 60$. L'inconvénient majeur de ces miroirs est leur caractère absorbant aux longueurs d'ondes visibles et proches infrarouges. D'une part cela limite la réflectivité et d'autre part on ne peut obtenir une bonne extraction des photons résonants qui sont principalement absorbés par les

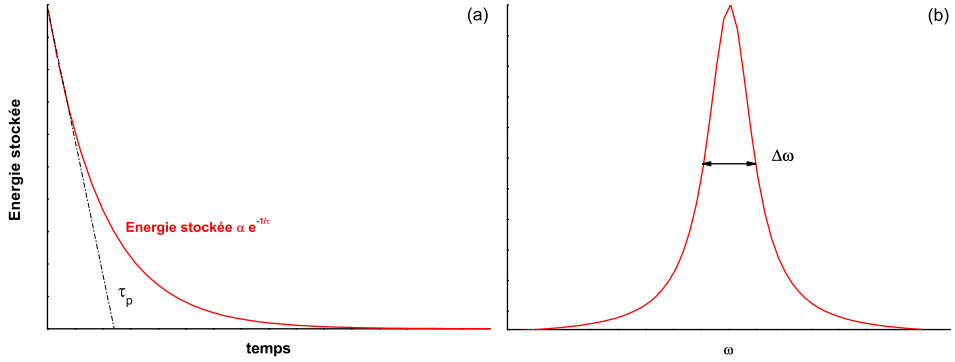


FIGURE 1.3 – (a) Energie stockée en fonction du temps et (b) en fonction de la pulsation.

miroirs. C'est pour ces raisons que se sont développés des miroirs diéléctriques pour les études optiques et optoéléctroniques.

En effet, les miroirs de Bragg permettent d'obtenir une très haute réfléctivité ($> 99.9\%$) et un fort facteur de qualité (> 100000). Les miroirs de Bragg sont constitués d'empilements de couches de diélectriques d'indices différents et d'épaisseurs $\lambda/4n$. Les ondes réfléchies sont en phase et donnent lieu à des interférences constructives. Ces cavités à miroirs de Bragg présentent l'avantage d'être compatibles avec les méthodes standard de croissance bi-dimensionnelle, notamment les microcavités planaires AlAs/GaAs dont la croissance des miroirs et de la zone active peut être réalisée en une fois par épitaxie (section 2.2.5). Cependant, ces cavités ne permettent pas d'obtenir une modification du taux d'émission spontanée de plus de $\pm 20\%$ notamment à cause de la limite d'acceptance angulaire des miroirs.

Microcavités semiconductrices à confinement tridimensionnel

Nous donnons ici un bref aperçu des principales microcavités semiconductrices et leurs performances : les microdisques, les micropiliers (ceux-ci seront plus détaillés dans le chapitre 4) et les cristaux photoniques.

Les microdisques : Les microdisques sont des cavités cylindriques où prennent place des modes dits modes de galerie. A la périphérie du disque, le contraste à l'interface GaAs-air permet le confinement des modes par réflexion totale interne. De ce fait, le volume effectif V_{eff} des modes de galerie est beaucoup plus petit que le volume du disque. Pour un diamètre de 2 μm, V_{eff} est de l'ordre de $4(\lambda/n)^3$. Les pertes associées à ces résonances peuvent être très faibles et par conséquent les facteurs de qualité sont très élevés, cependant, expérimentalement, ceux-ci sont limités par des défauts introduits pendant la fabrication. Ainsi, expérimentalement l'état de l'art pour des microdisques de GaAs se situe vers $Q \sim 500000$ [148] pour des microdisques vides et $Q \geq 20000$ [98], [54] pour des microdisques contenant des boîtes quantiques. Ces différences restent en partie incomprises mais plusieurs hypothèses peuvent être retenues : l'absorption résiduelle de

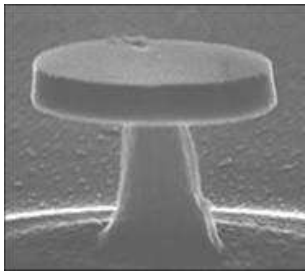


FIGURE 1.4 – Image MEB d'une cavité microdisque en GaAs [125].

la couche de mouillage, une diffusion induite par les boîtes quantiques et les fluctuations d'indice de réfraction qu'elles introduisent [72]. Dans ces structures, la lumière est émise par la tranche du disque ce qui rend la collection très délicate et représente donc l'inconvénient majeur de ces cavités. Des solutions existent et reposent sur le couplage de la lumière véhiculée par le mode de galerie à un guide ou une fibre placée à proximité de l'onde évanescente.

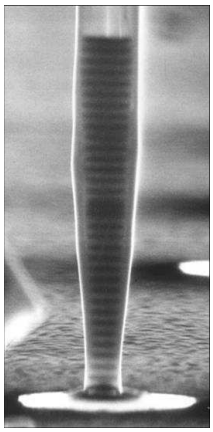


FIGURE 1.5 – Image MEB d'une cavité micropilier [61].

Les micropiliers : Un micropilier est un guide d'ondes cylindrique délimité à chaque extrémité par un miroir de Bragg. Il est obtenu par gravure d'une cavité planaire. C'est à la fin des années 80 que Jewell et al [82] ont introduit l'idée de microstructurer latéralement des cavités planaires à miroirs de Bragg afin de bénéficier des effets de confinement tridimensionnel du champ électromagnétique. Les études systématiques des modes résonants de ces objets ont été initiées au milieu des années 90 par Gérard et al [57] et Reithmaier et al [128]. Dans les micropiliers, les modes résonants sont guidés le long de l'axe du cylindre par réflexion totale interne tandis que les miroirs de Bragg confinent le champ dans la direction de propagation.

Les volumes modaux accessibles sont faibles, de l'ordre de $5(\lambda/n)^3$ pour un diamètre de 1 μm [61]. En termes de facteurs de qualité l'état de l'art se situe vers 165000 pour un diamètre de 4 μm [130]. Un résonateur optimal devrait présenter à la fois le facteur Q le plus élevé possible et le volume le plus petit possible afin d'obtenir une exaltation importante du taux d'émission spontanée. Pour les micropiliers, ces deux paramètres ne sont pas totalement indépendants. Si on regarde la figure 1.6 pour des diamètres grands devant la longueur d'onde du mode (a),

le volume modal est relativement étendu et le champ bien confiné à l'intérieur du résonateur. Une réduction du diamètre va conduire à une réduction du volume du fait de l'augmentation du confinement latéral. Cependant le champ électrique va prendre des valeurs non nulles sur les flancs du résonateur (c). Le mode pourra donc "sentir" la rugosité de surface et autres imperfections de fabrication, introduisant donc des pertes optiques et une dégradation du facteur de qualité.

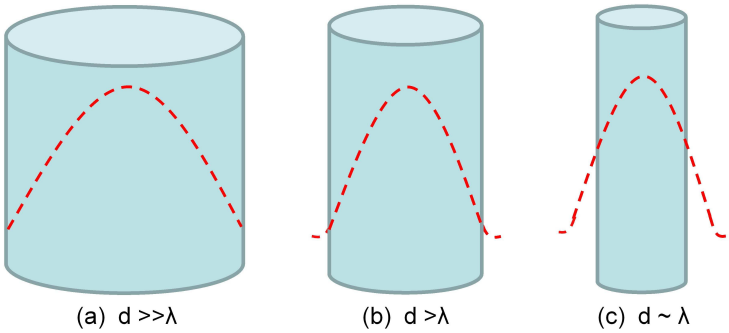


FIGURE 1.6 – Représentation schématique de l'intensité du champ électrique le long de la direction radiale dans un résonateur cylindrique.

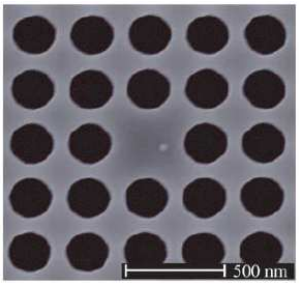


FIGURE 1.7 – Image MEB d'une cavité cristal photonique définie dans un membrane de GaAs [10].

Les cristaux photoniques [99], [163], [162] Les cristaux photoniques formés d'un arrangement périodique de trous, utilisent une variation périodique de l'indice de réfraction entre le semiconducteur et l'air pour créer des bandes interdites pour le champ électromagnétique, permettant ainsi de façonner la densité d'états du champ électromagnétique. La période de ces structures est de l'ordre de la longueur d'onde des photons. En rompant cette périodicité, en ajoutant ou en enlevant localement de la matière par exemple, on peut faire apparaître un ou des modes associés à ce défaut dans la bande interdite photonique.

Du fait des grandes difficultés technologiques associées à la fabrication des cristaux photoniques tridimensionnels, la plupart des études sont aujourd'hui conduites sur des cristaux photoniques bidimensionnels définis dans une membrane suspendue dans l'air ou reposant sur une couche d'oxyde. Leur fabrication reste très complexe de par la taille, la précision et la reproductibilité avec lesquelles les motifs doivent être définis. L'avantage de ce sytème est la possibilité d'obtenir de grands facteurs de qualité, de l'ordre de 6.10^5 [2], [145], et de faibles volumes modaux, de l'ordre de $1.2(\lambda/n)^3$. Néanmoins, le contrôle du diagramme de rayonnement de la cavité est en pratique un problème délicat.

1.3 Contrôle du taux d'émission spontanée en cavité

Nous présenterons dans cette partie les modifications induites sur l'émission spontanée d'un émetteur intégré dans un système photonique de basse dimensionnalité (2D,1D,0D). Nous traiterons d'abord les cas 2D et 1D, pour lesquels le système possède un continum de modes et pour lesquels la règle d'or de Fermi s'applique toujours. Nous aborderons ensuite le cas plus délicat de la cavité 0D, à modes discrets pour laquelle le système peut être en régime de couplage faible ou de couplage fort suivant les propriétés du couplage émetteur-cavité.

1.3.1 Confinement bidimensionnel

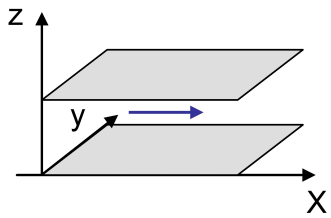


FIGURE 1.8 – Emetteur dans une cavité planaire : schéma du système étudié.

On considère ici une cavité planaire résonante délimitée par deux miroirs plans idéaux et qui contiennent un émetteur placé à égale distance des miroirs et dont le dipôle est horizontal (figure 1.8). Les modes optiques constituent les solutions propres des équations de Maxwell, dans notre cas, on trouve deux types de solutions avec les conditions de type Born et Van Karmann pour les deux directions du plan x et y :

$$k_{x,y} = n_{x,y}\frac{2\pi}{L_{x,y}} \text{ avec : } n_{x,y} \in \mathbb{N} \tag{1.19}$$

– Pour les modes TM :

$$\vec{E} = e^{ik_{\parallel}r_{\parallel}} \begin{pmatrix} -ik_x k_z \sin(k_z z) \\ -ik_y k_z \sin(k_z z) \\ (k_x^2 + k_y^2)\cos(k_z z) \end{pmatrix} \tag{1.20}$$

Avec la condition de quantification suivante : $k_z = n_z \frac{\pi}{L_z}$ pour $n_z \in \mathbb{N}$.

– Pour les modes TE :

$$\vec{E} = e^{ik_{\parallel}r_{\parallel}} \begin{pmatrix} k_y \sin(k_z z) \\ -ik_x \sin(k_z z) \\ 0 \end{pmatrix} \tag{1.21}$$

Avec la condition de quantification suivante : $k_z = n_z \frac{\pi}{L_z}$ pour $n_z \in \mathbb{N}^*$.

La caractéristique de dispersion s'écrit alors pour une sous-bande TE ou TM ;

$$\omega = \frac{c}{n}\sqrt{k_{\parallel}^2 + k_z^2} \tag{1.22}$$

$$\text{Soit } \omega d\omega \left(\frac{c}{n}\right)^2 = k_{\parallel} dk_{\parallel} \tag{1.23}$$

On peut ainsi trouver la densité de modes par sous-bandes :

$$\rho(\omega)d\omega = \frac{2\pi k_{\parallel} dk_{\parallel}}{\frac{4\pi^2}{S}} \tag{1.24}$$

Soit :

$$\rho(\omega) = \frac{S\omega}{2\pi}\frac{c^2}{n^2} \tag{1.25}$$

Avec $S = L_x L_y$. De plus, le facteur d'exaltation dû à la distribution du champ et à l'orientation du dipôle par rapport au champ vaut :

– Pour les modes TM : $2\frac{k_z^2}{|k|^2}\frac{k_x^2}{k_x^2+k_y^2}\sin^2(n_z\frac{\pi}{2}) = \frac{k_z^2}{|k|^2}$ en moyenne si n_z impair, 0 sinon.

– Pour les modes TE : $2\frac{k_y^2}{k_x^2+k_y^2}\sin^2(n_z\frac{\pi}{2}) = 1$ en moyenne si n_z impair, 0 sinon.

Le taux d'émission spontanée pour un dipôle horizontal rapporté à la valeur du matériau massif vaut alors :

$$\frac{\tau_{3D}}{\tau_{2D}} = \frac{(3S\omega n^2)/(2\pi c^2)}{(S.L\omega^2)/(\pi^2)\,(n/c)^3}\left[\sum_{\substack{n_z\in\mathbb{N}^* \\ impair}} 1 + \frac{n_z^2\pi^2/L^2}{|k|^2}\right] \tag{1.26}$$

On pose $\eta = \frac{\omega n L}{\pi c}$. On trouve alors :

$$\frac{\tau_{3D}}{\tau_{2D}} = \frac{3}{2\eta}\left[\sum_{\substack{n_z\in\mathbb{N}^* \\ impair \\ n_z<\eta}} 1 + \frac{n_z^2}{\eta^2}\right] \tag{1.27}$$

On remarque que le mode TE_0 n'est pas couplé.

La figure 1.9 représente le taux d'émission spontanée défini par l'équation 1.27. On voit que l'on peut obtenir une exaltation d'un facteur 3 par rapport à l'espace libre pour η =1 ce qui correspond à une cavité d'épaisseur $\lambda/2n$. D'une façon générale, l'émission spontanée est exaltée pour $\eta \in [2n+1, 2n+2[$ et inhibée pour $\eta \in [2n, 2n+1[$. On notera enfin que l'amplitude de fluctuation du taux d'émission spontanée autour de τ_{3D} décroît lorsque l'ordre de la cavité η croît. On retrouve de ce fait, le taux d'émission spontanée de l'émetteur dans le matériau massif, τ_{3D}, à la limite des cavités très épaisses.

1.3.2 Confinement unidimensionnel

Nous prenons maintenant le cas d'un fil photonique qui procure un confinement 1D idéal (figure 1.10).

On est ici en présence d'un mode guidé de type :

$$\vec{E}\,(x,y)\,e^{i(\omega t-\beta z)} \tag{1.28}$$

Où β est la constante de proportionnalité du mode. On notera que le dipôle étant sur l'axe pour le mode guidé, E_y et E_z sont nuls à la position de l'émetteur (voir section 3.3.1).

On définit l'indice effectif du mode par :

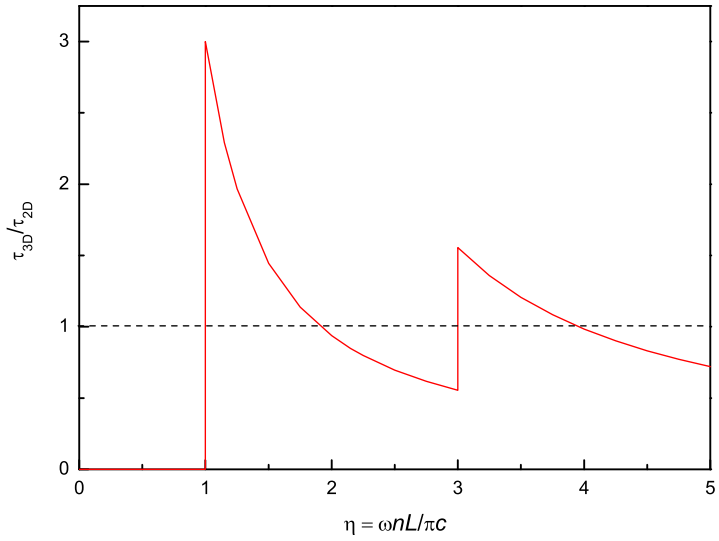


FIGURE 1.9 – Représentation du taux d'émission spontanée en fonction de η.

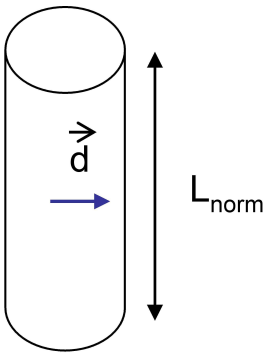


FIGURE 1.10 – Emetteur dans une cavité unidimentionnelle cylindrique : schéma du système étudié.

$$n_{eff} = \beta \frac{c}{\omega} \tag{1.29}$$

On considère des conditions de type Born et Van Karmann. Soit, pour tout $\vec{r}$, $\vec{E}(\vec{r} + L_{norm}) = \vec{E}(\vec{r})$, $e^{i\beta L_{norm}} = 1$ et $\beta = m2\pi/L_{norm}$ pour tout $m \in \mathbb{Z}$.

La densité de modes au voisinage de ω correspondant au nombre de modes dans l'intervalle de fréquences $d\omega$ se déduit de :

$$d\beta = \frac{n_{eff}}{c} d\omega + \frac{\omega}{c} dn_{eff} \tag{1.30}$$

La densité de mode s'écrit alors :

$$\rho(\omega) = 4\frac{L_{norm}}{2\pi}\left[\frac{n_{eff}}{c} + \frac{\omega}{c}\frac{dn_{eff}}{d\omega}\right] \tag{1.31}$$

où le facteur 4 provient des dégénérescences de polarisation et entre modes contre-propageants.

Par analogie avec le volume effectif défini précédemment, on peut définir la surface effective comme telle :

$$S_{eff} = \frac{\int\int n^2|E|^2}{n^2|E_{max}|^2} \tag{1.32}$$

La figure 1.11 montre l'évolution de la surface effective et de l'indice effectif en fonction du diamètre. La surface effective diminue radicalement jusqu'à un minimum pour une valeur de 0.25 puis réaugmente très mollement. Par analogie avec le volume effectif, on peut conclure que pour cette valeur minimum on aura le meilleur couplage au mode fondamental. L'indice effectif reflète le degré de confinement du mode résonant, il est d'autant plus efficace que la différence d'indices entre l'extérieur et l'intérieur est importante. Ici, l'indice effectif reste proche de 1 jusqu'à un diamètre normalisé d/λ de 0.2 puis augmente rapidement pour tendre vers la valeur du GaAs massif. Le mode est donc mieux confiné au delà de 0.2.

Le taux d'émission spontanée dans le mode guidé HE_{11} vaut alors :

$$\frac{\tau_{3D}}{\tau_{HE_{11}}} = \frac{3}{4\pi}\frac{n_{eff}}{n}\frac{(\lambda/n)^2}{S_{eff}}\left[1 + \frac{d}{\lambda n_{eff}}\frac{d(n_{eff})}{d(d/\lambda)}\right] \tag{1.33}$$

La figure 1.12 montre l'évolution de ce taux d'émission spontanée pour une variation de d/λ. On voit que pour un faible rapport diamètre/longueur d'onde, le taux d'émission spontanée est quasiment nul. Nous verrons au chapitre 3, que cet effet est du au déconfinement du mode guidé à l'extérieur du guide. Pour des valeurs intermédiaires, on observe un maximum du taux d'émission puis une diminution lente. Il est donc possible d'inhiber de façon contrôlée l'émission spontanée dans cette géométrie en variant son diamètre. Ainsi, un émetteur placé dans un fil photonique présente un taux d'émission spontanée dans le mode guidé fondamental comparable à celui qu'il aurait dans du GaAs massif, si le diamètre du fil est optimisé (voir section 3.3.1).

La figure 1.13 présente la dépendance du taux d'émission spontanée dans le mode et du taux d'émission spontanée total en fonction du diamètre. On remarque que pour un fil monomode, d/λ <0.28, le taux d'émission spontanée dans les modes non-guidés est très faible par rapport à $1/\tau_{3D}$. On s'attend donc à observer une forte inhibition de l'émission spontanée pour d/λ <0.18 (faible émission spontanée dans le mode guidé **et** dans les modes non-guidés). De plus, pour un diamètre normalisé d/λ de l'ordre de 0.2 à 0.24, on s'attend à combiner un bon couplage de l'émetteur dans le mode guidé et une forte inhibition de l'émission spontanée dans les autres

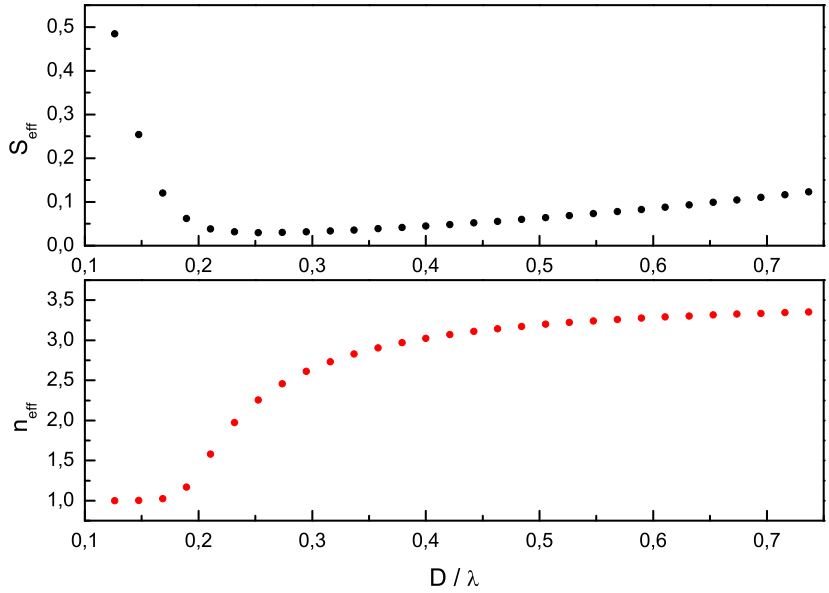


FIGURE 1.11 – Evolution de la surface effective (noir) et de l'indice effectif (rouge) du mode fondamental d'un fil photonique de GaAs (n=3.5) en fonction de son diamètre.

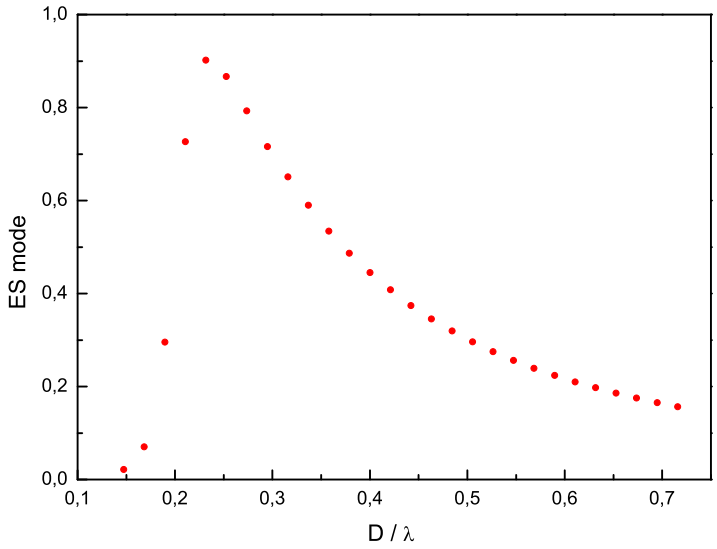


FIGURE 1.12 – Taux d'émission spontanée normalisé $\tau_{3D}/\tau_{HE_{11}}$ dans le mode fondamental en fonction du diamètre d'un fil photonique de GaAs.

modes. Nous étudierons expérimentalement ces effets au chapitre 3 et nous montrerons leur grand intérêt pour le développement d'une source de photons uniques de très haute efficacité.

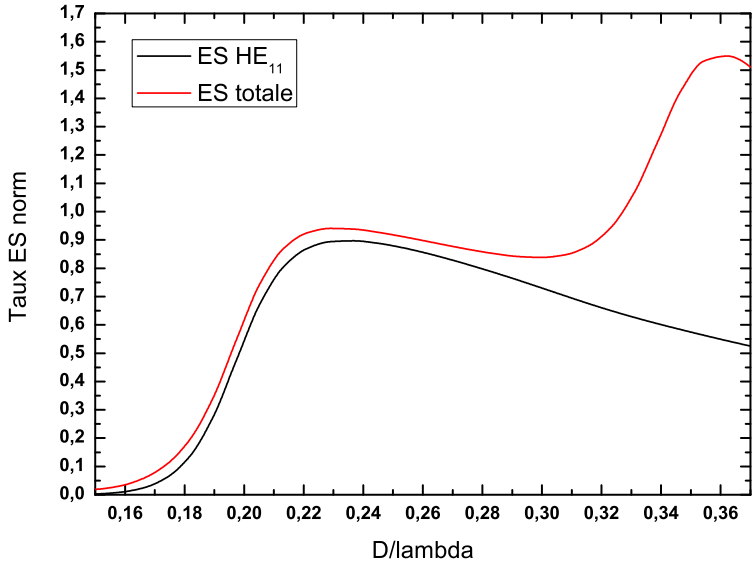


FIGURE 1.13 – Taux d'émission spontanée normalisés dans le mode fondamental et global, en fonction du diamètre du fil photonique.

1.3.3 Microcavité 0D

La description de l'interaction cavité/émetteur peut être abordée comme le couplage de trois sous-systèmes : l'émetteur, le mode parfait confiné de la cavité et un continum de modes extérieurs [52]. La figure 1.14 illustre ce système. L'émetteur, ici un atome, et le mode confiné sont couplés par une constante W_1 tandis que le mode confiné est couplé avec le continum de modes externes par W_2. Ce schéma présente l'avantage de montrer avant tout calcul, la différence entre le couplage faible et le couplage fort. Si le terme de couplage W_2 est négligeable devant W_1, le système peut être décrit comme les états propres du système atome/cavité, on introduit alors la relaxation vers le continum comme une perturbation. Si la cavité est parfaitement isolée (miroirs parfaits), on est en présence de modes discrets. Il s'agit ici du régime de couplage fort, ce régime sera décrit dans la partie 1.5. A contrario dans le cas du couplage faible, si W_2 domine, alors le système s'écrit avec les états propres du système cavité/continum.

Régime de couplage faible

Le régime de couplage faible revient à écrire les états propres du système (mode confiné)+(continum de modes), c'est le couplage entre un état discret et un continum, celui-ci peut être décrit par le formalisme de Fano [43]. La densité d'états du système couplé est décrit par une lorentzienne 1.15.

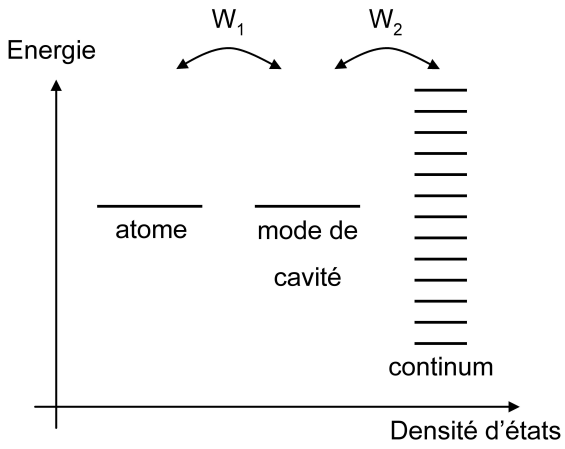


FIGURE 1.14 – Couplages d'un atome à un mode de cavité (W_1) et d'un mode de cavité à un continum (W_2) .

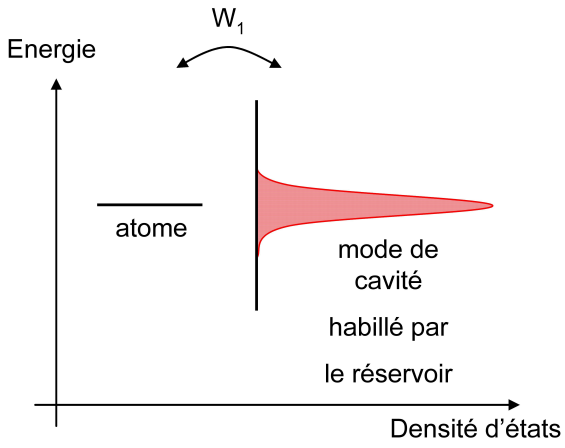


FIGURE 1.15 – Couplage faible d'un atome en cavité.

On modélise l'émetteur par un système à deux niveaux, l'état excité initial g et l'état fondamental e. L'émission spontanée correspond à une transition de l'état excité initial $|e,0\rangle$ avec zéro photon dans le mode, et $|g,1\rangle$ à l'état fondamental et un photon dans le mode. Son taux d'émission spontanée peut alors être donné par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar^2}|\langle e,0| - \vec{d}.\vec{E}|g,1\rangle|^2 \rho\,(\omega) \tag{1.34}$$

Avec Γ le taux d'émission spontanée, τ le temps de vie de l'émetteur, $\vec{d}$ et $\vec{E}$ le dipôle et le champ électrique, ρ la densité d'états à la fréquence ω.

On considère un mode unique de cavité à la fréquence ω_c de largeur à mi-hauteur $\Delta\omega_c$ et donc de facteur de qualité $Q = \omega_c/\Delta\omega_c$. Dans ce cas, la densité de modes vue par l'émetteur est une fonction lorentzienne normalisée :

$$\rho(\omega) = \frac{2}{\pi\Delta\omega_c}\frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega-\omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \tag{1.35}$$

Si on considère un émetteur idéal, alors il se situe en parfait accord spectral avec le mode de la cavité soit $\omega = \omega_c$, la densité de modes se réduit alors à :

$$\rho(\omega) = \frac{2}{\pi\Delta\omega_c} = \frac{2Q}{\pi\omega_c} \tag{1.36}$$

D'après la définition du volume effectif de la cavité, l'amplitude du champ électrique au ventre du mode s'écrit :

$$E_{max} = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 n^2 V_{eff}}} \tag{1.37}$$

Le taux d'émission spontanée peut donc s'écrire :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2d^2Q}{\hbar\epsilon_0 V_{eff}} \tag{1.38}$$

Si on suppose le dipôle parallèle au champ électrique, le préfacteur lié à la polarisation ici vaut 1. De plus, on a vu que le taux d'émission spontanée dans l'espace libre vaut :

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{d^2\omega}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3} \tag{1.39}$$

L'exaltation du taux d'émission spontanée par rapport à l'espace libre est par conséquent :

$$\frac{\tau_0}{\tau} = \frac{6\pi Q}{V_{eff}}\left(\frac{c}{n\omega}\right)^3 \tag{1.40}$$

On peut ainsi retrouver l'expression introduite par Purcell dès 1946 [126] pour estimerl'exaltation du taux d'émission spontanée en cavité, traditionnellement appelée "facteur de Purcell" et défini par $\Gamma = \Gamma_0 F_P$:

$$F_P = \frac{\tau_0}{\tau} = \frac{3}{4\pi^2}\frac{Q\,(\lambda/n)^3}{V_{eff}} \tag{1.41}$$

Il est important de noter que F_P décrit l'exaltation de l'émission spontanée d'un émetteur idéal (monochromatique, placé au ventre du champ, en résonance avec le mode, de dipôle aligné

avec le vecteur polarisation). En ce sens, F_P est donc un facteur de mérite de la microcavité qui estime l'exaltation de l'émission spontanée maximale que celle-ci peut obtenir. Regardons le cas d'une cavité idéale (figure 1.16(a)), on voit aisément que si un émetteur monochromatique est placé en résonance, c'est à dire en ω tel que $\rho(\omega)$ soit maximal (flèche bleue), alors on a une exaltation de l'émission spontanée. A contrario si cet émetteur est hors résonance, on a une inhibition de l'émission spontanée.

Cependant pour une cavité semiconductrice la densité de modes est différente. Il existe un ensemble de modes discrets au dessus d'un continum de modes de fuites (figure 1.16(b)). Les effets d'exaltation et d'inhibition de l'émission spontanée dépendront de ces modes de fuites notés γ. Le taux d'émission spontanée sera alors donné par $\Gamma = \Gamma_{\text{cav}} + \gamma$; le facteur d'exaltation en résonance sera $F_P + \gamma$, tandis que le taux d'inhibition pour un émetteur non couplé au mode sera γ.

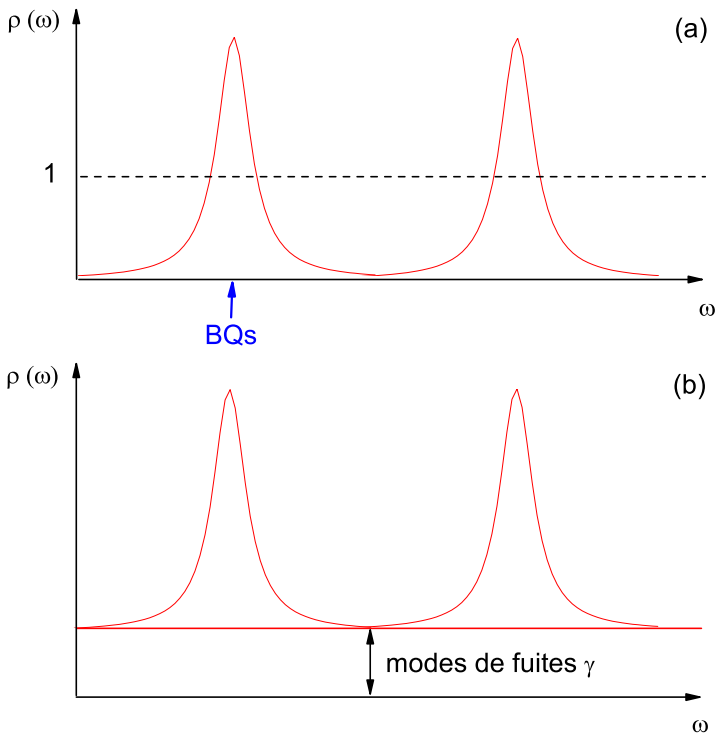


FIGURE 1.16 – Densités de modes pour une cavité 0D idéale (a) et réelle (b).

1.3.4 Conclusion

Ces descriptions du comportement du taux d'émission spontanée permettent de montrer que l'on peut contrôler l'exaltation ou l'inhibition de l'émission spontanée dans le régime de couplage faible. En effet, quelque soit le confinement considéré, 2D, 1D ou 0D, il existe des configurations du système couplé émetteur-cavité qui favoriseront l'exaltation ou l'inhibition de l'émission spontanée.

1.4 Quelques résultats expérimentaux : Exaltation et Inhibition de l'émission spontanée

1.4.1 Exaltation de l'émission spontanée

Première démonstration avec des atomes en cavité

La première observation d'exaltation de l'émission spontanée fut observée par le groupe de Haroche et al avec des atomes en cavité [63]. Cette expérience fut réalisée sur un atome de Rydberg de Na dans une cavité définie par des miroirs supraconducteurs en nobium avec une fréquence de résonance de 340 GHz et de facteur de qualité de l'ordre de 10^6. L'idée, illustrée par la figure 1.17, est d'envoyer un jet d'atomes dans un état donné dans la cavité et de détecter leur état en sortie. C'est en variant la distance entre les miroirs que la cavité est accordée en résonance avec la transition vers les niveaux les moins excités $22P_{1/2}$ et $22P_{3/2}$. A la résonance, une augmentation par quatre du signal atomique est observée par rapport au cas non résonant. Ils montrent que la probabilité d'émission spontanée due à la transition 23S→22P du Na est augmentée dans une cavité de fort Q par rapport à l'espace libre de Γ_0=150s^{-1} à Γ_{cav}=8.10^{4}s^{-1}. Ils obtiennent ainsi une exaltation Γ_{cav}/Γ_0=530.

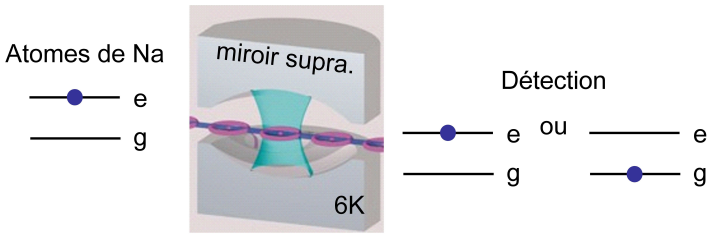


FIGURE 1.17 – Description de la mesure de Haroche et al.

Suite aux résultats obtenus sur les atomes, des efforts ont été fournis pour observer aussi l'effet Purcell dans le domaine des fréquences optiques avec des microcavités diélectriques et semiconducrices. C'est ce qui contribua au développement des microcavités optiques et des cristaux photoniques.

Cavités semiconductrices planaires

Dans un premier temps, se sont développées des cavités bidimensionnelles dites cavités planaires. Dans leurs travaux, le groupe d' I. Abram [24] utilise des cavités semiconductrices à miroirs métalliques contenant un puits quantique d'InGaAs placé au centre de la cavité. Du fait de la contrainte, ce puits d'InGaAs dans GaAs présente un dipôle orienté dans le plan des couches. Si on regarde les mesures de taux d'émission spontanée (figure 1.18) de ces travaux, réalisés à température ambiante, les auteurs observent en fonction de l'épaisseur de la cavité une exaltation ou une inhibition de l'émission spontanée du puits quantique. On note cependant des différences importantes par rapport à une cavité planaire définie par des miroirs idéaux : le taux d'exaltation maximum est plus élevé (4.5) ; le taux d'exaltation maximal est obtenue pour une épaisseur de cavité plus faible ($0.7\lambda/2n$) et le taux d'inhibition est très modeste (<30%), en particulier dans la zone de cavité très faible où on attend une inhibition totale pour une cavité parfaite. Ces résultats sont liés aux propriétés des miroirs d'Ag employés dans l'expérience. Le saut de phase à la réflexion fait que la résonance est obtenue pour une épaisseur de cavité

plus faible, qui concentre d'avantage le champ et procure une exaltation plus grande de l'émission spontanée. L'absorption dans les miroirs et le couplage aux modes de plasmons sont responsables du faible cœfficient d'inhibition de l'émission spontanée. Notons qu'une description réaliste des miroirs permet de rendre parfaitement compte des résultats expérimentaux (figure 1.18).

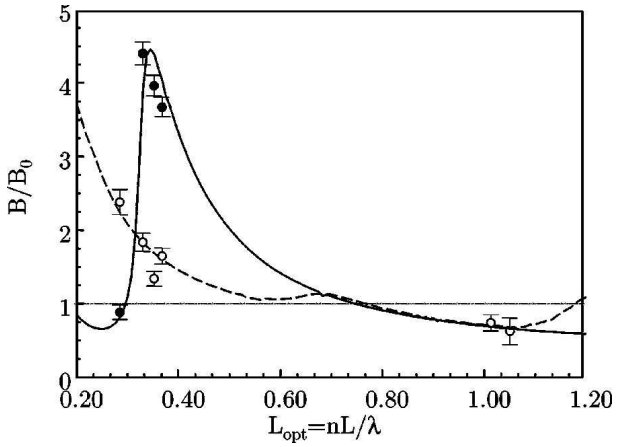


FIGURE 1.18 – Variation du taux d'émission spontanée en fonction de l'épaisseur de l'espaceur expérimental et théorique : (a) pour une demi cavité (cercles vides) et modèle (pointillés) ; (b) cavité entière (cercles pleins) et modèle (trait plein) [24].

D'autres équipes ont étudié le taux d'émission spontanée d'atomes de terres rares [160] ou de boîtes quantiques dans des cavités planaires à miroirs de Bragg [13]. Du fait de l'extension du mode dans les miroirs, l'ordre effectif d'une telle cavité est grand devant 1 ($4\lambda/n$ pour des miroirs GaAs/AlAs)[13]. De ce fait conformément au calcul présenté paragraphe 1.3.1, on observe des variations très modestes du taux d'émission spontanée ($\pm 20\%$) dans de telles cavités.

Cavités semiconductrices 0D

Pour observer une exaltation forte de l'émission spontanée, il est donc tentant d'utiliser une cavité 0D. Ce sont les boîtes quantiques qui ont permis d'aborder le régime monochromatique nécessaire à l'effet Purcell. L'utilisation de boîtes quantiques a permis de reproduire pour la première fois les expériences type Purcell jusqu'alors démontrées sur des atomes.

On va donc s'intéresser maintenant à deux types d'expériences réalisées dans des cavités 0D : l'observation de l'exaltation de l'émission spontanée pour un ensemble de boîtes quantiques et pour une boîte unique dans plusieurs cavités.

Les premiers travaux, réalisés par Gérard et al [61] en 1998 utilisent un ensemble de boîtes quantiques d'InAs dans un micropilier à miroirs de Bragg. C'est la mesure directe des temps de vie par photoluminescence résolue en temps qui permet d'observer une exaltation d'un facteur 5 (figure 1.19(a)). Les mêmes types de mesures réalisées par Gayral et al [55] en 2000 sur des microdisques de GaAs contenant des boîtes d'InAs montrent quant à eux une exaltation de 12. Avec le même type d'échantillons mais une méthode différente, Gayral et al [56] montre une exaltation de 18. La méthode ici, consiste à comparer la puissance d'excitation nécessaire pour saturer l'émission des boîtes quantiques couplées ou non au mode de cavité. En effet, lorsque l'émetteur est couplé au mode de cavité, l'effet Purcell, diminuant le temps de vie, retarde la saturation de l'émetteur (figure 1.19(b)). Avec ce même principe, en 2003 Happ et al [68] observe une exaltation de 9 dans un cristal photonique bidimensionnel contenant des boîtes d'InGaAs

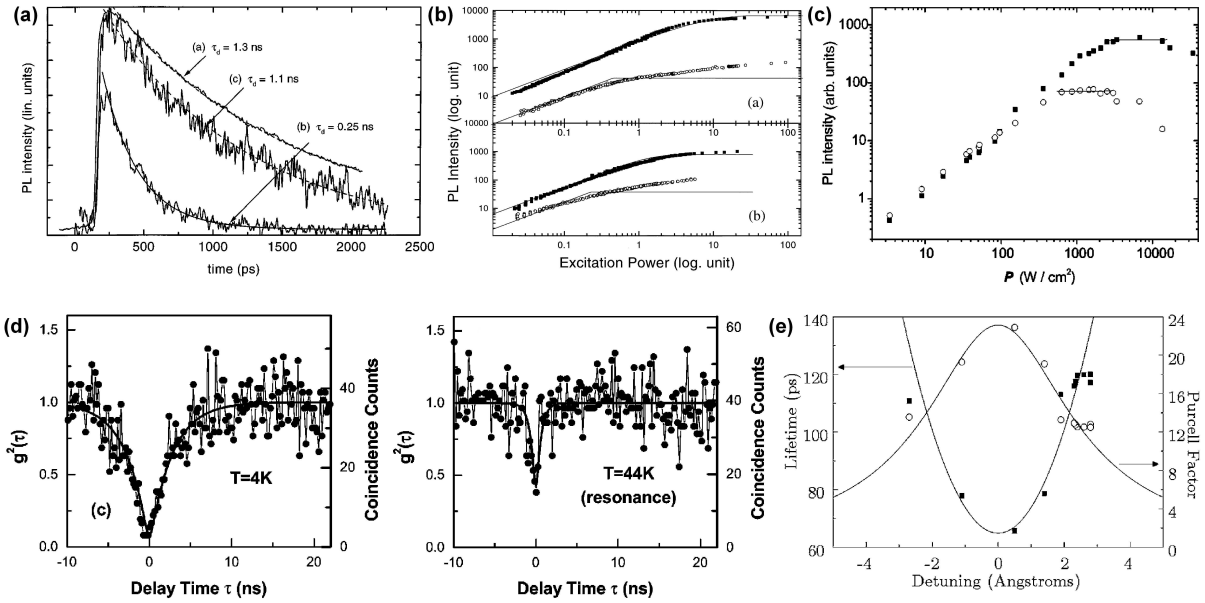


FIGURE 1.19 – (a) Evolution du temps de vie en et hors résonance [61], (b) et (c) évolution de l'intensité de photoluminescence en et hors résonance [56] et [68] (ces mesures sont réalisées sur un ensemble de boîtes), (d) mesures de corrélations hors et en résonance [88] et (e) évolution du temps de vie et du facteur Purcell en fonction du décalage spectral de la boîte quantique [158] (ces mesures sont réalisées sur une boîte unique).

(figure 1.19(c)).

Lorsqu'on utilise un ensemble de boîtes quantiques, l'effet observé est plus petit que celui attendu. On peut l'expliquer par un couplage imparfait entre les boîtes et le mode de cavité. Ainsi, l'utilisation d'une boîte unique devrait permettre d'observer un effet plus important d'exaltation.

Pour lever toute ambiguïté, les expériences réalisées utilisent une même boîte quantique dont on varie l'énergie d'émission de manière à être mise en et hors résonance en utilisant une variation de température ou encore en appliquant un champ électrique. Ainsi en 2001, Kiraz et al [88] montrent une exaltation de 6 pour une boîte unique d'InAs dans un microdisque de GaAs (figure 1.19(d)). A la même période, Moreau et al [111] ainsi que Solomon et al [144] et Vuckovic et al [161] en 2003 montrent une exaltation entre 3 et 5 pour une boîte unique d'InAs dans des micropiliers AlAs/GaAs. Pour ce type de microcavité et d'émetteur, il faut attendre 2005 et les travaux de Varoutsis et al [158] pour obtenir une exaltation d'ordre nettement supérieur : 24 (figure 1.19(e)). Parallèlement, Laurent et al [93] observent une exaltation de l'émission spontanée record de 28 avec une boîte unique InAs dans un cristal photonique bidimensionnel de GaAs.

Les expériences précédemment citées utilisent la température pour mettre la boîte étudiée en résonance, c'est pourquoi il est maintenant intéressant de citer l'étude récente de Laucht et al [92] en 2009. En effet, ceux-ci appliquent un champ électrique de part et d'autre d'un cristal photonique contenant des boîtes d'InGaAs pour modifier l'énergie d'émission de ces boîtes et ainsi mettre en résonance une boîte avec le mode de cavité (figure 1.20). Pour une boîte couplée, ils observent alors une diminution du taux d'émission spontanée de 8. Le champ électrique apparaît ainsi comme un paramètre très commode pour contrôler l'accord spectral boîte quantique-cavité.

Dans toutes les expériences citées, les boîtes quantiques auto-organisées sont distribuées de façon aléatoire dans les microcavités et présentent donc une résonance spectrale mais non spatiale. Le fait de positionner l'émetteur au maximum du champ électrique de la cavité permettrait

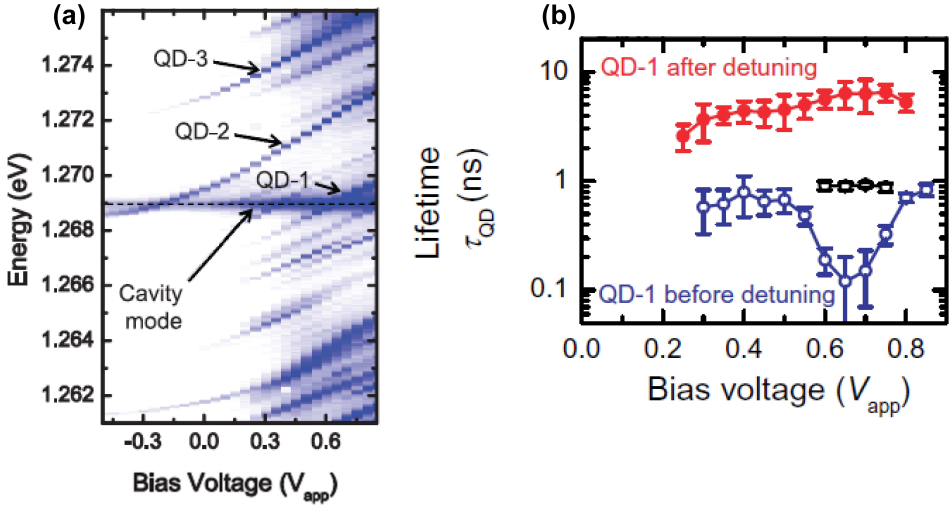


FIGURE 1.20 – (a) Evolution de l'énergie d'émission de plusieurs boîtes quantiques et (b) évolution du temps de vie en fonction de la tension appliquée [92].

d'augmenter le taux d'émission spontanée. C'est ce que propose en 2005 le groupe de Imamoglu et al [10] dans les cristaux photoniques. Le cristal photonique est construit de façon à ce que la boîte quantique initialement repérée soit placée au maximum du champ. L'idée est d'insérer dans la membrane un plan de boîtes quantiques dilué sur lequel on fait croître d'autres plans de propriétés optiques différentes, pour ne pas générer de signal à la longueur d'onde de la boîte à étudier, sans encapsuler le dernier (figure 1.21). Du fait de la corrélation verticale de la position des boîtes quantiques d'un plan à l'autre [10], on peut repérer la position d'une boîte quantique enterrée en localisant par microscope à force atomique une boîte en surface.

Le cristal photonique est conçu et réalisé de façon à placer une boîte quantique au ventre du mode confiné et à obtenir une énergie du mode résonant très proche de celle de la transition optique de la boîte quantique. C'est ensuite en surgravant le motif que le mode de cavité est mis en quasi résonance spectrale avec la boîte à étudier. La résonance spectrale est obtenue en augmentant la température vers 40 K. Ils obtiennent ainsi une augmentation d'un facteur 20 de l'émission spontanée.

En 2008, le même principe a été développé dans le groupe de Senellart et al [36] dans des micropiliers à miroirs de Bragg. L'idée est la même, après avoir localisé la boîte à étudier, le micropilier est gravé de façon à ce que la boîte soit placée au maximum du champ soit au centre du pilier. De part la taille des micropiliers, il n'est pas nécessaire d'avoir une précision aussi importante sur la localisation de la boîte que dans les cristaux photoniques, celle-ci est alors repérée par sa luminescence. Ensuite c'est le diamètre du pilier qui mettra en quasi résonance le mode de cavité et la boîte. La résonance est observée pour une température de 46 K. Ils mesurent alors un facteur de Purcell de 9 pour une boîte en résonance spectrale et spatiale (figure 1.22(a)) tandis que pour des boîtes situées à 250 nm du centre du pilier ils mesurent un facteur de 6.5 (figure 1.22(b)).

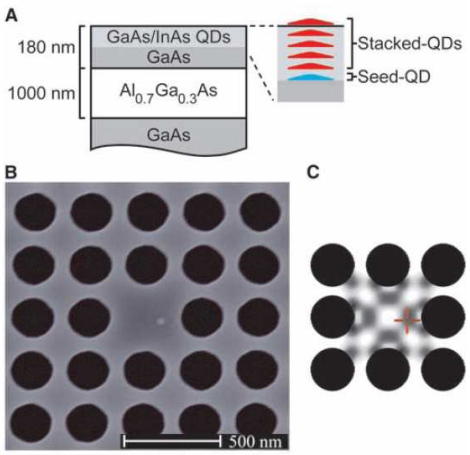


FIGURE 1.21 – (a) Schéma de l'échantillon, (b) image SEM du cristal photonique, le point blanc est la boîte de surface utilisée comme cible et (c) intensité du champ électrique calculé dans le cristal, la croix représente la position de la boîte [10].

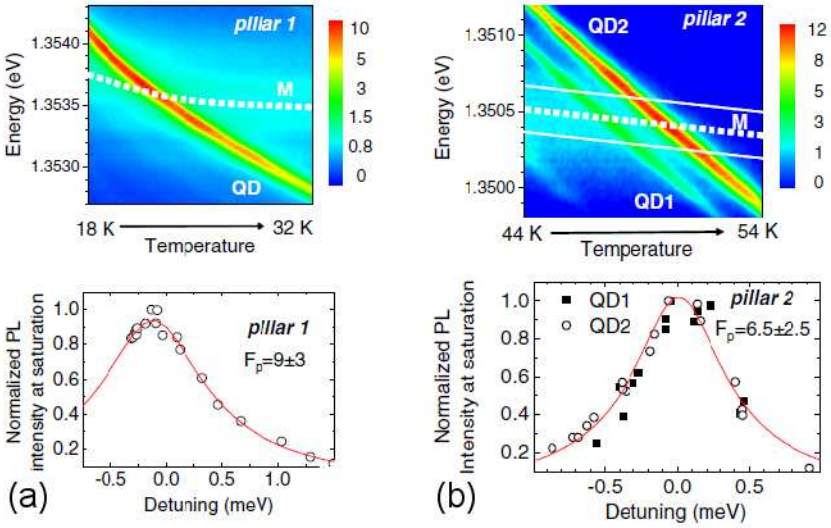


FIGURE 1.22 – Evolution de l'énergie d'émission des boîtes (QD) et du mode de cavité (M) et de l'intensité de photoluminescence en fonction du décalage spectral de la boîte quantique pour (a) une boîte centrée dans le micropilier et (b) deux boîtes placées à 250nm du centre du pilier [36].

1.4.2 Inhibition de l'émission spontanée

Inhibition dans les cristaux photoniques

Expérimentalement, ce sont les cristaux photoniques qui ont montré le plus grand degré d'inhibition. Il est intéressant de citer les travaux de Lodahl et al [97] et ceux de Noda et al [117].

Dans un cristal tridimentionnel à boîtes quantiques (figure 1.23), Lodahl et al [97] montrent les variations de temps de vie engendrées par un changement du paramètre a de la structure du cristal photonique mais aussi suivant la fréquence d'émission. Pour une fréquence fixée, on observe un facteur 2 sur les temps de vie. Ils observent une inhibition prononcée de l'ordre de 50% sur une large bande.

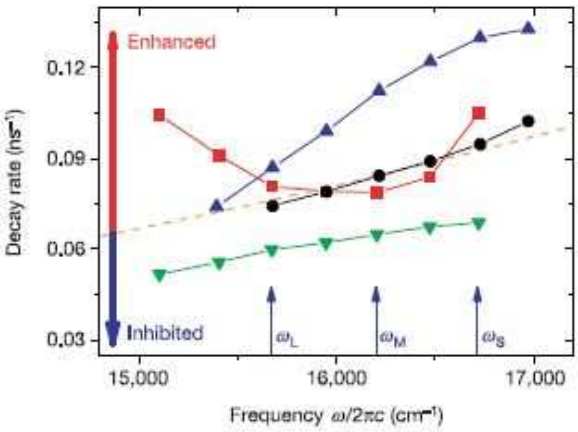


FIGURE 1.23 – Temps de vie pour plusieurs cristaux photoniques a = 370nm (noir), 420nm (rouge), 500nm (vert) et 580nm (bleu). Les fréquences d'émission notées correspondent à plusieurs tailles de boîtes quantiques constituées par un nanocristal semiconducteur (ω_L 6nm de diamètre, ω_M 4.5nm de diamètre et ω_s 3.8nm de diamètre [97].

Les travaux de Noda et al [117] montrent des résultats plus spectaculaires sur des cristaux photoniques bidimensionnels GaInAsP à température ambiante. Cette étude est d'autant plus intéressante qu'ils comparent un cristal photonique à puits quantique et à boîtes quantiques. Leurs temps de vies sont représentés sur la figure 1.24 en fonction de leurs fréquences normalisées. On peut voir un allongement du temps de vie d'un facteur 5 pour le puits et 15 pour les boîtes quantiques. Lorsqu'on sonde le temps de vie des porteurs, on ne sonde pas seulement les recombinaisons radiatives mais de façon globale l'ensemble des canaux de recombinaison des porteurs. En particulier, la recombinaison non-radiative des porteurs en surface modifie le temps de vie. Pour pouvoir observer toute l'ampleur de l'inhibition dans un cristal photonique, il est préférable d'utiliser des boîtes quantiques car celles-ci suppriment les recombinaisons non-radiatives de surface du cristal photonique en localisant les porteurs de charges [58].

Inhibition dans les micropiliers

Il est *a priori* intéressant de combiner effet Purcell et inhibition de l'émission spontanée dans les modes de fuites pour augmenter $\beta = F_P/F_P + \gamma$. Bayer et al [13] introduisent des micropiliers dont les flancs sont recouverts de métal dans le but de diminuer les modes de fuites γ. Dans ce système, l'auteur rapporte un facteur 3 d'exaltation pour des boîtes quantiques en résonance

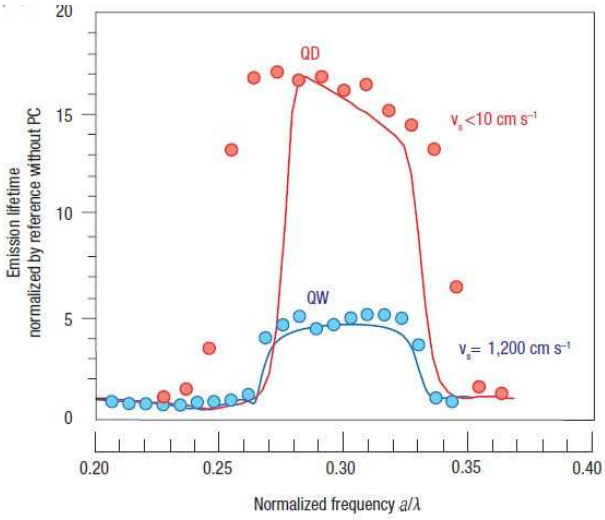


FIGURE 1.24 – Taux d'émission spontanée en fonction de la fréquence normalisée. Les points bleus et rouges correspondent respectivement aux points expérimentaux avec un puits ou un plan de boîtes quantiques. Les courbes théoriques sont calculées en prenant en compte la vitesse des recombinaisons de surface. [117]

(ce qui est conforme au résultat attendu, compte tenu du facteur de Purcell de la cavité et de la distribution des boîtes quantiques) mais aussi un facteur 10 d'inhibition pour les boîtes hors résonance. Cependant, une estimation du taux d'émission spontanée en utilisant la méthode de comptage de modes (Annexe A) montre que l'on peut attendre au mieux une inhibition de 20% dans ce système. Une source d'erreurs possible dans cette expérience pourrait être la faiblesse du signal obtenu pour les boîtes hors-résonance. Pour tenter d'augmenter le signal, l'expérimentateur a tendance à pomper plus fortement le système de boîte quantique. Des temps de déclin de photoluminescence très longs peuvent être alors observés lorsqu'on met plusieurs excitons dans la boîte.

1.5 Couplage fort

Pour achever ce bref panorama consacré à la problématique du contrôle de l'émission spontanée, nous allons enfin nous intéresser au régime de couplage fort en cav 0D.

1.5.1 Principe

Considérons une cavité idéale contenant un émetteur, celle-ci constitue alors un système isolé. En se rapportant à la figure 1.14, on se situe dans le cas où la constante de couplage cavité/continum W_2 est négligeable devant le couplage atome/cavité W_1. Ce système peut alors être décrit par l'hamiltonien de Jaynes-Cummings dont les états propres correspondent aux états couplés émetteur/champ : c'est ce que l'on appelle le formalisme de l'émetteur "habillé par le champ".

Plaçons-nous dans le cas où l'on ne considère pas l'interaction dipôle/champ, les états $|e, n\rangle$ et $|g, n+1\rangle$ (e état excité, g fondamental et n le nombre de photons dans la cavité) sont des paires dégénérées si on se situe en résonance. On y fait référence comme des "états nus". Si l'on introduit maintenant l'interaction, ces états sont "habillés par le champ" et donnent naissance à

deux états intriqués séparés en énergie par $2\hbar\Omega\sqrt{n+1}$. Ce phénomène est décrit par la figure 1.25.

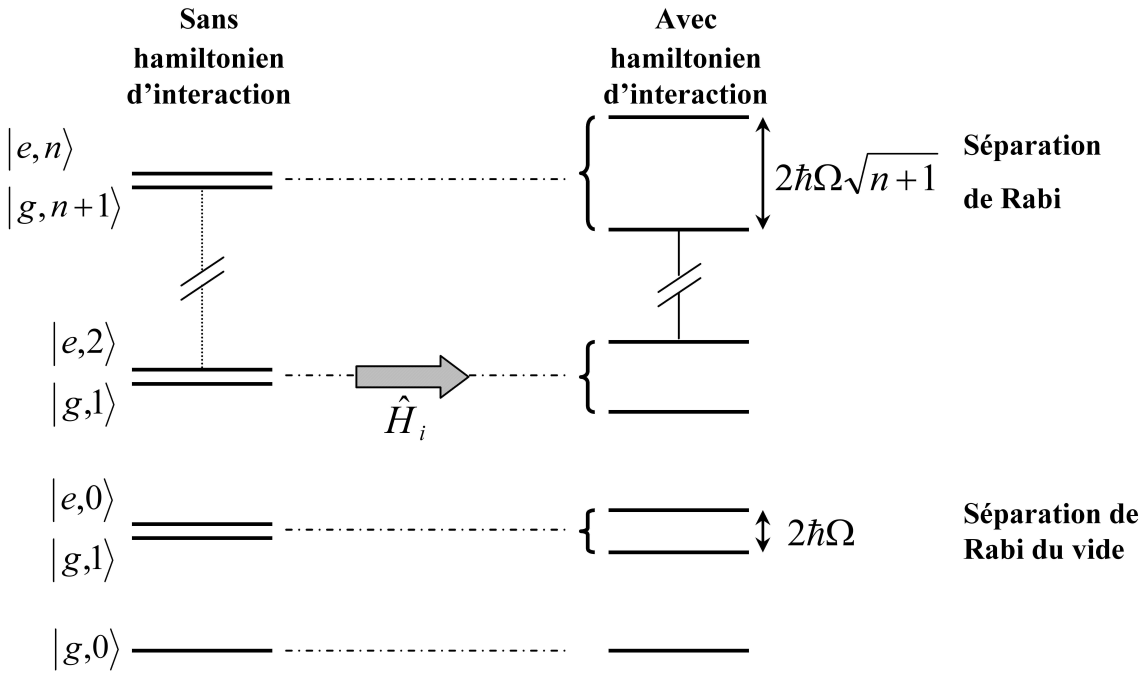


FIGURE 1.25 – Schéma de principe de la levée de dégénérescence liée à la prise en compte de l'hamiltonien d'interaction émetteur/cavité. Sans hamiltonien, les états sont dégénérés, quand on tient compte de l'hamiltonien d'interaction, les "états habillés par le champ" se séparent.

En d'autres termes, en régime de couplage fort, l'émetteur initialement excité est couplé de façon résonante et exclusive avec un mode unique d'une cavité à faibles pertes. On a un échange d'énergie réversible entre l'émetteur et le mode. Un photon peut être absorbé et réémis plusieurs fois par l'émetteur avant de pouvoir sortir de la cavité (figure 1.26(a)). On observe alors une oscillation entre deux états quantiques dégénérés et couplés : émetteur excité dans une cavité vide, et émetteur dans le niveau désexcité avec un photon. Ce système décrit alors une oscillation de Rabi à la pulsation ω exprimée par :

$$\hbar\Omega = |\vec{d}.\vec{E}(\vec{r})| \tag{1.42}$$

Où $\vec{r}$ désigne la position de l'émetteur, $\vec{E}$ est le champ pour un photon dans le mode de cavité et $\vec{d}$ le dipôle de l'émetteur. Les états propres de ce système couplé sont des modes mixtes exciton-photon, dont les énergies sont séparées de $2\hbar\Omega$. Expérimentalement, ce régime se traduit par un anticroisement des énergies à la résonance, lorsqu'on fait varier le désaccord spectral entre l'émetteur et la cavité.

En pratique, ce régime n'est observable que si tous les mécanismes induisant de la décohérence, en particulier la fuite des photons hors de la cavité et la désexcitation dans d'autres canaux que l'émission dans le mode de cavité, sont plus lents que l'oscillation de Rabi. Cette oscillation subit donc un amortissement dès que la cohérence est rompue ou que des pertes de photons hors de la cavité ou dans d'autres modes se produisent (figure 1.26(b)). Si les phénomènes de décohérence sont plus rapides que l'oscillation de Rabi, celle-ci disparait. La probabilité de désexcitation de

l'émetteur suit alors une loi exponentielle, comme pour tout oscillateur suramorti. On retrouve alors ainsi le régime de couplage faible.

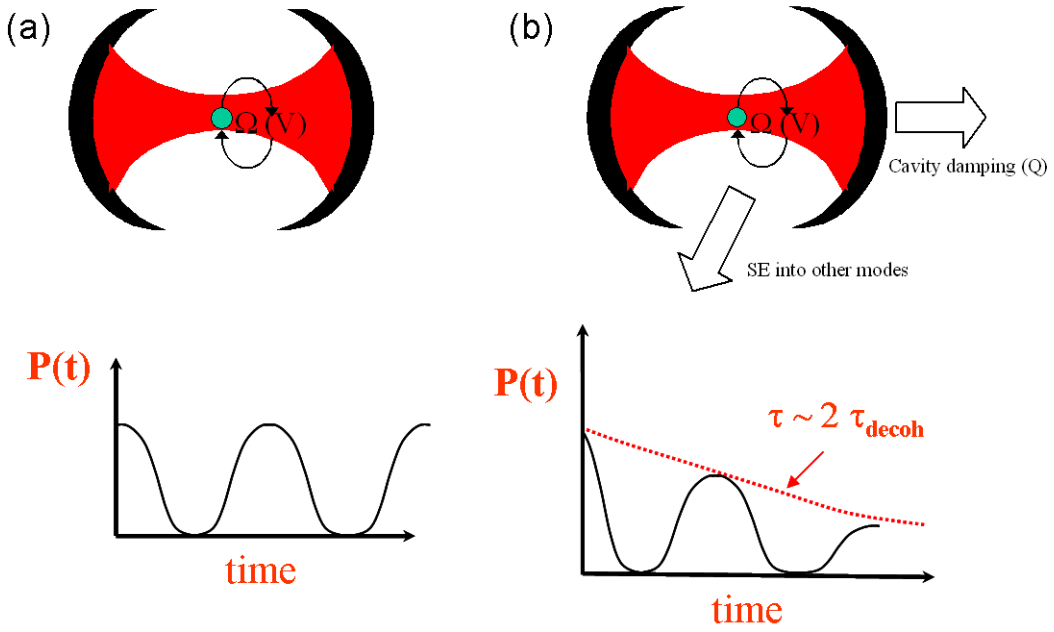


FIGURE 1.26 – Illustration du couplage fort, (a) l'émission spontanée devient réversible, observation des oscillations de Rabi et (b) amortissement des oscillations de Rabi.

1.5.2 Premières démonstrations expérimentales

Historiquement, ce phénomène a pour la première fois été observé sur des atomes en cavité au début des années 1990 [151]. Il faut attendre 2004 à 2006 pour observer le régime de couplage fort dans des microcavités semiconductrices.

L'équipe de Yoshie et al a démontré le régime de couplage fort pour une boîte quantique d'InAs dans des cristaux photoniques [167]. La mise en résonance spectrale du mode de cavité et de l'émetteur repose sur les différentes dépendances en température des énergies d'émission du mode et de l'exciton. Le déplacement du mode de cavité est observé à très forte puissance d'excitation, on observe alors un spectre dominé par l'émission du mode de cavité. A faible puissance, on voit l'apparition de l'émission de boîtes quantiques non-couplées. Leur déplacement énergétique est plus important que pour la cavité. Entre ces deux régions, on observe un anticroisement entre un exciton et un mode de cavité (figure 1.27). L'anticroisement est caractérisé par un dédoublement de Rabi, signature du régime de couplage fort.

Dans les micropiliers, c'est le groupe allemand de Reithmaier et al qui montre un régime de couplage fort avec des boîtes d'InGaAs [129]. La mise en résonance repose toujours sur les dépendances en température de l'émission de l'exciton et du mode de cavité. Les spectres montrent un anticroisement entre 5 et 30K entre l'exciton et le mode de pilier (figure 1.28).

Concernant les microdisques, nous pouvons citer en 2005 les travaux de Peter et al [125]. Ceux-ci exposent la première démonstration expérimentale du régime de couplage fort dans le système boîtes quantiques de GaAs en microdisques. Ils observent dans les expériences de micro-

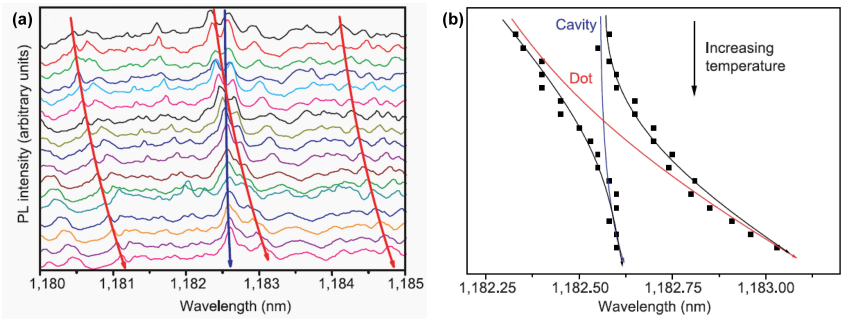


FIGURE 1.27 – Anticroisement boîte-nanocavité pour des températures de 13K à 29K. (a) spectre de photoluminescence à basse puissance, (b) pic du système couplé (noir) comparé avec une boîte non-couplée (rouge) et une cavité vide (bleu) [167].

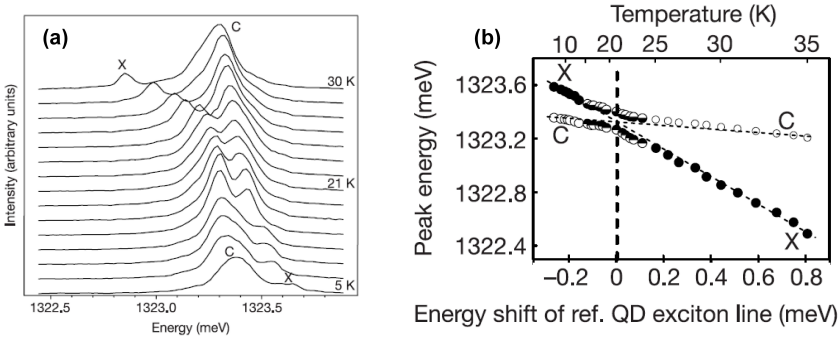


FIGURE 1.28 – (a) Dépendance en température des spectres de photoluminescence, (b) anticroisement de l'exciton et du mode de cavité [129].

photoluminescence un anticroisement caractérisé par un dédoublement de Rabi (figure 1.29). Le rapport entre le dédoublement de Rabi et la largeur des composantes du doublet est de l'ordre de 3 dans cette expérience (notons qu'il s'agit du meilleur résultat publié à ce jour), ce qui signifie que le système "vit" environ 3 oscillations de Rabi avant de perdre sa cohérence. Pour une application pratique du couplage fort dans le domaine de l'optique quantique, il faudra bien entendu améliorer ce résultat. Dans ce contexte, l'optimisation du couplage émetteur-cavité (via un procédé de fabrication déterministe), la réduction de la décohérence excitonique et l'augmentation du facteur de qualité des cavités sont des enjeux importants.

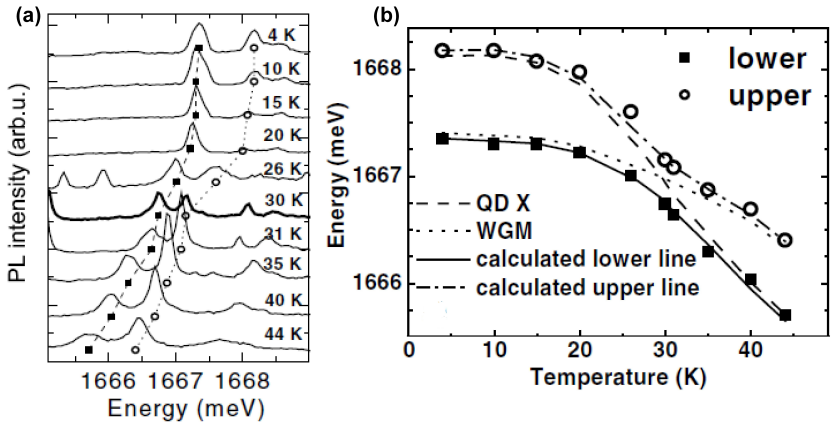


FIGURE 1.29 – (a) Energie d'émission en fonction de la température, (b) anticroisement de l'exciton et du mode de cavité [125].

1.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu qu'il est possible de modifier dans une large mesure le taux d'émission spontanée. En général pour ce faire, on ajoute des contraintes sur l'émetteur, puisque l'on modifie le couplage émetteur/champ : contraintes de polarisation, de résonance spatiale et spectrale et enfin de monochromaticité.

Les approches larges bandes, comme les cristaux photoniques 2D et les fils photoniques, permettent de travailler avec des émetteurs spectralement larges comme les puits quantiques. Cependant, les boîtes quantiques à basse température présentent plusieurs avantages pour les expériences d'électrodynamique quantique en cavité : de par leur monochromaticité elles sont en totale adéquation avec l'utilisation de l'effet Purcell en cavité 0D et enfin la localisation des porteurs permet d'éliminer les recombinaisons non-radiatives.

Dans les prochains chapitres, nous allons étudier deux exemples d'application du contrôle de l'émission spontanée dans des dispositifs optoélectroniques : les sources de photons uniques à boîtes quantiques et les microlasers à modes de galerie.

Chapitre 2

Méthodes expérimentales

Sommaire

2.1 L'épitaxie par jets moléculaires, technique de croissance sous ultravide . . . 31
2.1.1 Schéma de principe . . . 31
2.1.2 Caractérisation *in-situ* : le RHEED . . . 33
2.2 Méthode et mode de croissance des matériaux III-V . . . 34
2.2.1 Préparation des substrats . . . 34
2.2.2 Croissance bidimensionnelle et calibration des vitesses de croissance . . . 36
2.2.3 Caractérisation électrique des couches et calibration du dopage . . . 42
2.2.4 Croissance de boîtes quantiques InAs sur GaAs . . . 46
2.2.5 Cavités à miroirs de Bragg AlAs/GaAs . . . 52
2.3 Photoluminescence . . . 55
2.3.1 Micro-photoluminescence . . . 56
2.3.2 Photoluminescence résolue en temps . . . 57

Dans ce chapitre, nous décrirons les techniques expérimentales utilisées au cours de ce travail de thèse pour élaborer les échantillons (EJM) et pour les analyser optiquement (PL).

La croissance des échantillons ayant constitué une grande partie de ce travail, nous présenterons la méthode utilisée puis nous détaillerons le mode de croissance des matériaux III-As.

2.1 L'épitaxie par jets moléculaires, technique de croissance sous ultravide

2.1.1 Schéma de principe

L'épitaxie par jets moléculaires (EJM) permet de faire croître sous ultravide des hétérostructures de semiconducteurs en contrôlant leurs épaisseurs à la monocouche (MC) atomique près.

Comme l'origine grecque de ce nom l'indique [1], l'épitaxie consiste à transférer l'ordre cristallin d'un substrat à une couche mince dont on réalise la croissance. Cette méthode consiste à faire interagir avec la surface d'un substrat des jets d'atomes ou de molécules issus de l'évaporation de sources solides, dans notre cas, des éléments III et V portés aux températures T_{III} et T_V.

1. épi-, du grec ancien : "sur, au dessus, par dessous" et -taxie, du grec ancien : "arrangement, ordonnancement".

Le substrat est placé sur un porte-échantillon chauffé (figure 2.1). Les flux provenant de sources chauffées à la fusion convergent vers ce substrat cristallin. Ces sources sont constituées d'un creuset en nitrure de bore pyrolytique (PBN) contenant le matériau à évaporer, d'une résistance et d'un thermocouple pour contrôler la température. Chaque cellule présente un cache en face du creuset afin d'occulter le flux atomique ou moléculaire. La croissance est effectuée sous ultravide (10^{-10} Torr) pour éviter des contaminations résiduelles qui modifieraient les propriétés optiques et électriques de la couche.

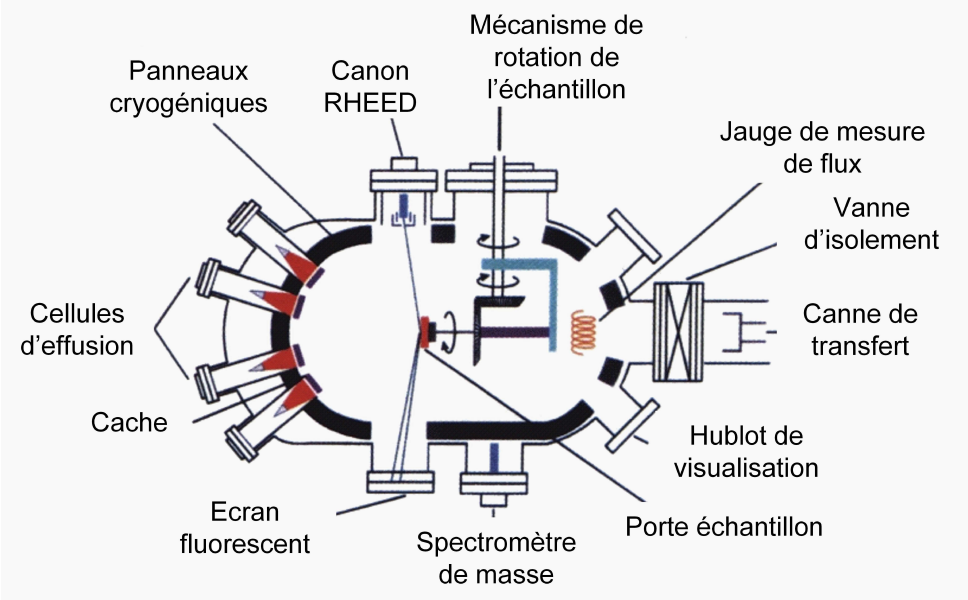


FIGURE 2.1 – Schéma d'un bâti d'épitaxie par jets moléculaires.

Les pressions équivalentes aux flux provenants des sources chauffées sont de quelques 10^{-5} Torr pour l'As et 10^{-7} Torr pour les autres (In, Ga, Al). Pour faire face à ces flux, il est préférable d'utiliser une pompe avec une grande vitesse de pompage (typiquement 1000 $L.s^{-1}$), d'où l'utilisation d'une pompe soit cryogénique soit turbomoléculaire. Celles-ci peuvent atteindre des vides limites de quelques 10^{-10} Torr. Il est néanmoins possible de travailler avec une pompe ionique dont la vitesse est moindre mais qui risque d'être saturée en éléments. La caractéristique de celle-ci est de 200 $L.s^{-1}$, une vitesse de pompage faible mais un vide limite excellent de 10^{-11} Torr. Dans notre cas, on utilise cette pompe pour maintenir le vide dans la chambre hors croissance, ceci, dans le but d'éviter un vieillissement prématuré de la pompe. Elle est associée à un sublimateur de titane. Le titane est sublimé régulièrement dans la chambre et piège les molécules de H_2, O_2, et H_2O, les éléments formés allant alors se coller aux parois de l'enceinte. Le sublimateur n'est pas utilisé en cours de croissance, pour éviter une contamination au titane de l'échantillon. En cours de croissance, nous utilisons une pompe turbomoléculaire associée à un pompage cryogénique via des panneaux froids (ce sont des panneaux à doubles parois remplis d'azote liquide), association qui permet un vide résiduel de quelques 10^{-8} Torr.

Plusieurs paramètres modifient la qualité des couches épitaxiées comme la température du substrat, les rapports de flux entre les éléments III et V, la vitesse de croissance. Au delà de ces considérations, la réelle limitation provient du choix des matériaux épitaxiés et du substrat puisque des différences de paramètre de maille plus ou moins importantes entraînent la formation de défauts structuraux.

Les types de croissance peuvent être classés selon trois régimes :
- Franck-Van Der Merwe, croissance couche par couche ou bidimensionnelle (figure 2.2(a)).
- Volmer-Weber, croissance par nucléation d'îlots (figure 2.2(b)).
- Stranski-Krastanov, régime mixte, la croissance se fait couche par couche avec nucléation d'îlots (figure 2.2(c)).

Pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter à des ouvrages plus précis [122].

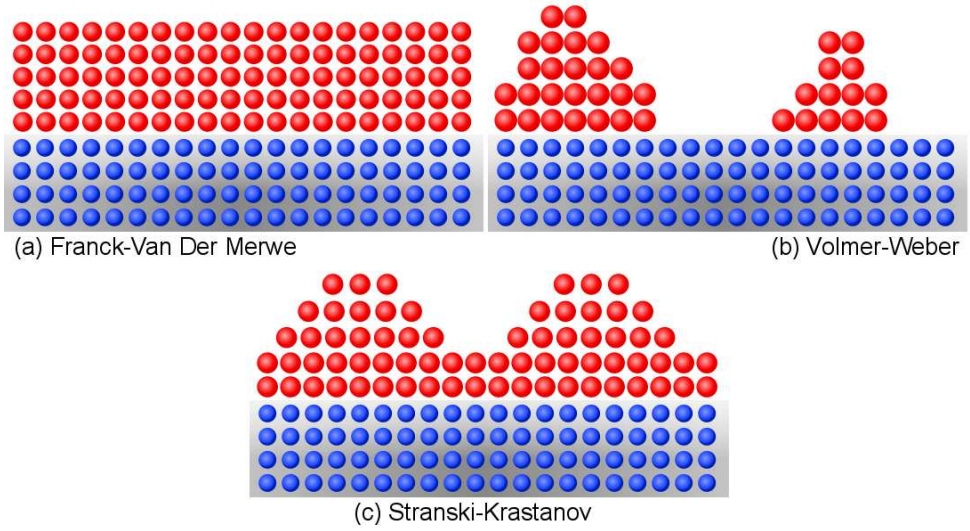


FIGURE 2.2 – (a) Croissance Franck-Van Der Merwe, (b) Volmer-Weber et (c) Stranski-Krastanov.

Nous disposons d'un bâti prototype Méca2000 sur lequel sont disposées cinq cellules d'évaporation (Ga, Al, In, As et Si pour le dopage n). Celui-ci est relié sous ultravide par des modules de transfert à un bâti II-VI et à un bâti de dépôt de couches métalliques. Dans notre bâti le porte-échantillon est fixe et peut être utilisé en rotation pour obtenir une bonne homogénéité des couches sur deux pouces. Un QUAD (analyseur de gaz à sonde quadrupolaire) permet de s'assurer d'une bonne qualité de vide au sein de l'enceinte et de la composition en différents éléments. Il facilite aussi le cas échéant la détection de fuites. Il permet de résoudre les unités de masse atomique c'est à dire les pressions partielles des éléments présents dans la chambre.

2.1.2 Caractérisation *in-situ* : le RHEED

Pour contrôler la croissance et les épaisseurs des hétéro-structures en temps réel, nous utilisons une méthode de réflectivité (le RHEED).

Diffraction d'électrons en incidence rasante (RHEED)

Le RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) permet de contrôler *in-situ* et au cours de la croissance l'état de surface de la couche [69], [76], [77]. Le principe est d'envoyer un faisceau d'électrons de haute énergie (10 keV) en incidence rasante (1°) sur la surface de l'échantillon. Les faisceaux diffractés sont ensuite visualisés sur un écran fluorescent. Cette méthode non destructive permet de suivre l'évolution de la croissance en temps réel en nous donnant une information sur la morphologie de surface mais aussi sur la vitesse de dépôt.

Principe de fonctionnement

Un faisceau d'électrons de haute énergie vient frapper la surface de l'échantillon sous un angle d'incidence faible. Les électrons diffractés par les plans du réseau perpendiculaire à la surface de l'échantillon sont recueillis sur un écran fluorescent placé perpendiculairement à la surface de l'échantillon. Vue la faible valeur de l'angle d'incidence, le faisceau d'électrons ne pénètre que sur quelques dizaines d'angströms sous la surface et donne ainsi une information issue des premières couches atomiques du cristal.

Pour des électrons de haute énergie, le rayon de la sphère d'Ewald est très grand devant les distances interatomiques, ce qui permet de la remplacer par son plan tangent. Ainsi, pour une surface plane, la figure de diffraction est l'intersection de ce plan avec le réseau réciproque à deux dimensions (figure 2.3). On observe alors un ensemble de tiges modulées en intensité et distantes de λ/a avec a la distance interréticulaire des plans perpendiculaires à la surface. Une surface rugueuse présentera quant à elle, un diagramme de diffraction ponctué résultant de la diffraction sur des îlots tridimensionnels présents sur la surface de l'échantillon. On observe aussi une tache spéculaire, celle-ci provient de la réflection du faisceau d'électrons du canon sur l'échantillon.

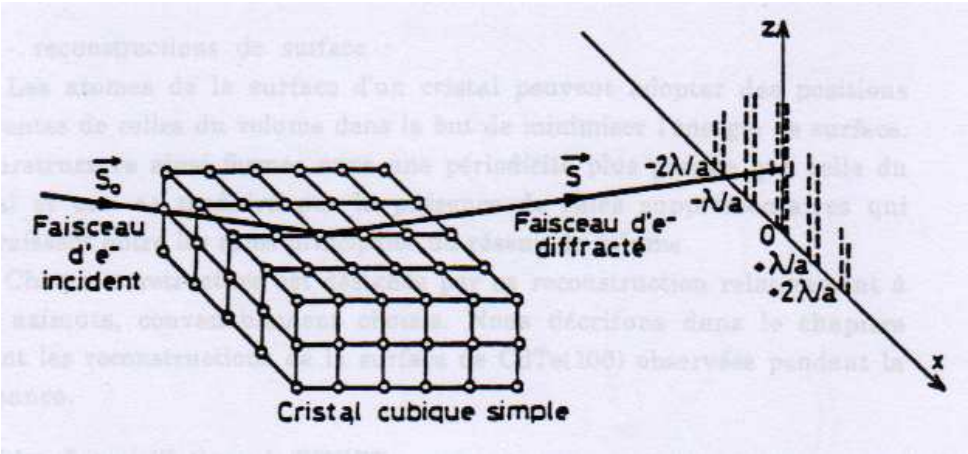


FIGURE 2.3 – Schéma de principe de la diffraction RHEED.

Les atomes présents à la surface de l'échantillon peuvent adopter des positions différentes pour minimiser l'énergie de surface. La surstructure ainsi formée aura une périodicité plus grande que celle du cristal et ceci se traduit par la présence de raies supplémentaires qui apparaissent entre les raies principales du réseau. Chaque surstructure est désignée par sa reconstruction relative à deux azimuts, convenablement choisis.

2.2 Méthode et mode de croissance des matériaux III-V

2.2.1 Préparation des substrats

Nous disposons de substrats GaAs, non dopés, d'orientation ⟨100⟩ (marque AXT). Ils sont "epi-ready", aucun traitement chimique particulier n'est donc nécessaire avant l'introduction dans le bâti. Les substrats sont collés par capilarité sur des porte-échantillons en molybdène (moly-blocs) avec de l'indium chauffé vers 200°C ($T_{\text{Fusion d'In}}$=167°C). Avant d'introduire l'échantillon dans la chambre de croissance, on procède à son dégazage dans un module ultra-vide équipé d'un

four. Cette opération est réalisée dans le but de supprimer toute trace d'acides et de l'eau qui sont utilisés lors du nettoyage du porte-échantillon.

Après cette étape, le substrat est introduit dans la chambre d'épitaxie. On doit alors désorber l'oxyde natif pour obtenir une bonne reprise de croissance. Pour cela, on doit monter le substrat vers 600 - 630°C [146]. A cette température, on se situe légèrement au dessus de la température de sublimation congruente du GaAs (T_{cong} ≈600°C), le flux d'évaporation de l'élément arsenic devient plus important que celui du gallium. On observerait alors la formation de gouttelettes de Ga due à l'excédent de Ga provenant de la décomposition du GaAs. Pour désorber l'oxyde tout en obtenant une bonne qualité de surface, on stabilise celle-ci avec un flux d'arsenic qui permet d'équilibrer les flux d'évaporation en éléments III et V.

Dans un premier temps, on monte le substrat à une température de 400°C sous vide. A cette température, on ouvre le cache d'As pour avoir un excès lorsque T_{cong} est atteinte. Lorsque la température de désoxydation est atteinte, le RHEED jusque-là assez flou, devient très brillant et des taches intenses apparaissent. L'oxyde désorbe à une température T_{Ox} voisine de 590°C ; le RHEED est alors très pointé rendant compte d'une certaine rugosité de surface (figure 2.4).

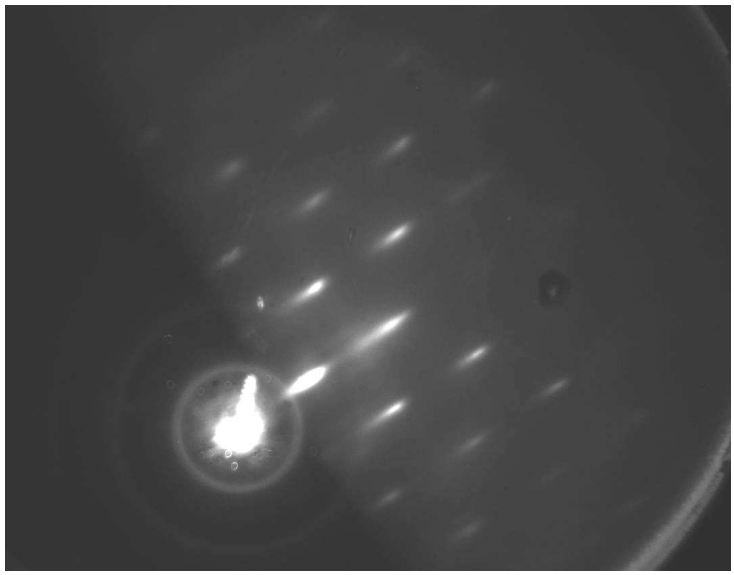


FIGURE 2.4 – Image RHEED d'un substrat GaAs en cours de désoxydation

Notons que cette température, dont la détermination est reproductible d'une expérience à l'autre, nous sert à recalibrer la température du substrat à chaque expérience. Cette procédure sert en particulier à corriger des dérives éventuelles de la mesure de température par thermocouple lorsque l'on passe d'un porte-échantillon à l'autre.

Une fois la désoxydation observée au RHEED, on laisse le substrat à une température autour de T_{Ox} - T_{Ox}+10°C pendant quelques dizaines de minutes pour s'assurer que tout l'oxyde est bien désorbé.

Ensuite, pour lisser la surface, on réalise une couche tampon de GaAs de l'ordre de 500nm qui se caractérise par une croissance tridimensionnelle sur quelques nanomètres (les taches du RHEED s'intensifient) puis la surface se lisse lorsque 100nm de GaAs environ ont été déposés.

2.2.2 Croissance bidimensionnelle et calibration des vitesses de croissance

Pour des flux à l'équilibre, le mode de croissance théorique pour un matériau III-As déposé sur lui-même est bidimensionnel, le film déposé tendant à minimiser son énergie libre en adoptant une configuration aussi plane que possible.

Le principe de la croissance 2D des matériaux III-As sur eux-mêmes peut se voir comme tel : tous les atomes incidents du groupe III adhèrent à la surface du composé III-V sur lequel on réalise la croissance, tandis que pour l'élément V, n'adhèrent que les atomes nécessaires à la formation stœchiométrique de la couche. C'est donc le flux d'éléments III qui gouverne la croissance. Au delà d'une certaine température dite de sublimation congruente, l'élément V se désorbe préférentiellement, ce qui dégrade la surface épitaxiée. C'est pour éviter cette dégradation que l'on se place en excès d'élément V durant toute la croissance. En effet, la croissance du GaAs est particulièrement sensible à cette désorption car sa température T_{cong} est proche de sa température de croissance contrairement à l'AlAs[2] [47], [122]. Nous devons donc nous assurer d'avoir une surface stabilisée en élément V. Autrement dit, pour faire croître du GaAs, on travaille sous un excès de flux d'As, la vitesse de croissance est fixée par le Ga. Pour cela, nous utilisons le diagramme RHEED. Une croissance bidimensionnelle est caractérisée par l'observation de "tiges", lorsque la surface est stabilisée arsenic, la reconstruction la plus souvent observée est la 2x4 [69], [140] mais aussi 3x1 et C(4x4) (figure 2.5).

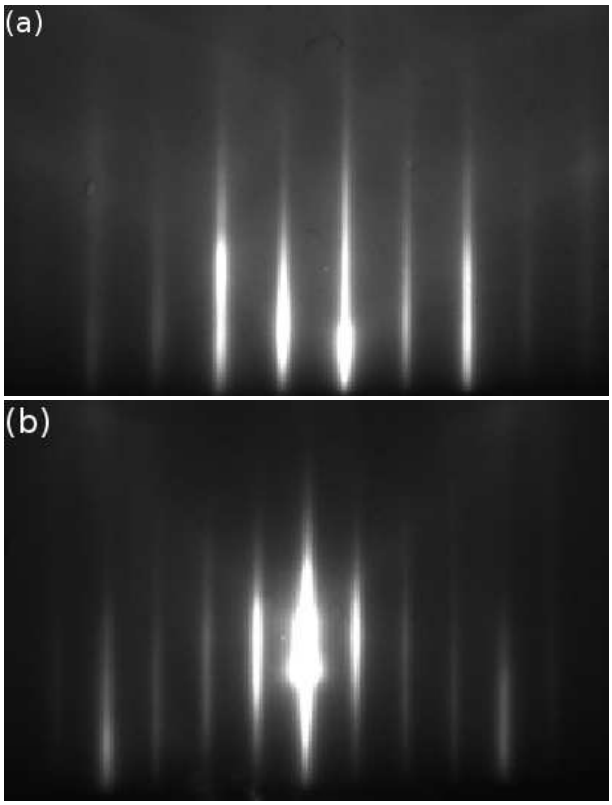


FIGURE 2.5 – Reconstructions (a) 2x4 et (b) 4x4 observées lors de la croissance de GaAs sur GaAs en condition riche-As.

C'est aussi le RHEED qui nous permet de connaître la quantité de matière déposée par la

2. $T_{cong\ d'AlAs}$=800°C

mesure des oscillations RHEED. Dans un mode bidimensionnel parfait, la seule monocouche de surface est incomplète : celle-ci achève de se construire avant que la croissance de la monocouche suivante ne débute. Ainsi, lorsqu'on part d'une surface plane à l'échelle atomique, l'oscillation RHEED traduit l'alternance, au cours de la croissance, de surfaces lisses obtenues pour le dépôt d'un nombre entier de monocouches et de surfaces rugueuses lorsque la monocouche de surface est incomplète.

Dans le cas de l'épitaxie par jets moléculaires standard, on observe expérimentalement un amortissement de ces oscillations car il existe une possibilité de nucléation en marge d'un mode essentiellement bidimensionnel : une monocouche peut commencer à se former alors que la précédente est encore incomplète. La figure 2.6 illustre ce modèle qui rend compte de l'amortissement des oscillations RHEED. La rugosité de surface pour un nombre entier de monocouches croît avec ce nombre et la différence de réflectivité de la surface pour des dépôts entiers et fractionnaires, diminue. Une température de substrat élevée (augmentation de la migration) et des faibles vitesses de croissance favorisent la croissance bidimensionnelle. Notons que si on réalise un arrêt de croissance sous flux d'arsenic, l'intensité de la tige étudiée revient progressivement à sa valeur de départ car les atomes de surface migrent vers les couches incomplètes sous-jacentes et minimisent ainsi l'énergie libre du film déposé par un lissage de la surface.

Travaillant en excès d'arsenic, c'est l'élément III qui définit la vitesse de croissance. C'est en changeant son flux, c'est à dire la température de la cellule, que l'on peut ajuster la vitesse de croissance via la loi d'Arrhénius :

$$\frac{1}{T_A} \ln \frac{\phi_1}{\phi_2} + \frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_2} \tag{2.1}$$

où $\phi_{1,2}$ est le flux pour la température $T_{1,2}$ de la cellule et T_A la température d'activation de l'élément.

Les figures 2.7 et 2.8 montrent plusieurs enregistrements d'oscillations RHEED de GaAs et AlAs sur GaAs mesurés sur différents jours de croissance. Ces mesures montrent des vitesses différentes pour une même température de cellule. L'évolution des vitesses dans le long terme vient d'une part et le plus souvent de la redistribution de la charge dans le creuset, mais aussi de la quantité de matière présente dans le creuset, qui font varier le flux de la cellule. Du fait de la diminution de quantité de charge au cours des croissances, le flux et donc la vitesse diminue. On peut noter que la correspondance entre $MC.s^{-1}$ et $nm.s^{-1}$ est donnée par $v(n.m^{-1}) = a_0/2\ v(MC.s^{-1})$. Expérimentalement, on se situe préférentiellement à une vitesse proche de 1 $\mu m.h^{-1}$, c'est à dire proche de 1 $MC.s^{-1}$, ce qui permet d'avoir une bonne qualité cristalline [30]. On notera aussi que la gamme de températures du substrat utilisée ici (550/650°C) joue un rôle négligeable sur la vitesse de croissance pour GaAs ou AlAs [122].

De par le faible écart de paramètres de maille entre le GaAs [3] et l'AlAs [4], la croissance de ce dernier se déroule de la même façon. Pour la croissance de ternaire $Al_xGa_{1-x}As$, c'est le rapport des flux qui détermine la composition de l'alliage, les conditions de croissance restant semblables au cas des binaires GaAs et AlAs.

Pour contrôler l'épaisseur réelle des couches épitaxiées et donc vérifier l'exactitude des mesures de calibration, plusieurs méthodes peuvent être utilisées : la diffraction de rayons X et le FTIR (Fourier Transform Infra-Red spectroscopy) que nous détaillerons dans la partie 2.2.5.

Dans notre cas, on peut utiliser la Diffraction des Rayons X Haute Résolution (HRDRX) sur des super-réseaux pour mesurer les épaisseurs des couches. Un super-réseau est une suite pério-

3. $a_0 = 5.65325$ Å
4. $a_0 = 5.6622$ Å

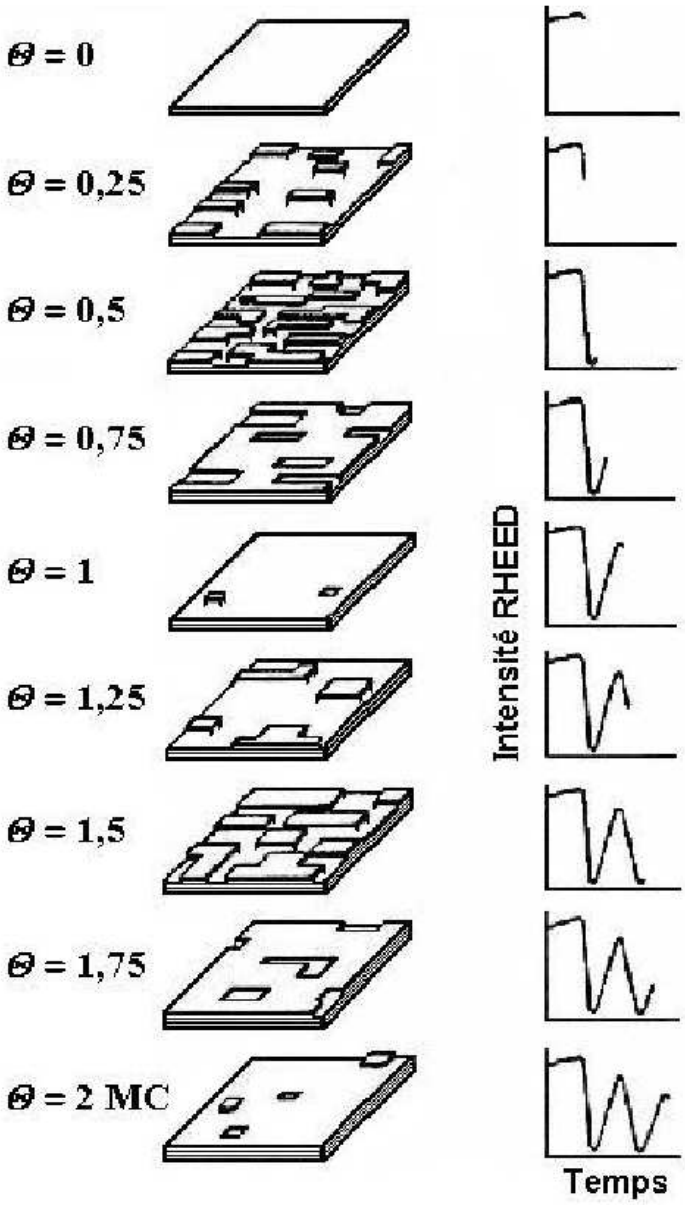


FIGURE 2.6 – Interprétation de l'amortissement des oscillations RHEED en termes de variation de la réflectivité de la surface en croissance.

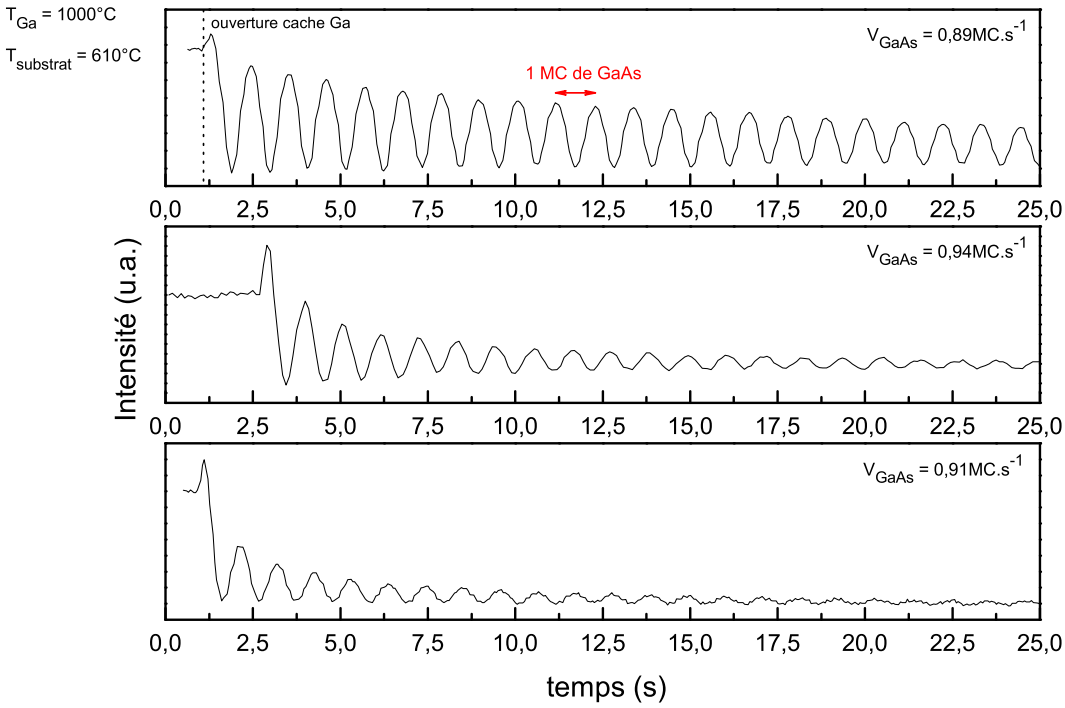


FIGURE 2.7 – Mesures d'oscillations RHEED lors de la croissance de GaAs. Le temps entre deux maxima correspond au dépôt d'une monocouche de GaAs.

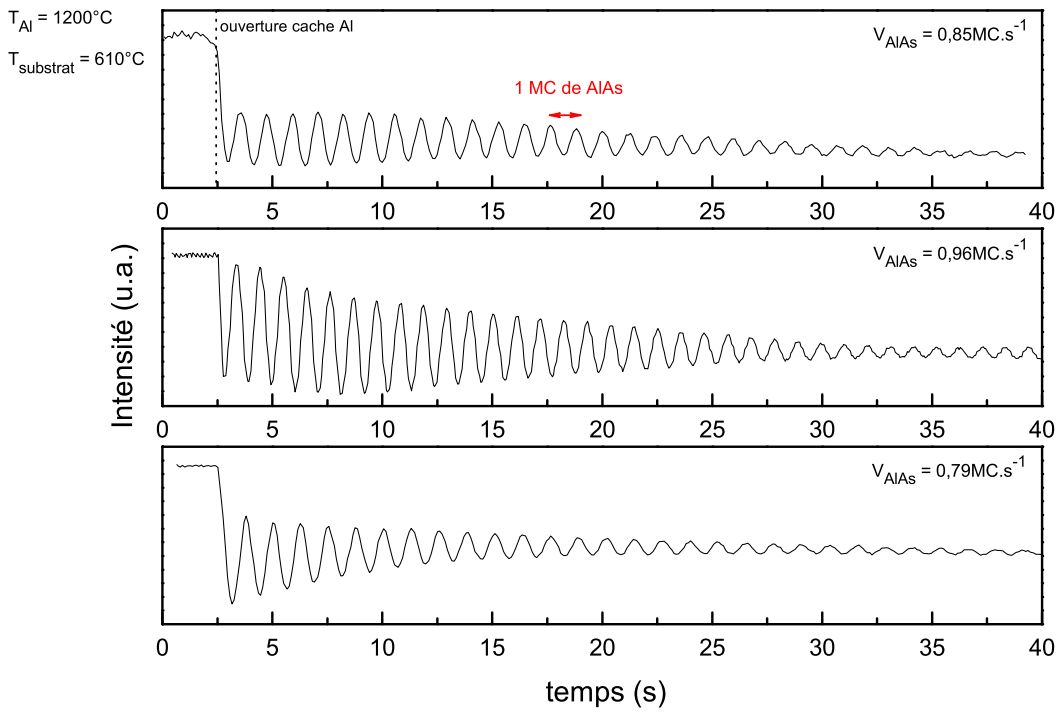


FIGURE 2.8 – Mesures d'oscillations RHEED lors de la croissance de AlAs sur GaAs.

dique de matériaux différents soit un empilement de deux couches d'hétérostructures d'épaisseurs différentes répété quelques dizaines de fois.

Cette méthode non destructive permet de sonder les différentes couches avec un faisceau de rayons X bombardant l'échantillon. La caractérisation par diffraction X d'un cristal consiste en la mesure de l'intensité des rayons X diffractés en fonction de l'angle d'incidence θ que fait le faisceau incident avec les plans diffractants (figure 2.9(a)). Les ondes incidentes et réfléchies forment des interférences constructives dans le cas où la relation suivante est vérifiée :

$$2d\sin\theta = n\lambda \text{ (loi de Bragg)} \tag{2.2}$$

Avec d la distance séparant deux plans et n un entier.

Dans le cas d'un super-réseau, le spectre de diffraction présente une série périodique de pics très fins, formée par un pic central et des pics satellites, signature de l'espace réciproque de la périodicité dans l'espace réel de la surface. En effet, ces pics proviennent d'interférences constructives entre toutes les périodes du super réseau [9].

Les mesures ont été réalisées via un scan dit θ-2θ (figure 2.9(b)), le détecteur suit la rotation du cristal de sorte que $\omega = \theta$. Dans ce cas, on sonde la direction $k_{||}$, on obtient ainsi des informations sur les distances inter-réticulaires du cristal. A contrario, pour un scan en ω, l'angle du détecteur est fixe et on fait tourner le cristal, le système est alors sensible aux variations d'intensité selon $k_{\perp}$, on obtient alors des informations sur la distribution des directions cristallines et donc la qualité cristalline de la structure étudiée.

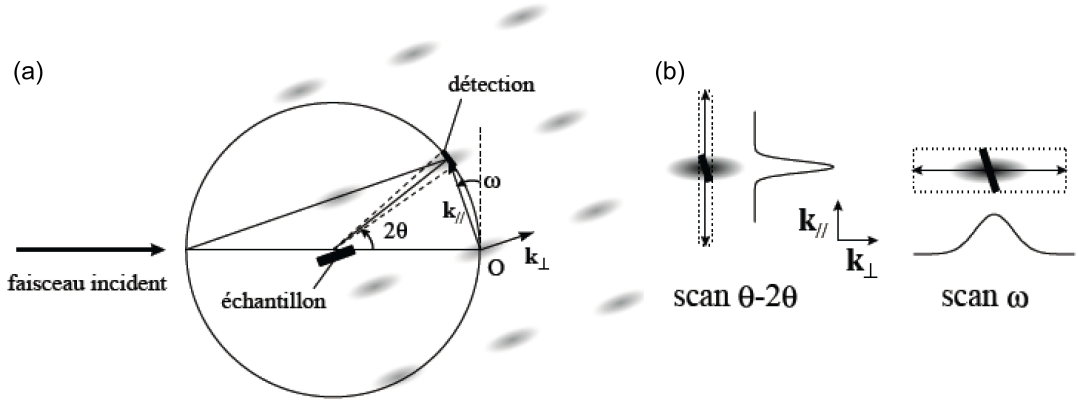


FIGURE 2.9 – Principe de la mesure de diffraction X. (a) Construction d'Ewald. Les taches représentent les noeuds du réseau réciproque d'un cristal. (b) Schématisation d'un scan θ-2θ et d'un scan ω.

Le spectre 2.10 montre la mesure en θ-2θ sur un empilement de deux super-réseaux AlAs/GaAs d'épaisseurs et de périodicités différentes [5]. Le pic le plus intense correspond à la raie (400) du substrat de GaAs. En effet, plus la couche est mince, plus le volume diffractant et son intensité sont faibles. Ainsi, le pic du substrat sera toujours plus intense pour une épaisseur de couche déposée plus faible. C'est sur cette raie (400) du substrat que l'on se calibre lors de la mesure.

Pour remonter aux épaisseurs réelles des couches de GaAs et AlAs, on utilise la loi de Bragg qui s'écrit alors :

$$2P\sin\theta = k\lambda \tag{2.3}$$

5. Couche tampon puis 225Å de AlAs et 75Å de GaAs répétés 40 fois puis 100Å de AlAs et 300Å de GaAs répétés 30 fois.

Où P est l'épaisseur d'une période du super-réseau, k est un entier et λ la longueur d'onde des rayons X. On déduit P de la mesure de deux angles θ_1 et θ_2 des pics satellites correspondant aux ordres k_1 et k_2, soit :

$$P = \frac{k_1 - k_2}{2\left(\sin\theta_1 - \sin\theta_2\right)}\lambda \tag{2.4}$$

On peut extraire d'autres informations des spectres de HRDRX comme le paramètre de maille moyen a_{SR} du super-réseau à partir de la position de l'ordre zéro du super-réseau, par la relation :

$$2a_{SR}\sin\theta_0 = 4\lambda \tag{2.5}$$

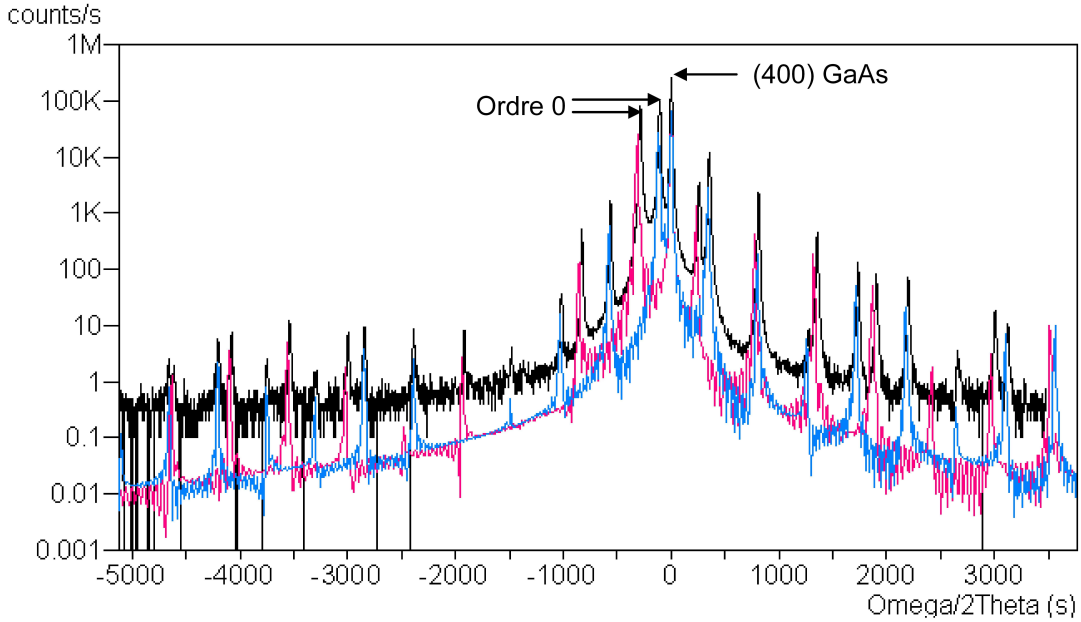


FIGURE 2.10 – Spectre de Diffraction X Haute Résolution en $\theta - 2\theta$ d'un super réseau AlAs/GaAs.

L'ajustement des profils de diffraction des deux super-réseaux (courbe rose et bleue du spectre 2.10), via un logiciel de simulation plus fine (Xpert-Epitaxy), permet de vérifier l'homogénéité des super-réseaux. Si l'ajustement des profils avec des valeurs d'épaisseurs constantes pour chaque période est correct sur l'ensemble du spectre alors on a bien déposé les mêmes épaisseurs de couches à chaque étape de la croissance. Cette information permet donc de connaître les éventuelles dérives de flux au cours d'une croissance.

2.2.3 Caractérisation électrique des couches et calibration du dopage

Dans le cadre d'un projet visant à réaliser une source de photons uniques pompée électriquement, nous avons été amenés à effectuer du dopage n dans notre bâti d'épitaxie à l'aide d'une cellule de silicium. Pour celà, nous avons calibré cette cellule, c'est à dire, mesuré le taux de dopage en fonction de la température de la cellule. Nous avons ainsi élaboré une série d'échantillons composés d'une couche épaisse de GaAs dopée au silicium pour des températures différentes de

la cellule. L'activité électrique du dopant a ensuite été caractérisée par effet Hall par la méthode Van der Pauw.

Mesures d'effet Hall : méthode Van der Pauw.

Une expérience d'effet Hall consiste à faire passer un courant dans un échantillon se trouvant dans un champ magnétique perpendiculaire à celui-ci et à mesurer la tension dite de Hall qui apparaît dans une direction perpendiculaire à ce courant et au champ magnétique (figure 2.11). Pour utiliser cette géométrie, nous avons besoin de quatre contacts ohmiques, les métaux étants évaporés dans un bâti sous vide à travers un masque.

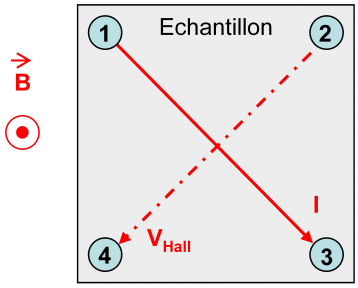


FIGURE 2.11 – Montage en configuration Van der Pauw.

Contact ohmique (choix du métal) : Pour que le contact soit ohmique, nous avons besoin que le travail de sortie du métal soit inférieur à celui du semiconducteur. Lorsque les deux matériaux sont éloignés l'un de l'autre le diagramme d'énergie est celui de la figure 2.12(a). En rapprochant maintenant les deux solides, des électrons passent du métal vers le semiconducteur : il se forme ainsi une couche de charges positives 2.12(b) à la surface du métal et négatives dans le semiconducteur au voisinage de la surface jusqu'à ce que le niveau de Fermi du métal et du semiconducteur soit le même 2.12(c). De par la présence de ces charges, on a création d'un champ électrique, donc une courbure de bandes. Les électrons transférés occupent la région où E_C est en-dessous du niveau de Fermi et constituent une couche d'accumulation. Notons que le contact ohmique sur GaAs ne relève pas de ce cas de figure très rare.

Tension de Hall : Dans la configuration Van der Pauw [156], on applique un courant entre 1 et 3 avec un champ magnétique perpendiculaire. La tension mesurée entre 2 et 4, V_{24} est alors appelée tension de Hall soit V_{Hall}. Elle est définie par :

$$V_{Hall} = \frac{IB}{peh} \tag{2.6}$$

Avec I le courant, B le champ magnétique, e la charge de l'électron (on est ici dans le cas d'un dopage n), h l'épaisseur de la couche et p la concentration de porteurs.

On a alors la concentration en porteurs :

$$p = \frac{1}{eR_{Hall}} \tag{2.7}$$

Avec R_{Hall} la constante de proportionnalité entre la tension, le courant et le champ magnétique appelée constante de Hall et notée :

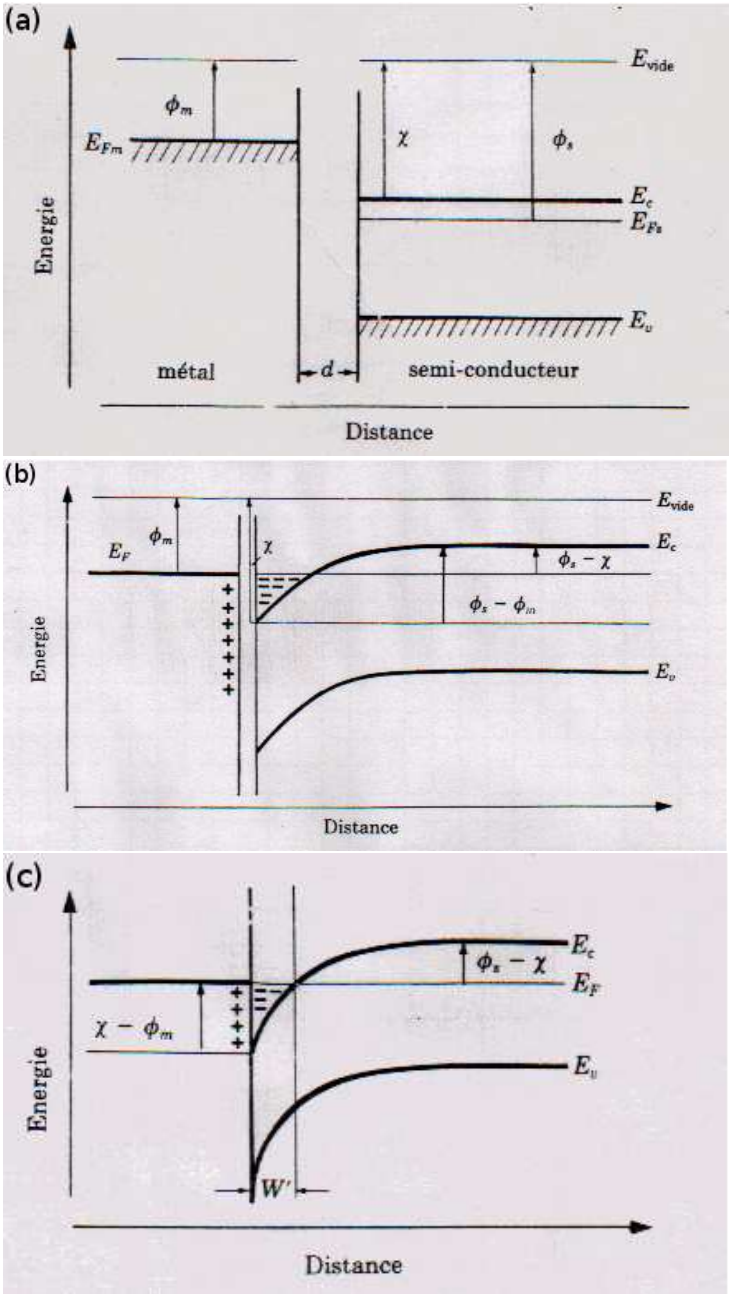


FIGURE 2.12 – Diagrammes d'énergie d'une jonction métal semiconducteur de type n.

$$\begin{aligned} R_{Hall} &= \frac{1}{pe} \\ \text{On a alors : } p &= \frac{1}{eR_{Hall}} = \frac{I}{ahe} \end{aligned} \tag{2.8}$$

Avec a la pente de la mesure 2.13 soit : V_{Hall}/B. On peut ainsi connaître la concentration de porteurs par unité de volume dans le matériau.

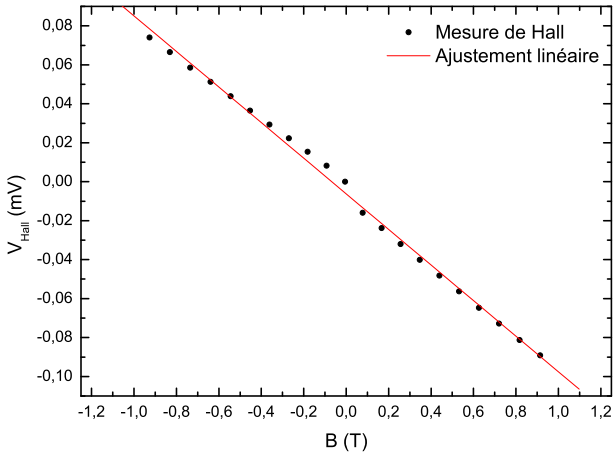


FIGURE 2.13 – Mesures d'effet Hall sur une couche épaisse de GaAs dopé 10^{18}, en noir les points expérimentaux en rouge l'ajustement linéaire.

La mesure de la tension de Hall nous permet de remonter à d'autres informations comme la résistivité et la mobilité.

Résistivité : La résistivité représente la capacité à s'opposer à la circulation du courant électrique. Sa mesure dans la configuration Van der Pauw est basée sur le théorème suivant : si les quatres contacts sont à la périphérie de l'échantillon de forme arbitraire, on a :

$$\exp\left(-\frac{\pi h}{\rho}R_{12,34}\right) + \exp\left(-\frac{\pi h}{\rho}R_{23,41}\right) = 1 \tag{2.9}$$

où $R_{12,34} = \frac{V_4 - V_3}{i_{12}}$ avec i_{12} le courant entrant par 1 sortant par 2.

On ne peut pas déduire de solution analytique de ρ de ce théorème général. Mais on peut écrire :

$$\rho = \frac{\pi h}{ln\,(2)} \frac{R_{12,34} + R_{23,41}}{2} f \tag{2.10}$$

Avec f un facteur correctif fonction du rapport $R_{12,34}/R_{23,41}$. Dans le cas où il vaut 1 alors $f = 1$. Il est défini par la relation :

$$\cosh\left(\frac{R_{12,34}/R_{23,41} - 1}{R_{12,34}/R_{23,41} + 1}\frac{\ln 2}{f}\right) = \frac{1}{2}\exp\left(\frac{\ln 2}{f}\right) \tag{2.11}$$

Mobilité : La mobilité relie la vitesse des électrons ou trous au champ électrique. Pour un semiconducteur, on peut la définir comme telle :

$$\mu = \frac{1}{\rho p e} \tag{2.12}$$

Calibration de la cellule de silicium

Pour mesurer la concordance entre la température de la cellule de silicium et le taux de dopage, nous avons donc fait croître plusieurs couches de GaAs de 1 μm d'épaisseur à une vitesse de 1 MC.s^{-1} dans lesquelles nous avons incorporé du silicium pour une température de cellule allant de 800 à 1100°C. Pour réaliser les contacts ohmiques nous avons déposé au travers d'un masque les contacts Ni/Ge/Au/Ni/Au.

La couche épitaxiée de GaAs ayant vu l'air avant d'être introduite dans le bâti d'évaporation, elle présente une oxydation de surface. Avant introduction de la couche, la plus grande partie de cet oxyde est enlevé par attaque chimique. Or, le germanium n'adhère pas sur de l'oxyde c'est pourquoi nous déposons d'abord une petite épaisseur de nickel. En effet, le nickel, lui, va consommer dans sa totalité l'oxyde du GaAs. Une fois l'oxyde consommé, la couche de nickel sera pure. Le germanium n'aura alors aucune difficulté à adhérer sur du nickel pur (2.14). Le dépôt Au/Ni/Au est présent pour des raisons de tenue mécanique. De plus, l'or contrairement au nickel ne s'oxyde pas à l'air, ce qui va permettre aux soudures nécessaires pour les mesures de Hall de tenir correctement.

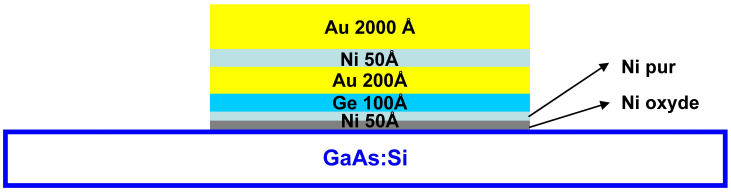


FIGURE 2.14 – Schéma des contacts réalisés.

On remarque que contrairement aux contacts ohmiques nécessaires cités précédemment nous n'avons pas : $\phi_m < \phi_{sc}$. L'idée pour s'affranchir de ce problème de contacts est de réaliser un dopage n+ à l'interface métal/semiconducteur. Pour ce faire nous réalisons un recuit de 90 s à 400°C sous vide pour permettre au germanium de diffuser. Ainsi l'interface est comparable à un contact métal/métal.

Nous avons fait des mesures d'effet Hall sur ces échantillons. Nous obtenons la courbe 2.15 qui nous donne la dépendance en température de la concentration de porteurs en $\log p \propto \frac{1}{T}$. Nous pouvons ainsi calculer la température de la cellule de silicium nécessaire pour un taux de dopage donné.

2.2.4 Croissance de boîtes quantiques InAs sur GaAs

Ces quinze dernières années, l'auto-assemblage des boîtes quantiques par épitaxie par jets moléculaires s'est imposé comme une méthode de choix pour la formation de nanostructures semiconductrices 0D. Les premières boîtes quantiques ont été développées par des techniques de lithographie de couche 2D [40], [81], il s'avère que ce procédé induit de nombreux défauts cristallins. Par la suite, d'autres méthodes ont vu le jour, comme l'épitaxie sur des substrats

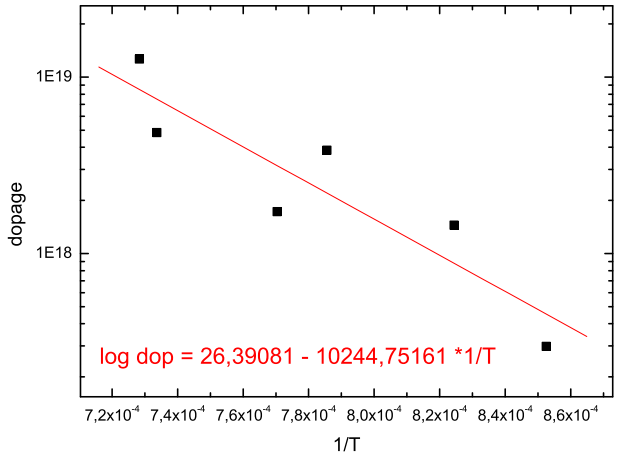


FIGURE 2.15 – Courbe de calibration de la cellule de Si pour le dopage n.

gravés [94], [51] ou bien des synthèses de nanocristaux par voie chimique [4], [71], [114]. La croissance "auto-organisée" présente plusieurs avantages sur ses homologues. Elle n'induit pas de dommage sur la structure, se réalise à bas coût et présente un ensemble de boîtes quantiques relativement homogène comme on peut le voir sur les images AFM (Atomic Force Microscope) et TEM (Transmission Electron Microscopy) de la figure 2.16.

C'est l'important désaccord de paramètres de maille entre le GaAs et l'InAs[6] (figure 2.17), de l'ordre de 7%, qui empêche l'InAs de croître de façon bidimensionnelle sur GaAs. Après la croissance bidimensionnelle d'une épaisseur d'InAs dite "épaisseur critique", on observe la formation d'îlots, sur un dépôt d'une couche 2D de l'ordre de 1 MC, appelée "couche de mouillage" on se situe donc ici dans le mode de croissance Stranski-Krastanov. Expérimentalement ces îlots d'InAs sont encapsulés dans du GaAs et utilisés pour leurs propriétés d'émission. C'est pour cela qu'il est important de pouvoir contrôler leurs tailles mais aussi leur densité car ce sont celles-ci qui définissent la longueur d'onde de leur émission.

La transition entre le puits quantique et la formation d'un plan de boîtes quantiques se fait aux alentours de 1.7 MC. On a besoin d'un contrôle précis des vitesses de croissance pour obtenir les boîtes quantiques souhaitées. Pour cela, comme dans le cas des couches bidimensionnelles, on utilise le diagramme de rayonnement RHEED. Pour mesurer les vitesses de croissance, on réalise une couche tampon de GaAs, le RHEED est alors totalement bidimensionnel. Après l'ouverture du cache d'InAs, le RHEED reste semblable (tiges) jusqu'à l'épaisseur critique où on voit apparaître des taches lumineuses intenses (figure 2.18) caractéristiques de la formation d'îlots [66], [62], [121], [75], [138]. Cette transition se traduit par une forte augmentation de l'intensité du RHEED. La mesure du temps entre l'ouverture du cache et la transition nous donne le temps de transition 2D/3D : t_{3D} (figure 2.19). Cette valeur nous permet alors de connaître la vitesse de dépôt.

Comme précédemment, c'est le flux d'In qui contrôle le t_{3D} et c'est donc la température de la cellule qui modifie la vitesse de croissance. Une différence réside dans la température du substrat

6. a_0 = 6.0574 Å

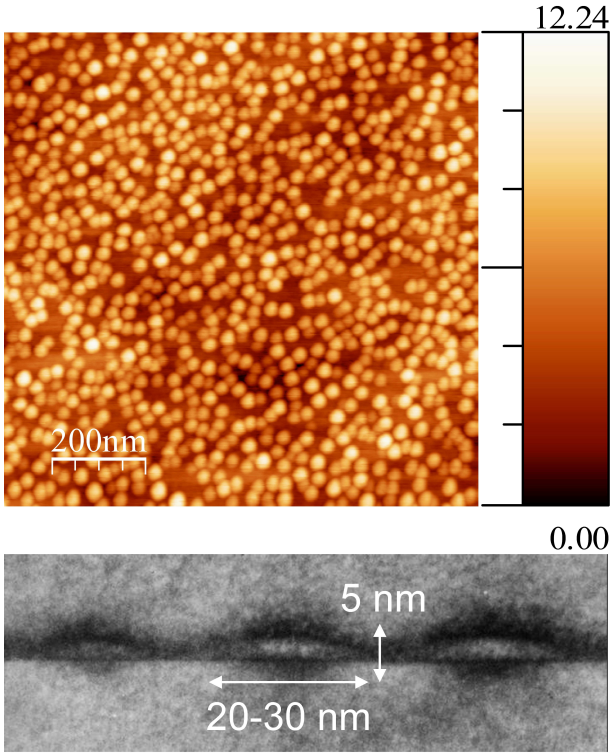


FIGURE 2.16 – Image AFM réalisée au cours de cette thèse (2.1MC avec t_{3D}=5s) et image TEM d'un plan de boîtes quantiques d'InAs [132].

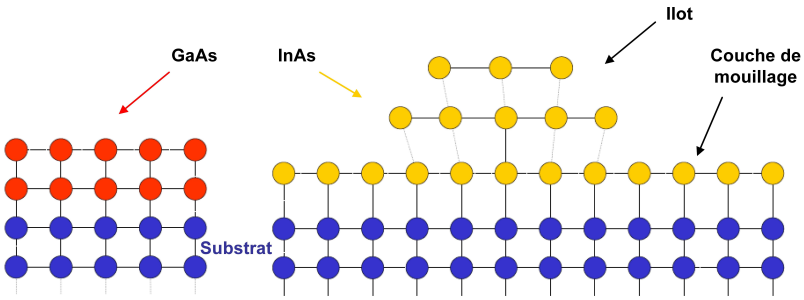


FIGURE 2.17 – Représentation schématique du mode de croissance 2D ici d'éléments de même paramètre de maille (GaAs ou AlAs sur substrat GaAs) et mode de croissance d'îlots 3D avec relaxation élastique (InAs sur GaAs).

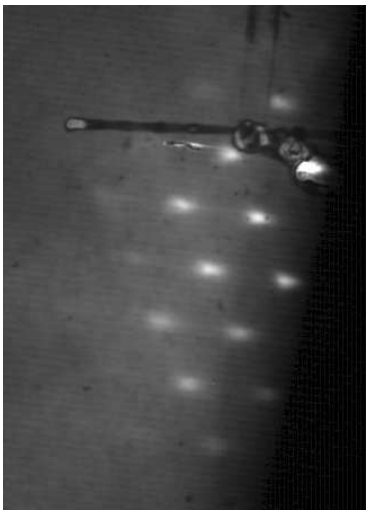


FIGURE 2.18 – Diagramme RHEED tridimensionnel caractéristique de la formation de boîtes quantiques d'InAs.

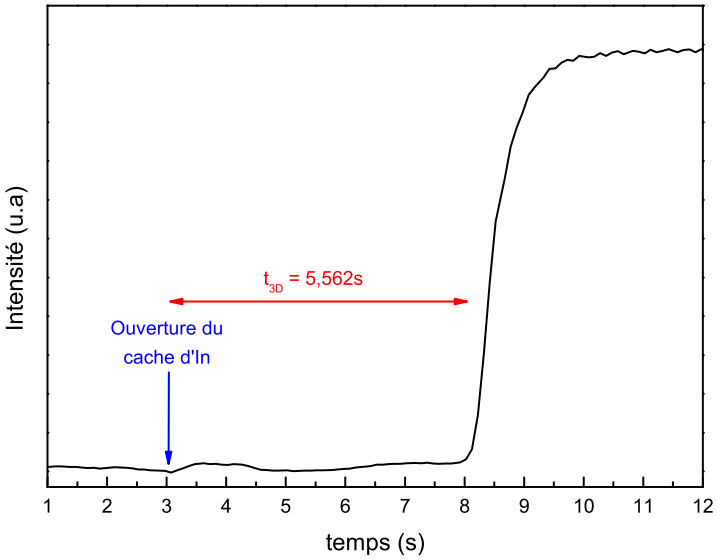


FIGURE 2.19 – Mesure de transition (t_{3D}) de l'InAs, la flèche indique l'ouverture du cache d'In.

qui, ici, a une importance non négligeable. Pour obtenir une bonne qualité cristalline d'une hétéro-structure InAs/GaAs, il est nécessaire d'utiliser des températures de substrat assez hautes (500-540°C) par rapport à la température de sublimation congruente de l'InAs (T_{cong} ~380°C) [122]. Au delà de 540°, la vitesse de désorption devient importante. Il faut donc travailler en excès d'As et à une température inférieure à 540°C pour éviter une réévaporation significative de l'In.

Entre chaque mesure de vitesse de croissance des îlots, il est important de désorber le plan de boîtes quantiques. En effet, la présence de celui-ci va influencer le temps de transition du suivant du fait des contraintes. En portant le substrat à une température de l'ordre de 300°C et après quelques minutes, on peut désorber totalement les boîtes quantiques en surface et revenir à une surface 2D.

Les paramètres clefs de la croissance des boîtes quantiques d'InAs sont les temps de dépôt, la quantité de matière déposée et la réalisation éventuelle d'un arrêt de croissance après le dépôt de la couche d'InAs. Ce sont leurs variations qui vont engendrer des modifications significatives des leurs propriétés optiques.

En effet, la quantité de matière déposée va modifier la densité d'îlots. Sur la figure 2.20(a), on voit nettement qu'en augmentant l'épaisseur d'InAs déposée, on augmente également la densité d'îlots [96]. Cette densité est mesurée par AFM sur un plan de boîtes quantiques resté en surface (non encapsulé dans du GaAs). Prenons comme exemple l'image 2.16, montrant un plan de boîtes quantiques de 2.1MC avec t_{3D}=5s et présentant une densité de l'ordre de 10^{11} cm^{-2}. On observe aussi un décalage de l'énergie de luminescence des boîtes quantiques en fonction de la quantité de matière déposée (figure 2.20(b)). On constate que plus les boîtes sont petites plus elles émettent à haute énergie. Par ailleurs sur ce même graphique, on observe des différences suivant le temps de dépôt utilisé. A quantité déposée égale mais avec un temps de dépôt plus long, les boîtes quantiques vont émettre à plus basse énergie. En effet, en augmentant le temps de dépôt, on favorise la formation d'îlots de plus grande taille, les atomes ayant plus de temps pour se réarranger avant l'encapsulation. Il se produit le même phénomène, si cette fois on garde la même quantité de matière et le même temps de dépôt mais en ajoutant un arrêt de croissance avant l'encapsulation pour permettre aux atomes de se réarranger. En résumant, plus on dépose de matière plus la densité sera importante et plus l'énergie sera basse ; en augmentant le temps de dépôt, on favorise la formation d'îlots de grande taille et on décale l'émission vers les basses énergies.

Nous nous sommes aussi intéressés à un type d'échantillon particulier dit à "zone frontière" [67]. Il s'agit d'appliquer un gradient d'épaisseur d'InAs sur l'échantillon lors du dépôt, l'échantillon présente alors une zone à puits quantique, une zone à boîtes quantiques et une zone de transition entre les deux où les deux cohabitent. Pour réaliser un tel échantillon, deux possibilités existent : soit incliner le porte échantillon, soit avoir une cellule d'In dont le flux est décalé par rapport au centre du porte échantillon, ce qui est notre cas. On a alors des quantités différentes de matière déposée suivant la zone regardée. Cet échantillon présentera des zones 2D, à puits quantique, d'autre 3D, à boîtes quantiques et enfin une zone transitoire où cohabitent boîtes quantiques et puits quantique comme le montrent les spectres de la figure 2.21. Les spectres réalisés sur la zone frontière montrent la cœxistence d'un puits quantique, vers 1.4eV, et de boîtes quantiques, vers 1.3eV. Plus on se rapproche de la zone 2D plus l'intensité de l'émission du puits domine le spectre, de même en se rapprochant de la zone 3D, c'est l'émission des boîtes quantiques qui devient dominante. En observant maintenant l'évolution du pic d'émission en fonction de la position sur l'échantillon, il apparaît nettement un gradient d'épaisseur qui se traduit par un décalage de l'énergie d'émission. L'intérêt de ce type d'échantillon à zone frontière est la densité de boîtes quantiques très faible ; on peut alors en particulier plus aisément en isoler une

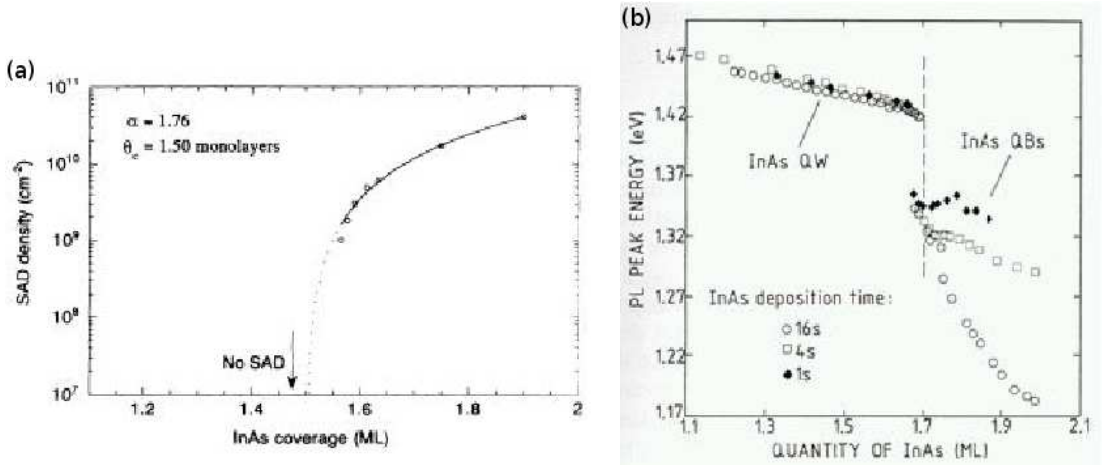


FIGURE 2.20 – Evolution (a) de la densité de boîtes quantiques en fonction de la quantité d'InAs déposée [96] et (b) du pic d'énergie de photoluminescence de la distribution de boîtes quantiques obtenues pour différents temps de dépôt en fonction de la quantité d'InAs déposée [28].

en microphotoluminescence.

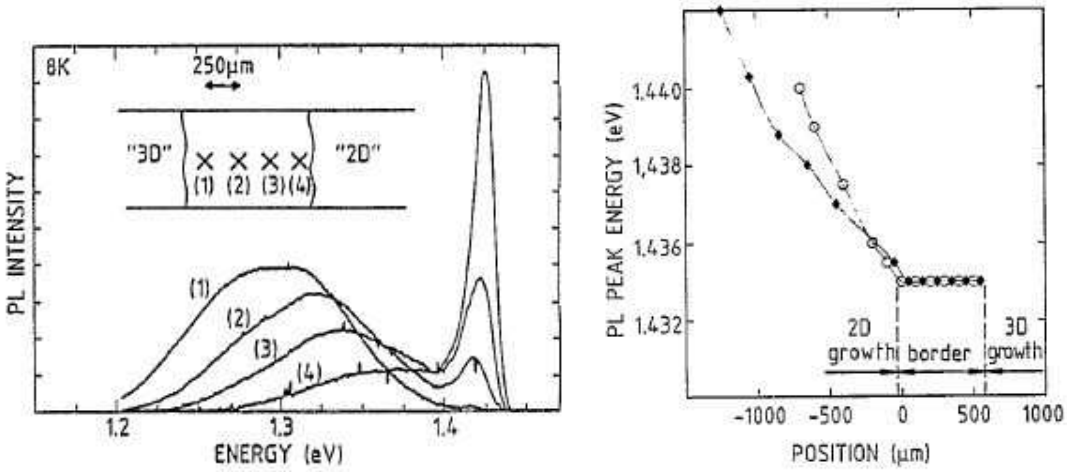


FIGURE 2.21 – Evolution du spectre de photoluminescence pour plusieurs positions sur la zone frontière et évolution de l'énergie d'émission en fonction de la position sur l'échantillon [67].

Dans le cadre de cette thèse, les deux thématiques abordées ont nécessité des boîtes quantiques avec des propriétés différentes.

- Dans le cadre des sources de photons uniques, on cherche à isoler la transition fondamentale d'une boîte unique. Pour ce faire, on a besoin d'un plan de boîtes dilués c'est à dire avec une faible densité, soit typiquement une épaisseur de 1.9 MC pour un temps de dépôt rapide (t_{3D} = 1 s). Pour minimiser le nombre de boîtes visibles spectralement et s'affranchir des états excités, on choisit la longueur d'onde dans la queue de la distribution ($\sim$ 1.3 eV).
- Pour le projet microlaser, on cherche à avoir suffisamment de boîtes pour observer un effet laser dans nos structures, d'où la nécessité d'une forte densité de l'ordre de 10^{10} cm^{-2}. De

plus, de façon pratique, on cherche une longueur d'onde d'émission en adéquation avec nos détecteurs Si. C'est pour ces raisons que nous avons choisi de déposer des boîtes d'épaisseur 2.2 MC avec un temps de dépôt de 1 s (figure 2.22).

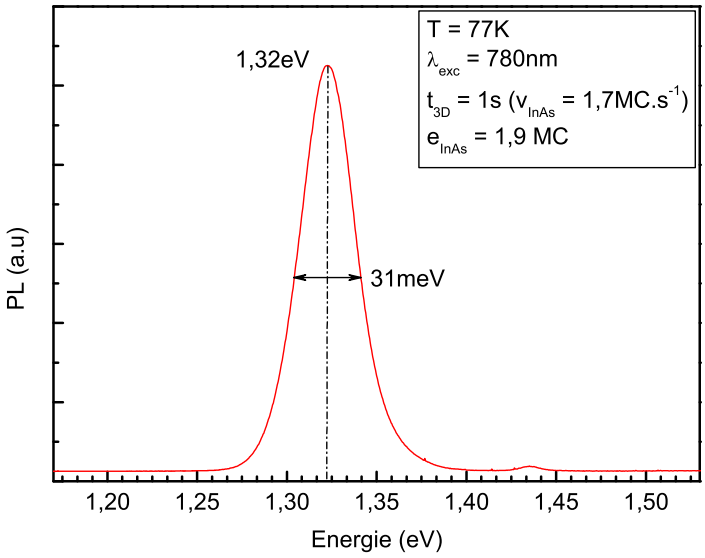


FIGURE 2.22 – Spectre de macrophotoluminescence d'un plan de boîtes quantiques de 1.9MC pour un t_{3D}=1s à $T_{substrat}$ = T_{Ox}-50°C.

2.2.5 Cavités à miroirs de Bragg AlAs/GaAs

Généralités :

Les miroirs métalliques ont une réflectivité limitée, autour de 95% pour un miroir d'Au pour une longueur d'onde de 1 μm en incidence normale. De plus, ces miroirs ne sont pas transparents dans le visible et le proche infra-rouge. C'est pour les besoins de l'optique et l'optoélectronique qu'il a été nécessaire de développer des miroirs de plus haute réflectivité à partir de matériaux diélectriques non absorbants.

C'est pourquoi, les miroirs de Bragg à réflexion distribuée ont été développés. Ils sont composés d'empilements de couches diélectriques et exploitent le phénomène d'interférences constructives entre les ondes réfléchies aux différentes interfaces des couches. On peut ainsi atteindre, pour un empilement de couches d'épaisseur optique égale au quart de la longueur d'onde, une réflectivité très élevée (>99.99%) dans une gamme spectrale précise selon un angle d'incidence proche de la normale.

La structure de nos miroirs est constituée d'empilements de couches de GaAs et AlAs d'épaisseurs et indices respectifs l_1, n_1 [19] et l_2 n_2 [46]. La relation de Bragg est alors vérifiée si :

$$n_1 l_1 = n_2 l_2 = \frac{\lambda_{Bragg}}{4} \tag{2.13}$$

Avec λ_{Bragg} la longueur d'onde pour laquelle on veut la plus haute réflectivité en incidence normale. La réflectivité de ces miroirs est donc très sensible à la longueur d'onde mais aussi à l'angle d'incidence. En effet, la réflectivité est maximale pour une faible gamme spectrale appelée "stop-band" qui peut s'exprimer comme telle :

$$\Delta\lambda = \frac{2\lambda_{Bragg}\Delta n}{\pi n_{eff}} \sim \frac{4\lambda_{Bragg}}{\pi}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right) \tag{2.14}$$

Pour la longueur d'onde résonante λ_{Bragg}, la réflectivité d'un miroir de Bragg est maximum dans un cône d'angle $\Delta\theta$ autour de l'incidence normale. Pour un miroir AlAs/GaAs, celui-ci est de l'ordre de 20°, au delà, la réflectivité diminue dramatiquement. L'angle de la "stop-band" peut être estimé par :

$$\Delta\theta_{stopband} = \pm\sqrt{\frac{2\Delta\lambda}{\lambda_{Bragg}}} = \pm 2\sqrt{\frac{\Delta n}{\pi n_{eff}}} \tag{2.15}$$

En insérant une cavité dans les empilements, on observe alors des modes résonants de type Fabry-Pérot. Pour que la position du mode résonant soit au centre de la stop-band, on utilise une épaisseur :

$$n_1 L = m\lambda_{Bragg} \tag{2.16}$$

Où L est la longueur de la cavité et m définit l'ordre de la cavité. On parle de "cavité λ". La présence d'une résonance Fabry-Pérot se traduit par l'apparition d'un creux dans la "stop-band". La largeur spectrale du pic de la cavité dépend de la réflectivité de chaque miroir et donc du nombre de paires d'AlAs/GaAs.

Conditions de croissance, quelques résultats expérimentaux :

La croissance d'une cavité à miroirs de Bragg demande une grande précision sur les vitesses de croissance. Si on veut insérer des émetteurs dans notre cavité, les épaisseurs des couches et de la cavité doivent être parfaitement ajustées à la longueur d'onde d'émission de ces émetteurs.

Ces couches sont caractérisées par des mesures de réflectivité à l'aide d'un spectromètre FTIR [65] utilisé à température ambiante. C'est l'ajustement de ces spectres aux simulations qui nous permet de connaître les épaisseurs déposées et donc de vérifier les calibrations des vitesses (partie 2.2.2).

Le spectre 2.23 d'une cavité symétrique à 1.3 μm réalisée au cours de cette thèse[7] montre un faible désaccord entre le spectre théorique (bleu) et la courbe expérimentale (noire) et l'ajustement (rouge). Cette différence provient de l'incertitude sur les mesures de calibration des vitesses mais aussi au phénomène dit de "burst" qui peut introduire des erreurs dans la mesure. Lorsque le cache d'une cellule d'élément III est fermé, il se crée une petite surpression du flux. A l'ouverture du cache, le flux est donc plus élevé qu'en régime stable pendant quelques dizaines de secondes. C'est ce phénomène que l'on nomme "burst", durant celui-ci les vitesses de croissance sont surestimées de 8 à 4% pendant 15 secondes ce qui correspond au dépôt d'environ 15 MC [119]. De plus, lorsqu'on ouvre le cache, la source se refroidit par rayonnement, le point d'équilibre de la température varie et donc la vitesse.

Pour obtenir une bonne qualité cristalline, les paramètres de croissance adaptés correspondent à une vitesse de croissance de l'ordre de la monocouche seconde, qui permet d'éviter d'incorporer

7. Collaboration avec Willem L. Vos de l'Institut AMOLF (Atomic and Molecular Physics) d'Amsterdam.

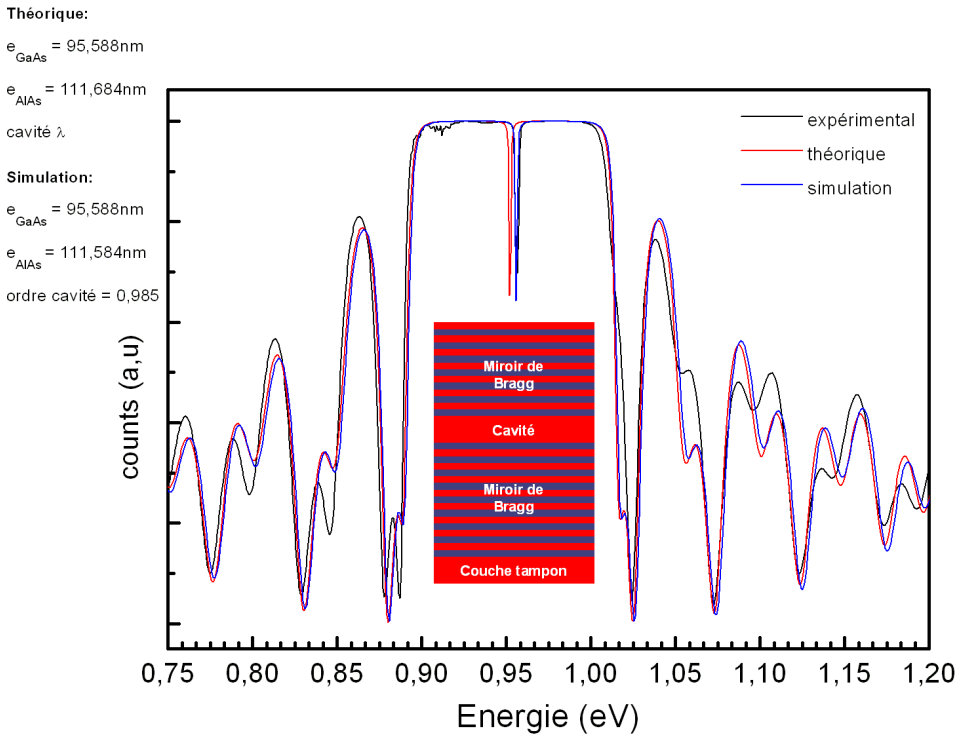


FIGURE 2.23 – Spectre de réflectivité d'une cavité λ à 1.3μm (noir) et les spectres correspondants aux valeurs nominales des épaisseurs (bleu) et à leurs valeurs ajustées (rouge).

des impuretés et une température de substrat de T_{Ox}-40°C, ce qui permet de peu la modifier lors de la croissance des boîtes quantiques. Notons, que si la cavité ne contient pas de boîtes quantiques, nous utilisons la température de croissance standard du GaAs soit T_{Ox}+10°C.

La figure 2.24 présente le spectre de réflectivité d'une microcavité planaire épitaxiée au cours de cette thèse. Elle présente un plan de boîtes quantiques dont l'émission visée est centrée sur le pic de la cavité. Pour vérifier que le mode de cavité soit dans la bande d'émission fondamentale des boîtes quantiques, nous avons retiré le miroir supérieur de façon contrôlée par gravure RIE (Reactive Ion Etching). Nous pouvons ainsi observer le spectre de luminescence des émetteurs de la cavité.

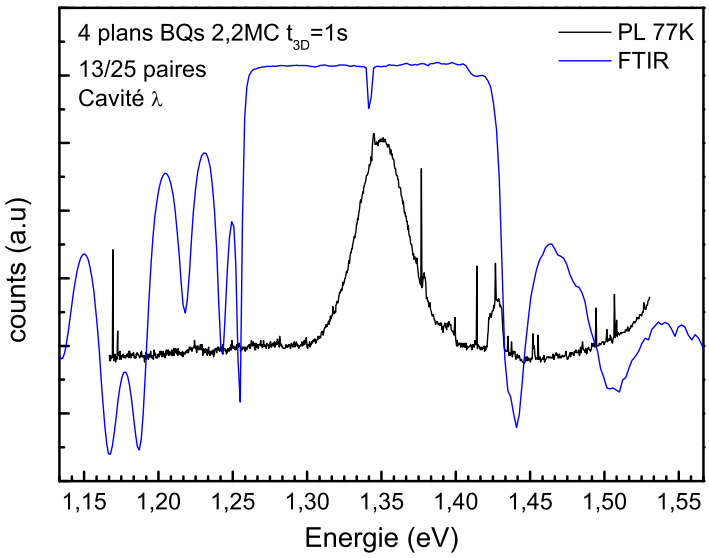


FIGURE 2.24 – En bleu la mesure FTIR de la cavité planaire (ajustée à basse température), en noir macrophotoluminescence du plan de boîtes inséré dans la cavité λ.

2.3 Photoluminescence

On appelle photoluminescence ou fluorescence le processus d'émission des photons par une substance en réponse à une excitation optique. La figure 2.25 décrit les processus d'excitation et de relaxation impliqués dans un semiconducteur. Le principe des mesures est basé sur l'analyse spectrale de la lumière émise par l'échantillon lorsqu'il est excité par des photons d'énergie généralement supérieure à son énergie de bande interdite. Les spectres de luminescence résultent de la recombinaison radiative des porteurs électron-trou créés par l'absorption du faisceau, après relaxation de ceux-ci en bas de bande de conduction (électrons) et haut de bande de valence (trous).

Les recombinaisons bande à bande correspondent à la recombinaison entre états proches du minimum de la bande de conduction et du maximum de la bande de valence d'un semiconducteur à bande interdite. Dans ce cas, la photoluminescence nous renseigne sur le gap de la structure

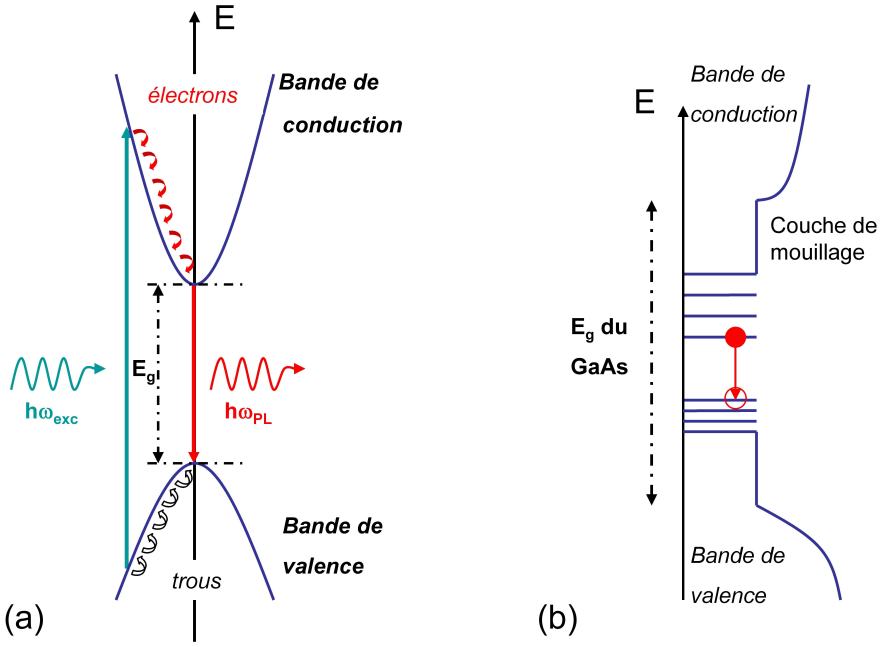


FIGURE 2.25 – Diagramme de bandes pour le processus de photoluminescence dans le cas d'un gap direct (a), d'une boîte quantique InAs (b).

E_g (figure 2.25(a)). Notons que dans le semiconducteur massif, la photoluminescence en régime de faible excitation peut être dominée par des transitions associées à des impuretés.

Dans le cas des boîtes quantiques, on observe le signal de photoluminescence associé à leurs transitions optiques fondamentales (figure 2.25(b)). L'absorption d'un photon crée une paire électron-trou, liée par interaction coulombienne, ce qui entraîne la formation d'un état excité, à une énergie inférieure à l'énergie de la bande interdite du matériau, nommé exciton. En régime de forte excitation (plus d'une paire électron/trou injectée dans la boîte quantique par temps de vie), on a un effet de remplissage, les niveaux excités supérieurs, comme le biexciton, apparaissent sur le spectre.

2.3.1 Micro-photoluminescence

Dans le cadre de cette thèse, nous avons réalisé des mesures de micro-photoluminescence. Une expérience de micro-photoluminescence est une expérience de photoluminescence avec une résolution spatiale de l'ordre du micromètre. Elle permet par exemple de cartographier des échantillons inhomogènes ou encore d'étudier des nano-objets isolés sur une surface.

Nous disposons d'un laser Argon continu, Spectra-Physics modèle Stabilite 2017, fonctionnant en monomode ou multimode à 488 nm selon le miroir arrière de cavité utilisé. En régime monomode, sa puissance maximum est de 5 W et on l'utilise pour pomper un laser Ti :Saphir. Ce dernier est un laser Spectra-Physics, modèle 39S accordable de 700 à 850 nm. Avec ce système, nous obtenons typiquement 400 mW en sortie du Ti :Sa pour une longueur d'onde de 800 nm.

Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de microscope d'ouverture numérique 0.4, le spot d'excitation mesure 3 μm. Des densités optiques, placées sur le faisceau, permettent de varier la puissance incidente, puissance mesurée à la sortie du cube séparateur en amont de l'échantillon (figure 2.26). En parallèle, nous avons placé un système d'éclairage en

lumière blanche pour une meilleure visualisation de l'échantillon à la caméra. Nous possédons deux caméras de visualisation, l'une placée juste avant l'entrée dans le monochromateur et une CCD amovible à l'intérieur de celui-ci. Afin de ne pas être géné par le laser, un filtre, permettant de couper la raie du laser et de laisser passer le signal d'émission, est placé après le cube séparateur. Le monochromateur Jobin-Yvon d'un mètre de focale, est équipé de deux réseaux, un 600 traits/mm (résolution $0.08 - 0.09$nm soit $130 - 120$ μeV) et un 1800 traits/mm (résolution de 0.03 nm soit 40 μeV).

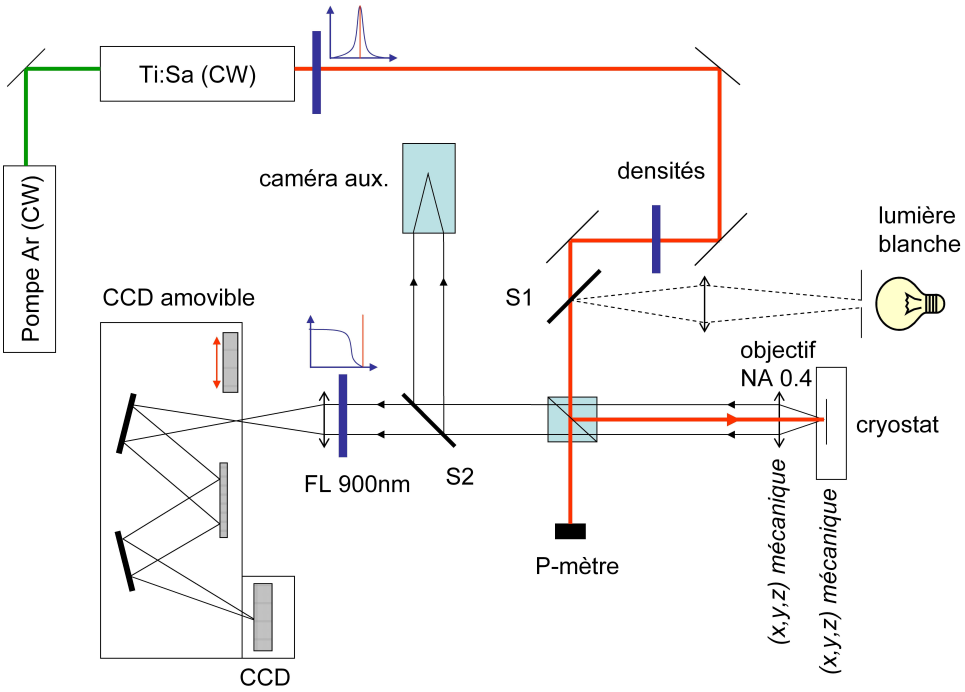


FIGURE 2.26 – Schéma du banc d'optique de micro-photoluminescence.

2.3.2 Photoluminescence résolue en temps

Dans un second temps, des mesures de photoluminescence résolue en temps ont été réalisées. Dans ce cas, nous excitons l'échantillon avec un laser impulsionnel puis nous regardons le déclin du signal de photoluminescence en fonction du temps. Ces mesures nous donnent accès au temps de vie des porteurs dans le matériau.

Nous disposons d'un laser Ti :Saphir Mira 900 de chez Coherent. Il est accordable de 700 nm à 950 nm et peut fonctionner en mode impulsionnel ou continu. Les impulsions sont de l'ordre de 200 fs avec une fréquence de répétition de 76 MHz. On le pompe via un laser Verdi continu à 532 nm de puissance maximale 5 W. On obtient une puissance moyenne de 800 mW en sortie.

Le système peut être étendu avec un système de "cavity dumper" qui permet de réduire la fréquence de répétition du laser. On peut aussi générer la seconde et troisième harmonique via un cristal doubleur-tripleur.

Le laser est ensuite envoyé sur l'échantillon via un objectif monté sur des platines piézoélectriques. Nous utilisons principalement un objectif de focalisation X63 d'ouverture numérique NA $= 0.75$, possédant une bague de correction des aberrations sphériques, adaptable à l'épaisseur

de la fenêtre du cryostat. Nous possédons également un objectif X20 d'ouverture NA = 0.4. On dispose aussi d'un éclairage en champ large pour visualiser l'échantillon à la caméra. L'échantillon est placé dans un cryostat Oxford refroidi à l'hélium liquide. Son émission est collectée par le même objectif (montage confocal).

Un cube dichroïque permet de réfléchir l'excitation et de transmettre l'émission. On place ensuite un filtre FL900 pour filtrer le laser de pompe.

Pour l'analyse spectrale du rayonnement émis, nous disposons d'un monochromateur de type Czerny-Turner contenant trois réseaux : un 150 traits/mm et deux 1200 traits/mm de résolution 0.3 nm, avec une focale de 311 mm. Le signal peut être analysé par deux détecteurs : une caméra à balayage de fente, avec une résolution de $2-3$ ps pour une fenêtre de 250 ps et $10-12$ ps pour une fenêtre de 2200 ps, et des APD (Photodiodes à avalanche Si) avec une résolution temporelle de l'ordre de 250 ps. Les APD sont installées en montage Hanbury-Brown et Twiss (schéma 2.27).

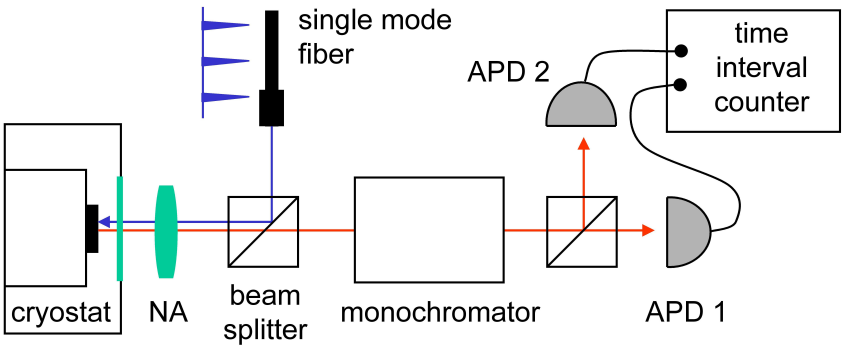


FIGURE 2.27 – Schéma du banc d'optique de photoluminescence résolue en temps.

Chapitre 3

Source de Photons Uniques : une nouvelle géométrie, les nanofils

Sommaire

3.1 Propriétés d'une source de photons uniques 60
3.1.1 Définition 60
3.1.2 Applications potentielles 61
3.1.3 Obtention d'un photon unique 63
3.2 Vers une source de photons uniques efficace : contrôle de l'émission spontanée 67
3.2.1 Approche géométrique 68
3.2.2 Contrôle de l'émission spontanée par une microcavité 68
3.3 Une nouvelle géométrie de confinement optique : les fils photoniques 72
3.3.1 Contrôle de l'émission spontanée 73
3.3.2 Méthode de fabrication 85
3.4 Résultats expérimentaux 87
3.4.1 Mesures de micro-photoluminescence 87
3.4.2 Mesures de temps de vie 90
3.4.3 Mesures de corrélation de photons 91
3.4.4 Mesure d'efficacité 94
3.5 Perspectives 97
3.5.1 Pompage électrique 97
3.5.2 Applications potentielles 98
3.5.3 Inconvénient et solutions proposées 99
3.5.4 Génération de photons indiscernables 99
3.6 Inhibition de l'émission spontanée dans les fils photoniques 99
3.6.1 Mesure de l'inhibition dans les fils photoniques 100
3.7 Conclusion 101

C'est la validation des protocoles de cryptographie quantique pour des applications dans les communications sécurisées qui a stimulé l'étude des sources de photons uniques depuis les années 90. De plus, leur utilisation pour les calculs quantiques a été proposée par Knill et al [89]. A l'heure actuelle, de nombreuses équipes travaillent sur la réalisation de sources de photons uniques via différentes approches.

Dans ce chapitre, nous présenterons les propriétés nécessaires à de telles sources puis un bref état de l'art. Dans un second temps, nous exposerons nos travaux sur une nouvelle approche : l'intégration d'une boîte quantique dans un fil photonique. Nous montrerons l'intérêt de cette nouvelle approche ainsi que ses performances.

3.1 Propriétés d'une source de photons uniques

3.1.1 Définition

On appelle source de photons uniques, une source lumineuse capable d'émettre de façon déterministe une impulsion lumineuse contenant un et un seul photon. Rappelons que, pour une impulsion lumineuse émise par une source conventionnelle, le nombre N de photons émis est au contraire mal défini ; c'est par exemple le cas pour une source thermique, telle qu'une lampe à incandescence ($\Delta N \sim \langle N \rangle$), ou encore pour une source laser ($\Delta N = \langle N \rangle^{\frac{1}{2}}$).

Plusieurs émetteurs peuvent se porter candidats pour la réalisation d'une source de photons uniques tels que les molécules, les nanocristaux, les centres colorés, les ions, les boîtes quantiques. L'inconvénient majeur de ces émetteurs est de présenter une émission spontanée omnidirectionnelle lorsqu'ils sont placés dans un milieu uniforme. Tous les photons ne peuvent être collectés par un système simple comme une fibre optique. On perd donc beaucoup en terme d'efficacité.

La seconde condition pour avoir une source de photons uniques utiles consiste donc à préparer les photons dans un même état quantique et à les collecter efficacement. Une solution consiste à inclure l'émetteur dans une microcavité optique qui permet de rediriger l'émission dans un seul et même mode. Le couplage entre le dipôle de l'émetteur et le champ électromagnétique de la microcavité permet aux photons de s'échapper préférentiellement via un mode de la cavité.

Un autre critère sur les photons uniques porte sur leur indiscernabilité. En effet, le processus d'interférences à deux photons [73], par exemple, peut être mis en œuvre à partir de deux photons uniques identiques émis par deux émetteurs différents ou bien émis séquentiellement par le même émetteur tels que des atomes, des molécules ou bien des boîtes quantiques. Cependant, ces émetteurs interagissent avec leur environnement. Chaque photon unique rayonné sera alors "marqué" en longueur d'onde par les fluctuations auxquelles est soumis le dipôle pendant l'émission. En règle générale, ces processus de déphasage sont aléatoires, de sorte que les photons issus séquentiellement du même émetteur vont être marqués différemment. Ces photons seront donc discernables, à moins que la durée d'émission d'un photon ne soit beaucoup plus courte que le temps caractéristique d'interaction de l'émetteur avec l'environnement. Prenons le cas d'une boîte quantique d'InAs dans du GaAs massif à 4K, sa durée de vie radiative est de l'ordre de 1.5ns pour un temps de déphasage de quelques centaines de picosecondes [85], [158]. Pendant le processus d'émission, l'énergie du photon va changer (légèrement) plusieurs dizaines de fois, détruisant la cohérence du processus d'émission. Les photons ne peuvent pas être indiscernables avec ce type d'émetteurs. Une solution pour contourner ce problème est de coupler le dipôle émetteur au mode fondamental d'une cavité optique de très petit volume. Ce couplage permet de diminuer le temps de vie radiatif de l'émetteur (effet Purcell), ainsi, le photon est émis avant que les mécanismes de pertes de cohérence interviennent [16], [95], [137]. Notons qu'il est possible de s'affranchir de l'emploi de cavité si le temps de vie naturel du dipôle est bien plus court que le processus de déphasage, comme cela est le cas par exemple, pour l'exciton piégé sur un donneur dans certains matériaux [87], [157].

3.1.2 Applications potentielles

Actuellement, le développement de sources de photons uniques est principalement motivé par leur intérêt pour la métrologie, la cryptographie et les calculs quantiques. Ces différents domaines requièrent de la source de photons uniques des propriétés et des niveaux de performances différents.

La métrologie

En métrologie, la source de photons uniques pourrait être utilisée comme étalon d'énergie par exemple. Considérons par exemple la calibration d'un détecteur, sur lequel on envoie une impulsion lumineuse contenant N photons en moyenne (figure 3.1). Dans le cas d'un laser l'erreur est de $\Delta E = \hbar\omega\sqrt{\langle N\rangle}$. En considérant maintenant une source de photons uniques non parfaite, l'erreur est de $\Delta E = \hbar\omega\sqrt{(1-\epsilon)\langle N\rangle}$, avec ici $\epsilon < 1$ l'efficacité de la source. On voit bien que l'élément critique est l'efficacité de la source. Il faudrait que ϵ soit supérieur à 99% pour améliorer d'un facteur 10 la précision sur l'énergie déposée ΔE par rapport à un faisceau laser.

Les performances actuelles en terme d'efficacité sont encore loin des valeurs requises ($\epsilon \sim$40%). A court terme, les sources de photons uniques seront plus probablement employées comme étalons secondaires. On peut par exemple espérer, pour une source dont l'efficacité de collection est limitée seulement par des problèmes géométriques, obtenir une meilleure stabilité dans le temps que pour un étalon exploitant l'émission d'un laser ou d'une source thermique.

FIGURE 3.1 – Illustration de la calibration d'un détecteur.

La cryptographie quantique [15]

Prenons maintenant le cas de la cryptographie quantique. Les théories de l'information quantique reposent sur trois personnages : Alice l'émetteur du message, Bob le récepteur et Eve l'espion. Alice cherche à construire avec Bob une clef de codage avec une sécurité absolue. Si Eve espionne la ligne, elle doit être repérée de façon à ce que la clef corrompue ne soit pas utilisée. Prenons le protocole défini par Bennett et Brassard, qui utilise le codage en polarisation de photons uniques.

Alice dispose d'une source de photons uniques dont elle connait la polarisation. Les photons sont ensuite émis aléatoirement dans une base de polarisation rectiligne ou diagonale. Alice envoie à Bob de manière aléatoire les 4 états de polarisation possibles ($\uparrow$, $\rightarrow$, $\nearrow$, $\searrow$). Bob mesure la polarisation de ces photons en choisissant au préalable l'une des deux mêmes bases de manière aléatoire et indépendante d'Alice. Sur une ligne publique, Alice compare avec Bob les bases employées pour l'émission et la détection des photons et ils ne conservent que les mesures réalisées dans la même base soit statistiquement la moitié des résultats. Alice et Bob sacrifient et comparent une fraction des résultats restants. S'il n'y a pas d'espion, les résultats sont identiques aux erreurs induites par le système près (bruits des détecteurs). Par contre, si Eve effectue aussi des mesures dans ces deux bases de façon aléatoire et indépendante, et envoie aussitôt à Bob un photon avec la polarisation corespondant à sa mesure, celle-ci passera inaperçue si elle est dans la même base qu'Alice. Dans le cas contraire, Eve projette le vecteur polarisation sur sa base qu'elle envoie à Bob qui à son tour le projette dans sa base qui est la même qu'Alice. Bob n'a

plus qu'une probabilité 1/2 d'obtenir le même vecteur polarisation qu'Alice. Eve modifie donc en moyenne un quart des polarisations envoyées par Alice (figure 3.2)

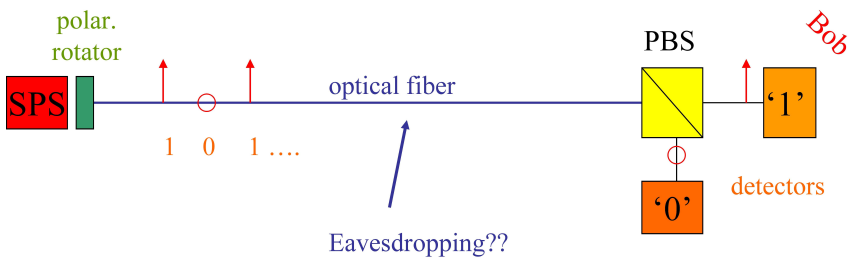


FIGURE 3.2 – Protocole de cryptographie quantique.

Dans ce protocole, l'utilisation de photons uniques est le garant de la sécurité de la clef de codage. Si la source émet plus d'un photon, rien n'interdit à Eve d'extraire ces photons supplémentaires puis de déterminer leur polarisation sans être vue par Alice et Bob.

La cryptographie quantique a donc besoin d'une source de photons uniques quasi parfaite, soit un g_2 très faible, mais aussi d'une forte efficacité pour améliorer la portée de la liaison sécurisée ou augmenter son débit à portée constante [25]. En effet, on ne sait "purifier" une clef comportant des erreurs que si celle-ci comporte moins de 10% de bits erronés. Pour une source de photons uniques (sans impulsions multiphotoniques) la portée de la liaison sera limitée par la condition $\epsilon.t > 10d$ (où ϵ l'efficacité de la source, t la transmission et d le débit).

Les calculs quantiques

L'intérêt des photons comme supports de bits quantiques a été en partie généré par la proposition de E. Knill, R. Laflamme et G.J. Milburn [89]. Ils démontrent que des calculs quantiques peuvent être réalisés à partir uniquement d'éléments d'optique linéaire.

Ce principe repose sur l'interférence quantique. Si un seul photon est envoyé sur une lame séparatrice, il peut ressortir sur une voie de sortie comme sur l'autre (figure 3.3). Si par contre deux photons indiscernables (en terme de polarisation et de fréquence) arrivent simultanément sur une lame séparatrice alors la mécanique quantique montre que les deux photons ressortiront forcément ensemble sur l'une ou l'autre voie. Le premier critère est donc d'avoir une source de photons uniques indiscernables.

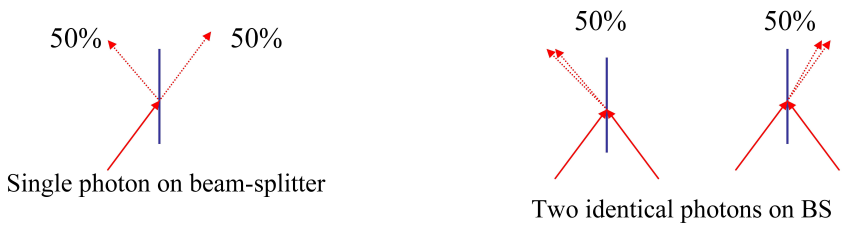


FIGURE 3.3 – Schéma du passage de un ou deux photons dans une lame séparatrice.

Si c'est le cas, le système optique forme une porte quantique à deux qubits équivalente à une porte conditionnelle CNOT.

D'autres portes logiques quantiques exploitent les propriétés non-linéaires d'une microcavité contenant un atome ou une boîte quantique. Nous pouvons citer les travaux de Turchette et al [154] qui se basent sur le déphasage des photons issus d'un atome fortement couplé à un résonateur, mais aussi Duan et al [37] dont l'approche s'appuie sur le contrôle de la polarisation du photon.

Pour réaliser ces propositions, il est indispensable de générer des photons indiscernables, donc émis dans le même mode. De plus, ces protocoles imposent de pouvoir envoyer deux photons avec certitude sur la porte à un instant donné. Plus précisément, l'efficacité de la source doit être supérieure à 99% pour assurer la cascadabilité de ces approches.

3.1.3 Obtention d'un photon unique

Pour obtenir des photons uniques nous avons besoin d'un système purement quantique à plusieurs niveaux énergétiques tel qu'un atome [6]. La figure 3.4 illustre, à titre d'exemple, comment déclencher une "cascade radiative" à partir d'un système atomique à trois niveaux. En absorbant un photon à l'énergie E_1, le système se retrouve dans l'état excité et ne peut plus absorber d'autres photons. Le système génère alors une cascade radiative, en se désexcitant, il émet un et un seul photon à l'énergie E_2 et un et un seul à l'énergie E_3.

Cette approche a par exemple été employée par A. Aspect et al [6] pour préparer des paires de photons enchevêtrés, pour la démonstration de la violation des inégalités de Bell. L'atome employé dans cette expérience était un atome de Ca. On peut bien entendu imaginer d'autres protocoles exploitant des systèmes à multi-niveaux plus complexes.

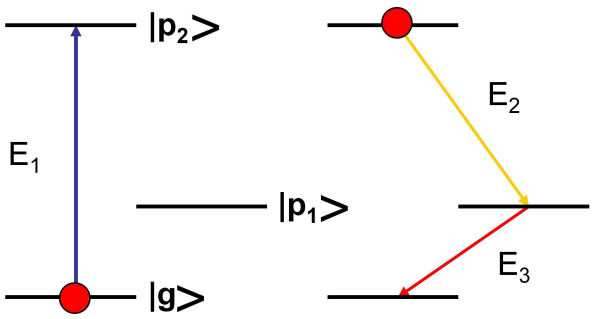


FIGURE 3.4 – Schéma d'une cascade radiative atomique proposée pour générer des photons uniques.

Pour les applications citées précédemment, nous cherchons à avoir une source de photons uniques solide. Plusieurs types de sources sont possibles. Les plus étudiées sont :

Molécules

Une molécule piégée dans un substrat peut être un émetteur de photons uniques. On notera parmi les premières expériences, celle de Basché et al [12] qui utilise une molécule de pentacène dans un cristal de p-terphenyl, cette molécule est assimilée à un système à trois niveaux. Les résultats ont prouvé que la probabilité est faible mais non nulle d'émettre deux photons simultanément. En effet, la molécule peut émettre un photon avant la fin de la préparation du système dans son état excité. Ce type de sources présente plusieurs inconvénients majeurs, elles ne peuvent s'utiliser qu'à très basse température (1.5 K) et sont très instables dans le temps

(quelques minutes). Sous excitation, la molécule subit une transformation chimique irréversible appelée photo-blanchiment.

L'insertion d'une molécule dans un cristal moléculaire permet de l'isoler des principaux agents dégradants comme l'oxygène. On a ainsi pu obtenir une source de photons uniques photostable fonctionnant à l'ambiante. Sa probabilité d'émettre un et un seul photon est limitée par l'existence, à l'énergie d'émission de la molécule, d'un signal de fond dû à la matrice environnante.

Centres colorés N-V

Certains défauts ponctuels du diamant sont optiquement actifs et sont connus sous le nom de "centre coloré" ; le plus étudié d'entre eux est composé par l'association d'un azote supplémentaire et d'une lacune dans un cristal de diamant. Ce défaut induit des états discrets dans la bande interdite du cristal. Il a été vérifié que ce système a une probabilité quasiment nulle d'émettre plus d'un photon à la fois [90], [27]. Ce système présente plusieurs avantages, il fonctionne à l'ambiante, est photostable et facilement isolable dans un nanocristal. Ce système subit un fort couplage aux phonons qui engendre une raie assez large, centrée à 700 nm et présente un temps de vie assez long du niveau excité ; c'est pourquoi à ce jour, l'utilisation de centres colorés pour les télécommunications sur fibre optique n'est pas réalisable. Certains groupes ont cependant démontré une distribution de clefs quantiques en espace libre, en exploitant l'émission d'un centre coloré [5].

Source de photons uniques semiconductrice

En vue d'une application pratique, et en particulier pour réaliser une source compacte à pompage électrique, le développement d'une source de photons uniques solide à base de semiconducteurs est un objectif séduisant.

Une des premières propositions [80] consiste à injecter électriquement et de manière contrôlée une seule paire électron-trou, à l'intérieur d'une hétérostructure semi-conductrice (comme un puits quantique dans une jonction p-n). La paire électron-trou se recombine alors à l'intérieur de cette microstructure pour émettre un et un seul photon. Le contrôle de l'injection repose sur le principe de blocage de Coulomb. Grâce à cet effet, il est impossible d'injecter plus d'une paire électron-trou. Cette proposition a en partie été démontrée expérimentalement [86]. Cependant, par l'utilisation du blocage de Coulomb, le système ne peut être utilisé qu'à très basse température ($\sim$50 mK). La présence d'électrodes métalliques nanométriques au voisinage immédiat du puits semble difficilement compatible avec une collection efficace des photons émis, ainsi qu'avec l'insertion dans une microcavité de bonne qualité optique.

La seconde approche consiste, comme dans les paragraphes précédents, à mettre en oeuvre un émetteur unique présentant des états électroniques discrets : une boîte quantique. Celle-ci peut être considérée comme un atome artificiel avec des états discrets, il est donc très tentant d'utiliser une boîte quantique comme un atome. Pour ce faire, des approches différentes sont employées selon qu'on utilise un nanocristal ou une boîte quantique épitaxiée.

Les nanocristaux ont l'avantage d'être très homogènes en taille, $\sim$5% de dispersion, leur distribution en longueur d'onde est donc assez faible. De par leurs petites tailles (quelques nm) leurs temps de vie radiatif est assez long, par exemple Michler et al [104] mesurent des temps de l'ordre de 30 ns à température ambiante pour des nanocristaux de CdSe de 4 nm de diamètre. Les nanocristaux présentent des états dégénérés, un état dit "brillant" qui peut émettre et un état "noir" qui ne peut pas interagir avec la lumière [14]. L'exciton noir est à plus basse énergie que l'exciton brillant. L'énergie du ΔE correspondant au dédoublement de l'exciton est d'autant plus

grande que la température est basse et le confinement important. Ainsi à basse température, la paire électron-trou de l'exciton noir ne pourra pas acquérir assez d'énergie pour peupler le niveau d'exciton brillant qui ne pourra pas se recombiner radiativement.

Les nanocristaux sont très sensibles à l'environnement, on peut ainsi observer des effets d'oxydation, de charge et de scintillement, ces derniers pouvant être expliqués par l'effet Auger. Le scintillement peut se définir comme une alternance de périodes pendant lesquelles l'objet absorbe mais n'émet pas puis, brutalement se remet à émettre. Ce phénomène ne permet pas d'avoir un émetteur fiable. De plus, les nanocristaux peuvent être l'objet de blanchiment irréversible. Michler et al [104], suivis de nombreux autres groupes, ont démontré le dégroupement de photons émis par un nanocristal pompé de façon continue (figure 3.5). Ce comportement est dû à l'effet Auger : si un nanocristal contient deux excitons (ou plus), la recombinaison des excitons excédentaires est très rapide et non-radiative. Ainsi, un nanocristal contenant deux excitons ne pourra pas émettre deux photons avec un délai arbitrairement court. Les nanocristaux peuvent donc émettre des photons uniques mais, de par les problèmes cités précédemment, ceux-ci ne semblent pas très exploitables pour les applications potentielles à de telles sources.

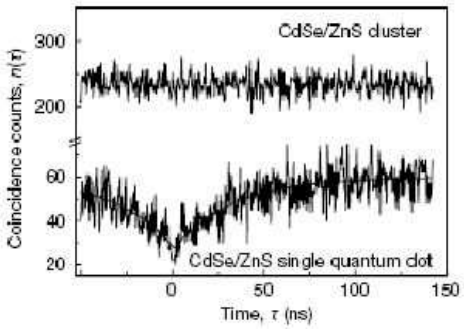


FIGURE 3.5 – Spectres d'auto-corrélation pour un ensemble et un nanocristal [104].

Une boîte quantique épitaxiée peut piéger simultanément plusieurs paires électron-trou et il est bien connu que, contrairement aux nanocristaux, les états multi-excitoniques des boîtes quantiques se recombinent radiativement. Il est donc impératif de mettre en œuvre un protocole adapté pour éviter de générer des impulsions contenant plusieurs photons. La forte interaction coulombienne entre porteurs piégés dans la boîte quantique offre une solution très simple [59], qui a été validée expérimentalement par plusieurs équipes [105], [112], [136], et dont le principe est illustré figure 3.6. Une boîte quantique isolée est excitée via un pompage impulsionnel non résonant, optique ou électrique ; plusieurs paires électron-trou photocréées dans la barrière, sont rapidement capturées par la boîte quantique (∼20 ps). On observe alors une recombinaison radiative séquentielle de ces paires ; chaque photon émis a une énergie spécifique X_n, qui dépend du nombre n de paires électron-trou présentes dans la boîte lorsqu'il est émis. Il suffit de réaliser un filtrage spectral de l'émission de la boîte quantique pour préparer des impulsions lumineuses contenant un nombre de photons bien défini. En ne sélectionnant que la raie X_1 de la boîte quantique, on prépare pour chaque cycle de pompage une impulsion contenant un photon, tandis qu'un filtrage des raies X_1 et X_2 permet de préparer des paires de photons fortement corrélés [112], [152]. Parce que nous employons ici un mode de pompage optique non résonant, ce protocole peut être aisément étendu au cas du pompage électrique [168].

Les boîtes quantiques ont donc l'intérêt de pouvoir être pompées optiquement et électriquement mais aussi la possibilité d'émettre aux longueurs d'ondes des télécommunications (1.3 μm et

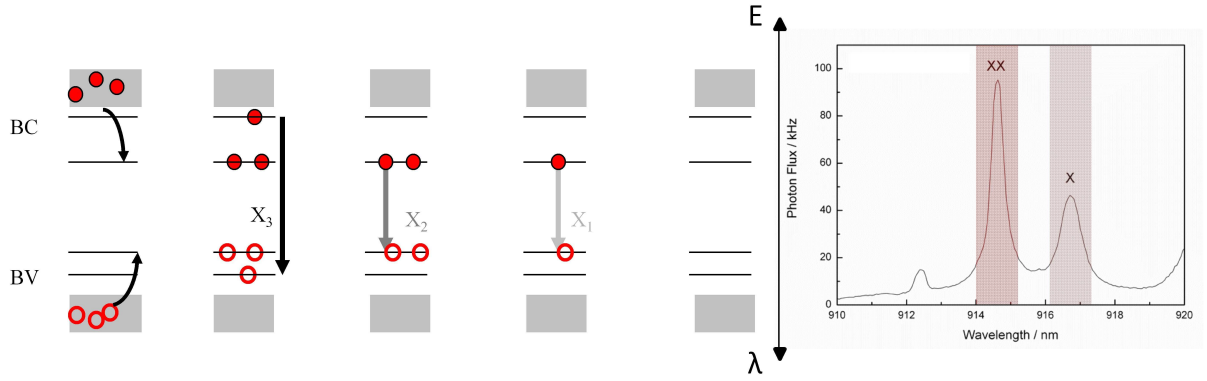


FIGURE 3.6 – Schéma d'une cascade radiative dans une boîte quantique et protocole employé pour générer un photon unique [59].

1.5 μm). De plus, leur stabilité à basse température permet d'espérer une grande efficacité $\eta \approx 1$. Cette utilisation est aussi leur principal inconvénient puisque contrairement aux autres émetteurs de photons uniques (nanocristaux, molécules, centres colorés), les boîtes quantiques doivent être employées à des températures cryogéniques. Une boîte quantique est fortement couplée à son environnement ce qui provoque une décohérence de son état excitonique, par exemple lorsqu'on élève la température. Cette décohérence se traduit par un élargissement de l'émission jusqu'à ne plus distinguer la séparation entre exciton (X) et biexciton (XX), il n'est plus possible de préparer un photon unique par filtrage spectral. Cet élargissement en fonction de la température a été étudié par Kammerer et al [84], [85], l'expliquant par un couplage aux phonons. De plus, dans leurs travaux Favero et al [44] observent une augmentation des largeurs de raies en fonction de la puissance d'excitation du fait de la génération de porteurs de charges dans la couche de mouillage et des fluctuations de l'environnement électrostatique de la boîte quantique qui en résultent. Pour le système InAs/GaAs, la valeur de $\Delta_{\text{X-XX}} \sim$1 à 4 meV limite la température de fonctionnement à environ 150 K. A contrario, des températures de fonctionnement de sources de photons uniques plus élevées, de l'ordre de 200 K, ont été rapportées pour des boîtes quantiques à base de GaN [83] ou de semiconducteurs II-VI grâce à la grande séparation X-XX dans ces systèmes [1], [26], [141], [153].

Nous verrons aussi que les boîtes quantiques peuvent facilement être intégrées en microcavité pour contrôler leur émission spontanée.

Les spectres d'auto-corrélation 3.7 nous montrent les résultats obtenus pour une boîte quantique sous une excitation pulsée (a) et continue (b). On voit clairement une forte atténuation du pic correspondant à τ=0, son intégrale normalisée, $g^2(0)$, est sans ambiguïté inférieure à un demi, ce qui prouve bien que les photons proviennent de façon très prédominante d'un seul émetteur. La valeur du pic central donne $g^2(0) \sim$ 0.08. Cette valeur très faible permet d'affirmer qu'une boîte quantique unique est une source à un photon. Notons que cette expérience est difficile à réaliser à faible puissance incidente car le taux de collection des photons devient alors trop faible. Au-delà de la puissance de saturation de la raie X, $g^2(0)$ a parfois tendance à croître à cause de l'augmentation d'un signal de fond provenant de la couche de mouillage ou d'autres boîtes quantiques dans l'échantillon.

Parmi les démonstrations de pompage électrique de boîtes quantiques épitaxiées, on peut citer les travaux de Yuan et al [168]. Leur approche repose sur une diode p-i-n contenant un plan

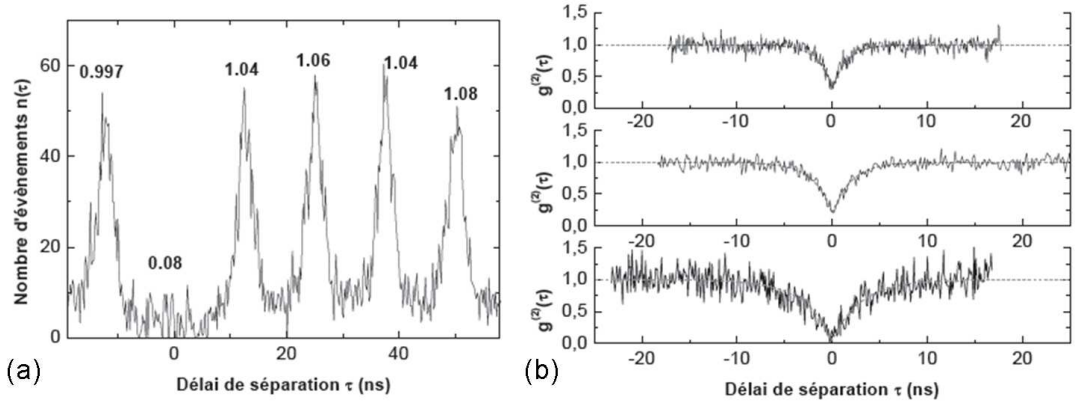


FIGURE 3.7 – Spectre d'auto-corrélation sous excitation pulsée à $0.7P_{sat}$ (a) et continue (b) pour $0.16P_{sat}$, $0.4P_{sat}$ et P_{sat} [110].

de boîtes InAs. Celle-ci montre la signature d'une émission de photons uniques avec un g^2 allant jusqu'à 11% (figure 3.8(a)). Les résultats plus récents de Ellis et al [41], se basant également sur une diode via une cavité à miroirs de Bragg contenant un plan de boîtes quantiques d'InAs, montrent une faible probabilité d'obtenir plus d'un photon, $g^2 = 0.17$ (figure 3.8(b)), avec une efficacité de collection de 14%.

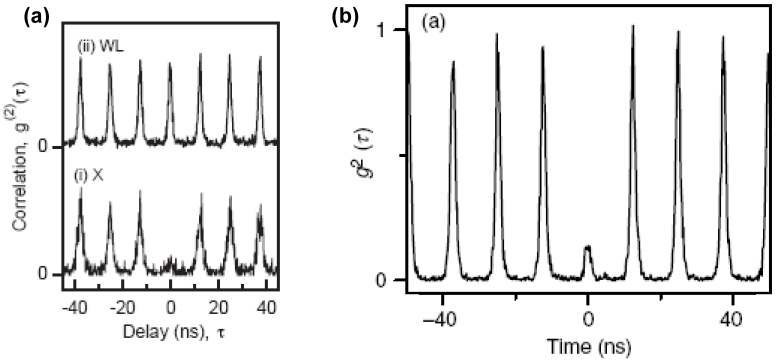


FIGURE 3.8 – Spectres d'auto-correlation sous impulsion électrique de boîtes quantiques uniques (a) [168] et (b) [41].

3.2 Vers une source de photons uniques efficace : contrôle de l'émission spontanée

Après cette discussion sur les différents émetteurs de photons uniques existants, on constate que le problème récurent est l'efficacité de collection de ces photons. En effet, le rayonnement de ces objets est omnidirectionnel, il est donc peu aisé de collecter tous les photons émis. C'est pourquoi dans cette partie, nous discuterons de différentes approches utilisées pour contrôler le diagramme de rayonnement de l'émetteur : l'approche géométrique puis l'approche microcavité.

3.2.1 Approche géométrique

Pour optimiser la collection des photons émis, une solution consiste en une approche géométrique via des lentilles solides. Plusieurs types de lentilles ont été étudiés [11], [170], citons les lentilles hémisphériques et les lentilles de Weierstrass. Dans ce cas, l'idée est de réduire le contraste d'indice entre le matériau et son environnement immédiat. La lentille permet de rediriger l'émission dans un cône d'ouverture plus faible. Les calculs d'efficacité de collection pour les deux systèmes (figure 3.9) montrent une nette supériorité pour les lentilles de Weierstrass au prix d'une faible tolérance sur la position de l'émetteur. On peut obtenir une efficacité de 30% pour une ouverture numérique de 0.28. Ces résultats obtenus via un émetteur dans une couche planaire pourraient très bien être intégrés à des sytèmes plus complexes du type mésas, piliers...

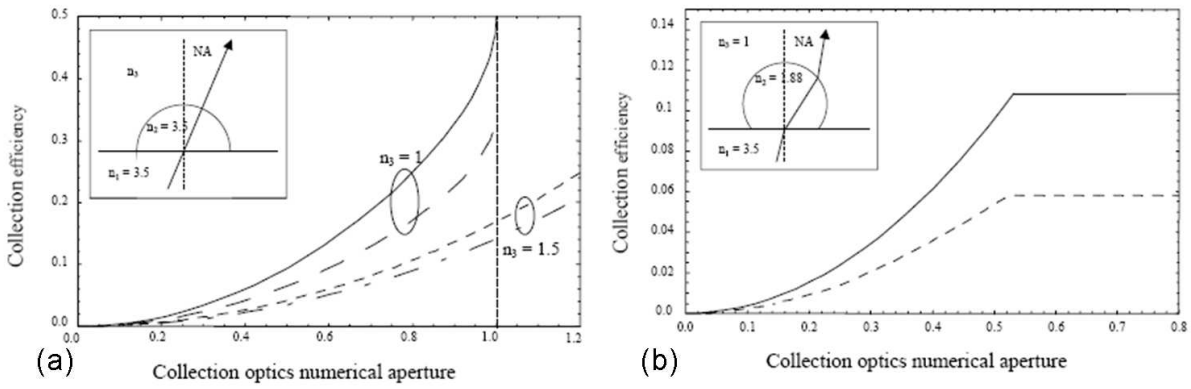


FIGURE 3.9 – Efficacité de collection calculée pour une lentille hémisphérique (a) pour $n_3 = 1$ et $n_3 = 1.5$ les courbes en pointillé correspondent au cas où toutes les réflexions des interfaces sont inclues, et une lentille de Weierstrass (b) la courbe en pointillé correspond à la simulation avec toutes les réflexions des interfaces [11] pour un émetteur centré sur l'axe otique.

Une partie des photons, ceux émis vers le bas de l'échantillon, sont perdus dans le substrat. L'ajout d'un miroir au pied du système donnerait à ces photons une chance suplémentaire d'être redirigés dans la lentille. Nous noterons qu'un miroir de Bragg n'est pas le plus adéquat ici de par sa limitation angulaire ; un miroir métallique lui est préférable.

Occasionnellement dans le cadre de ce travail, nous avons employé une approche du type "mésa sur or". Ce système s'obtient en réalisant une couche planaire de GaAs contenant un plan de boîtes quantiques (schéma 3.10(a)) sur laquelle on dépose une couche d'or (schéma 3.10(b)). L'échantillon est ensuite collé face avant sur un substrat de GaAs (schéma 3.10(c)) puis on retire le substrat de la face arrière (schéma 3.10(d)). Les motifs sont ensuite définis par lithographie électronique (schéma 3.10(e)) puis gravés en RIE (schéma 3.10(f)). La méthode utilisée est décrite plus en détail dans la section 3.3.2. Avec cet échantillon, nous avons pu obtenir une efficacité ϵ de l'ordre de 20 à 40% pour une ouverture numérique de 0.75. Ce résultat est donc supérieur à la structure mésa seul. Il faut toutefois noter que l'imprécision de cette estimation est due au fait que lors de l'obtention de ces valeurs, les mesures d'efficacité n'étaient pas encore totalement optimisées comme dans la section 3.4.4.

3.2.2 Contrôle de l'émission spontanée par une microcavité

Une autre approche consiste à mettre en œuvre une microcavité pour contrôler l'émission spontanée de l'émetteur de photons uniques.

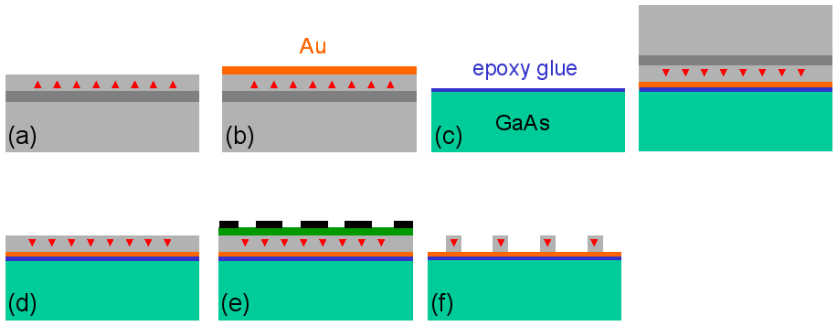


FIGURE 3.10 – Méthode de fabrication des mesas sur or (a) cavité planaire, (b) dépôt du miroir, (c) report, (d) retrait du substrat, (e) lithographie et (f) structure finale.

Plaçons un émetteur, soit ici une boîte quantique 0D, dans une microcavité en résonance avec l'un des modes résonants de celle-ci, en régime de couplage faible, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.3.3, une boîte quantique en résonance avec le mode peut subir un phénomène d'exaltation de son taux d'émission spontanée, l'effet Purcell. Celui-ci nous permet d'obtenir un grand facteur de couplage β au mode fondamental, les photons sont émis préférentiellement dans ce mode [61]. L'effet Purcell permet aussi le contrôle de la polarisation contrairement aux lentilles vues ci-dessus [111], [110], [149]. Enfin, l'effet Purcell permet un raccourcissement de la durée de vie de la boîte quantique qui permet de compenser partiellement l'impact du déphasage par les phonons. Dans ces conditions, il est possible de préparer des photons indiscernables [137], [158].

Le premier exemple de source de photons uniques à boîte quantique en microcavité a été présenté par Moreau et al en 2001 [111], [110]. En plaçant une boîte quantique d'InAs au coeur d'un micropilier, ils ont obtenu une efficacité de l'ordre de 40% ainsi que l'émission de photons uniques confirmée par un g^2=0.16. De plus, cette approche "micropilier" peut permettre de contrôler la polarisation en utilisant des piliers anisotropes. Dans un cylindre de section elliptique, l'indice effectif du mode guidé est différent suivant x et y, l'énergie de résonance pour le mode confiné sera différente, ainsi la boîte quantique ne verra plus qu'un mode et ne sera couplée qu'à celui-ci.

D'autres approches intéressantes sur le contrôle de la polarisation en microcavité existent, citons les travaux de Strauf et al [149]. Leur source de photons uniques, d'efficacité d'extraction de 38% montre le contrôle de la dégénérescence des modes de la cavité mais aussi du couplage de la boîte quantique unique aux polarisations H et V des modes de cavité. Ici, l'idée est de déplacer la raie excitonique avec la température et ainsi, changer le mode auquel elle est couplée. Sur la figure 3.12, à basse température, la boîte est couplée à la polarisation H tandis qu'en augmentant T, la boîte se couple à la polarisation V de la cavité en passant par un régime intermédiaire où elle n'est plus couplée à la cavité.

L'étude des sources de photons uniques en microcavité ne serait pas complète sans une recherche d'indiscernabilité. Des résultats dans des micropiliers montrent un grand degré d'indiscernabilité des photons de l'ordre de 0.7 [137] comme le montre la figure 3.13(a) et (b). Des résultats similaires ont été montrés dans des cristaux photoniques par Laurent et al [93] avec un degré d'indiscernabilité de l'ordre de 0.7 également (figure 3.13(c)). Ce résultat est obtenu en minimisant l'impact de la décohérence excitonique, en combinant deux approches complémentaires : le pompage de boîte quantique sur une transition entre états excités (afin d'éviter de générer des porteurs dans son environnement) et l'effet Purcell, pour réduire le temps de vie radiatif de l'exciton et ainsi l'impact relatif des phénomènes de décohérence. On notera que ce

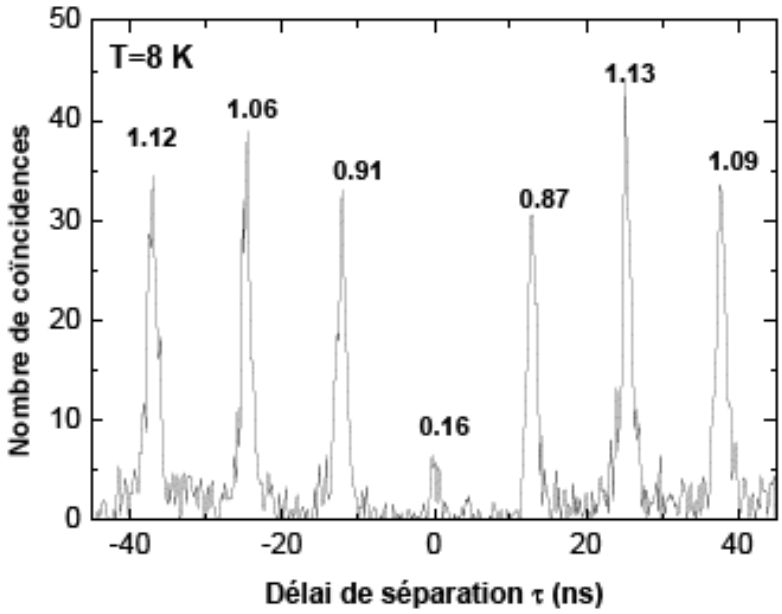


FIGURE 3.11 – Spectre de corrélation obtenu par Moreau et al [110]sur l'exciton d'une boîte quantique unique placée en résonance avec le mode d'un micropilier à 8K pour une puissance de $0.3P_{sat}$.

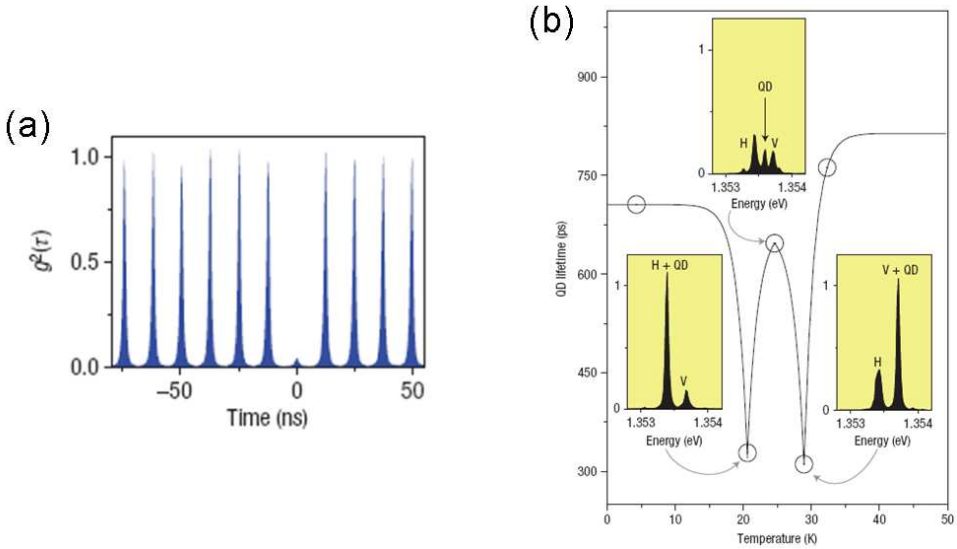


FIGURE 3.12 – (a) Mesure de corrélation, (b) Couplage de la boîte quantique aux modes H et V.

degré d'indiscernabilité n'est pas encore suffisant pour une application au calcul quantique photonique. Ce contrôle de la décohérence excitonique reste dans ce contexte un problème ouvert et un enjeu majeur.

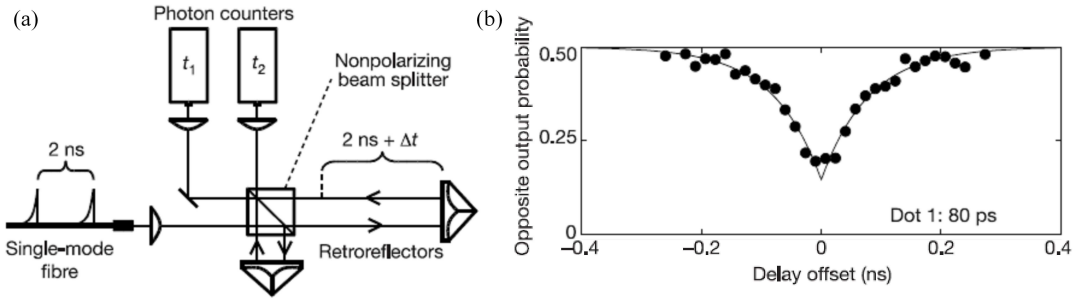


FIGURE 3.13 – (a) Principe de la mesure d'indiscernabilité. (b) Mesure d'indiscernabilité obtenue par Santori et al [137] dans un micropilier pour une boîte quantique sous excitation continue.

Cette approche bien que possédant un fort intérêt n'est pas sans quelques limites. La première provient de la nécessité d'avoir un fort facteur de qualité. Expérimentalement ce facteur est fortement influencé par les imperfections de fabrication comme la rugosité des flancs ce qui provoque des pertes optiques. De plus, l'extraction des photons n'est pas aisé à maîtriser de par le diagramme de rayonnement mal contrôlé en sortie.

Une alternative peut être vue avec les cristaux photoniques [42] qui peuvent présenter des facteurs de qualité très élevés. Cependant, reste le problème majeur de la collection. Plusieures possibilités pour contrôler le diagramme de rayonnement sont apparues, en modifiant directement la géométrie du cristal ou encore, en extrayant la lumière via un guide d'onde très étroit disposé directement sur le cristal et relié à une fibre optique [147]. Pour ces deux solutions, le contrôle du diagramme de rayonnement reste assez limité.

On peut se demander pourquoi, avec un facteur de Purcell "géant" de ∼20 et donc un β de l'ordre de 95%, on obtient une efficacité $\epsilon \sim 40\%$ au mieux. En effet, il faut voir que ϵ ne dépend pas que de β mais aussi du facteur de qualité de la cavité Q. En pratique, si la boîte émet la majeure partie de ses photons dans le mode résonant, l'expérimentateur ne collecte pas nécessairement la totalité de ces photons qui peuvent être diffusés hors de la cavité par des imperfections dues à des défauts de fabrication. Cet effet sera d'autant plus marqué que le facteur de qualité de la cavité sera élevé dans laquelle le photon devra faire un grand nombre d'aller-retours.

Le facteur de qualité peut être estimé [133] par un modèle simple :

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{int}} + \frac{1}{Q_{diff}} \tag{3.1}$$

où Q_{int} est le facteur de qualité intrinsèque, correspondant au facteur de qualité de la cavité planaire pour d>4λ/n [91] et Q_{diff} le terme de diffusion des photons par les défauts du micropilier. La figure 3.14 montre à titre indicatif le comportement de cette loi comparé aux valeurs exprimentales mesurées par Rivera et al.

Aux grands diamètres, le facteur de qualité tend vers celui de la cavité planaire Q_0, celui-ci étant constant, c'est donc le terme de diffusion qui dégrade le facteur de qualité du micropilier aux faibles diamètres. Cette dégradation est accompagnée d'une modification du diagramme de rayonnement. Lorsque le terme intrinsèque domine, le diagramme de rayonnement associé

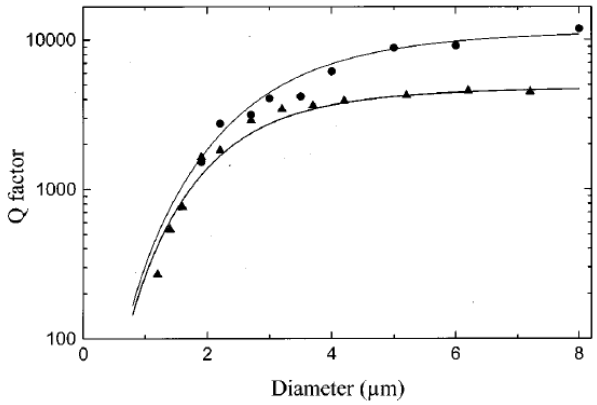


FIGURE 3.14 – Modélisation du facteur de qualité et valeurs expérimentales en fonction du diamètre [133].

au mode fondamental est piqué autour de l'axe [131], [32], la diffusion va alors redistribuer angulairement le rayonnement émis. En supposant que l'ouverture numérique utilisée est bien adaptée au diagramme de rayonnement du micropilier et collecte peu les photons diffusés, on peut estimer l'efficacité de la source de photons uniques par [11], [60] :

$$\epsilon = \beta \frac{Q}{Q_0} \tag{3.2}$$

Par cette dépendance en Q, on est face à une difficulté intrinsèque liée à l'approche cavité.

Dans tous ces systèmes, plusieurs problèmes expérimentaux persistent, c'est pourquoi nous proposons une nouvelle approche : l'intégration d'une boîte quantique dans un fil photonique.

3.3 Une nouvelle géométrie de confinement optique : les fils photoniques

Nous allons maintenant nous intéresser à une nouvelle approche : les fils photoniques à boîtes quantiques uniques. On s'affranchit des problèmes liés à la cavité en utilisant un guide d'onde unidimensionnel. Ces nanofils ont l'avantage de présenter un comportement monomode sans utiliser l'effet Purcell.

Des fils photoniques ont déjà été réalisés au sein de notre laboratoire dans les travaux de Y. Nowicki [118]. Des spectres de boîtes uniques bien isolées ont été observés durant cette étude préliminaire. Cette première génération de nanofils obtient une efficacité de l'ordre de 17%. Ce résultat relativement faible est dû principalement à deux raisons : la grande divergence de l'émission au sommet du fil, les photons ne pouvant être tous collectés par l'ouverture utilisée (0.4), et la possibilité qu'ont les photons de partir dans le substrat au pied du fil. Nous reviendrons par la suite sur les solutions apportées à ces problèmes après une brève explication du contrôle de l'émission spontanée dans les fils photoniques.

On va voir que l'on peut obtenir un très fort β pour l'émission d'un émetteur placé sur l'axe de ce fil. Au préalable, notons que l'intérêt des fils photoniques pour le contrôle de l'émission spontanée a été souligné pour la première fois par S.T. Ho et al, dans le contexte du développement de microlasers à fort β [169].

3.3.1 Contrôle de l'émission spontanée

L'idée est de considérer un guide d'onde monomode qui procure un fort confinement latéral du mode guidé. Dans la suite, nous verrons que l'on peut obtenir un très fort β pour l'émetteur placé sur l'axe du fil.

Dans cette partie, nous allons considérer une boîte quantique unique d'InAs, émettant à 1.3 eV, placée dans un cylindre de GaAs servant de guide d'onde. Rappelons que le dipôle associé à la transition excitonique fondamentale de la boîte quantique est dans le plan avec deux composantes à peu près égales selon les deux directions x et y du plan [33].

Description du mode guidé fondamental dans un fil photonique

Pour cela, nous allons nous appuyer sur les cartes de champ du mode guidé HE_{11} pour chacune de ses composantes. La figure 3.15 montre la distribution spatiale des composantes du champ électrique associée au mode guidé HE_{11} polarisé suivant x. Ces cartes de champ sont obtenues par un code de B. Gayral se basant sur la résolution des équations de Maxwell dans un guide d'onde cylindrique infini.

On peut voir que la composante du champ qui domine est la composante E_x. On observe aussi des discontinuités suivant x et y du champ E_x à la périphérie du guide. De plus, on remarque que pour E_y pour la valeur zéro en x ou y, le champ est nul par symétrie, de même en y pour E_z.

Les figures 3.16 montrent l'évolution de la distribution spatiale de la composante suivant x du champ pour quelques diamètres allant de 120 à 600 nm. Pour cela, nous avons normalisé E_x par $\iint n^2|E|^2dr^2$ afin de conserver constante l'énergie électromagnétique. On peut voir trois comportements distincts : pour les petits diamètres, le champ est à l'extérieur du fil ; pour les grands diamètres, le champ est déconfiné dans le guide ; tandis que pour les diamètres intermédiaires, le champ est très confiné dans le fil. C'est cette gamme de diamètres qui va nous intéresser par la suite pour obtenir un couplage optimal de la boîte quantique à ce mode guidé.

Contrôle de l'émission spontanée de la boîte quantique

On considère un dipôle horizontal en général isotrope dans le plan et modélisable par deux dipôles x et y de moments dipolaires égaux.

La boîte quantique est couplée aux deux modes dégénérés HE_{11} (polarisés suivant x et y) et à un continum de modes non guidés souvent appelés aussi modes de fuites car l'émission d'une boîte quantique dans ces modes s'échappe du fil photonique. Le calcul du taux d'émission spontanée dans les modes de fuites est délicat. En général, on l'obtient en calculant d'une part, le taux d'émission spontanée global puis le taux d'émission spontanée dans le mode guidé HE_{11}, facilement accessible par le calcul. Dans le régime monomode, la différence des deux donne accès à l'émission spontanée dans les modes de fuites. Cette procédure a été suivie par nos collaborateurs du groupe de P. Lalanne à l'Institut d'Optique.

Diamètre optimum du fil : Nous allons ici nous intéresser au diamètre nécessaire pour obtenir un bon couplage de l'émision spontanée au mode fondamental. Nous considérerons ici que la boîte quantique d'InAs est positionnée au centre du fil.

Nous nous appuyons sur les calculs réalisés dans la partie 1.3.2 en accord avec ceux de Friedler et al [49] décrivant la variation du couplage du mode HE_{11} suivant le diamètre du fil (figure 3.17). Aux faibles diamètres, le couplage tend vers zéro, le champ est à l'extérieur du fil. Le couplage optimum est atteint vers D $\sim$ 0.22 λ, le champ est très confiné à l'intérieur du fil. Le taux d'émission spontanée dans le mode est alors très semblable au taux d'émission spontanée dans

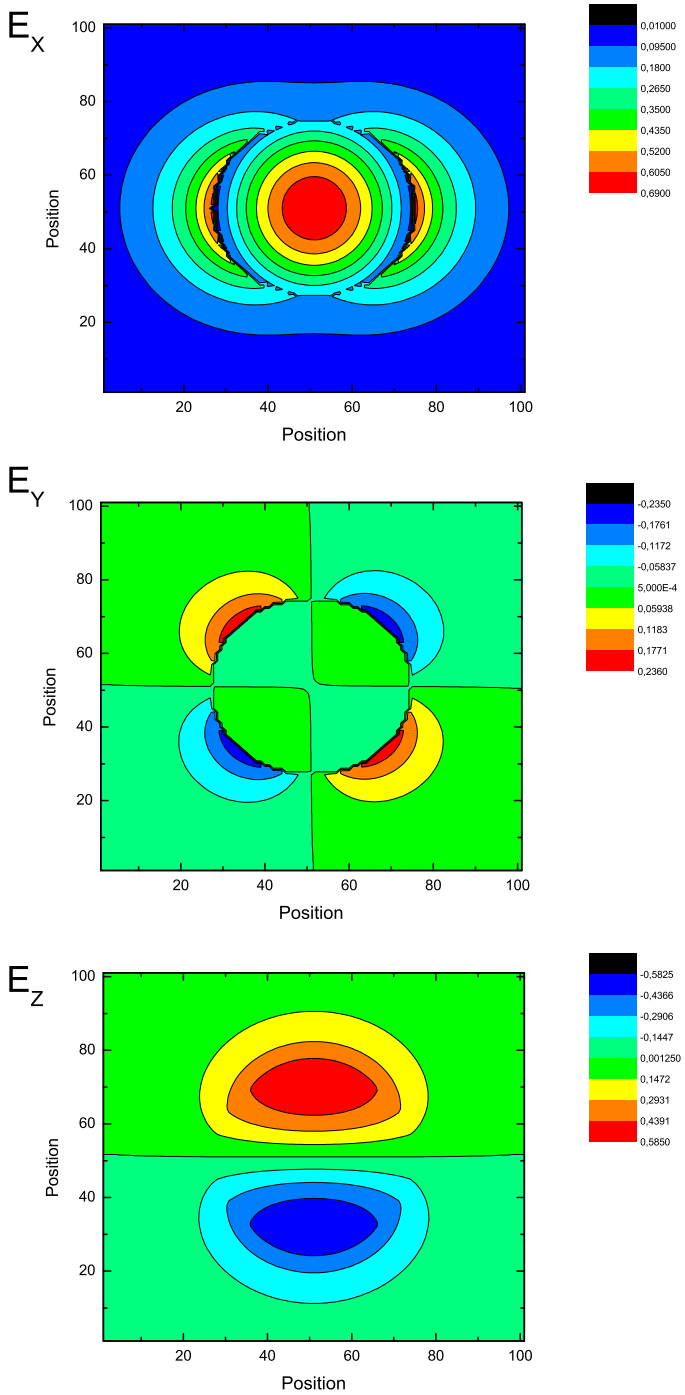


FIGURE 3.15 – Cartes de champ des composantes E_x, E_y et E_z pour le mode fondamental polarisé suivant x pour un pilier de GaAs de 240nm de diamètre.

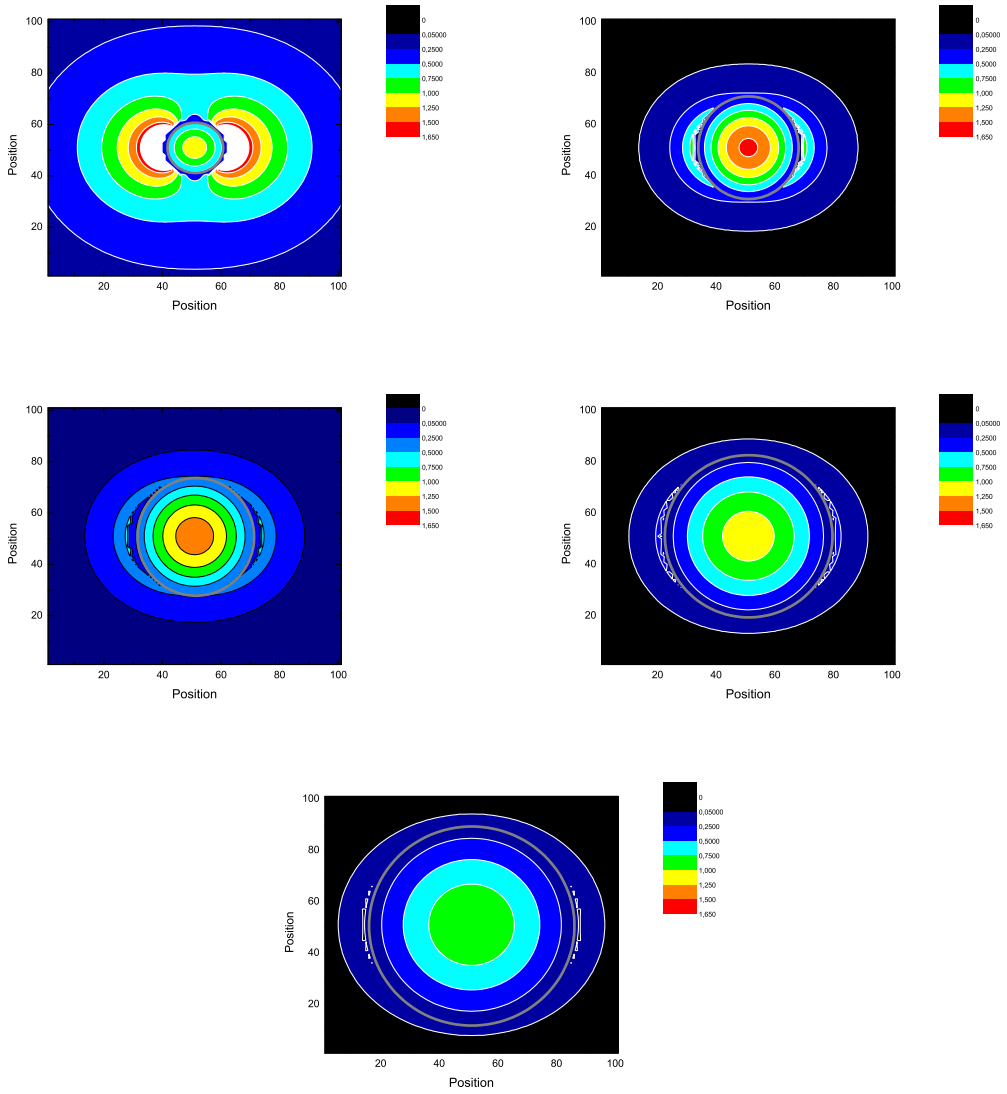


FIGURE 3.16 – Cartes de champ des composantes E_x normalisées pour le mode fondamental polarisé suivant x pour un pilier de GaAs (représenté par l'anneau gris) de 180nm, 300nm, 360nm, 480nm et 600nm de diamètre.

une matrice de GaAs. Aux grands diamètres, on a un déconfinement du mode dans le fil, on observe donc une diminution du couplage.

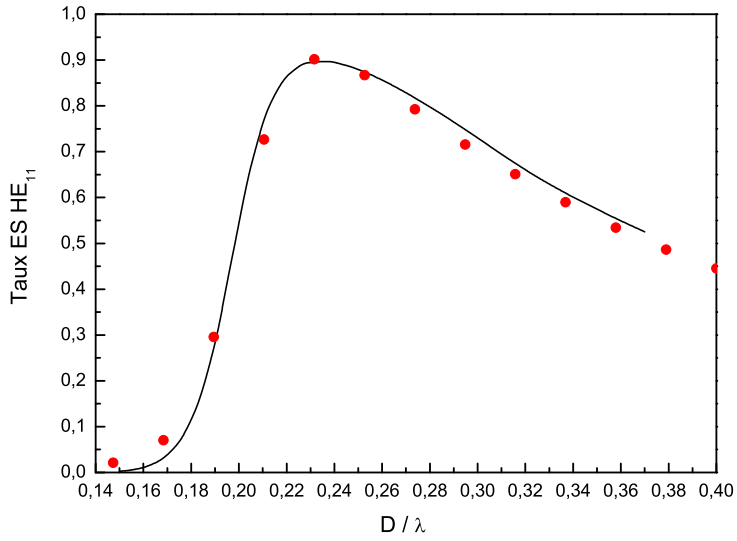


FIGURE 3.17 – Taux d'émission spontanée normalisé dans le mode fondamental en fonction du rapport D/λ, simulation de Friedler et al (courbe) et calcul de la section 1.3.2 (points).

Regardons maintenant la courbe décrivant le taux d'émission dans les modes guidés d'ordre élevé et les fuites (figure 3.18 courbes rouges et bleues). On note que pour un rapport $D/\lambda > 0.3$, on a un renforcement du taux d'émission spontanée global lié au guidage par le fil d'un nouveau mode (non nul sur l'axe). Dans le régime monomode, on voit que le taux de fuites est très faible, $\gamma \sim 0.05$. Pour cette gamme de diamètres ($D/\lambda < 0.3$), on a une inhibition de l'émission spontanée ; du fait des conditions aux limites au bord du fil que doivent satisfaire les équations de Maxwell, l'amplitude du champ est très faible dans le fil pour ces modes.

En terme de couplage (figure 3.18 courbe verte), on a un fort couplage au mode guidé et une inhibition des autres modes. De ce fait, on obtient ici un couplage très préférentiel de l'émission spontanée dans le mode guidé. Le facteur de couplage s'écrit :

$$\beta = \frac{1/\tau_{mode}}{1/\tau_{fil}} = \frac{1/\tau_{mode}}{1/\tau_{mode} + 1/\tau_{fuites}} \tag{3.3}$$

On voit que la fraction d'émission spontanée émise dans le mode fondamental HE_{11} atteint 95%. De plus ce résultat est obtenu sur une large plage de diamètre normalisé $D/\lambda \in [0.2,0.3]$. On peut garder une forte valeur de couplage en modifiant le rapport D/λ. Ce résultat procure à notre approche une grande tolérance sur le diamètre ou sur la longueur d'onde.

Le fait de pouvoir obtenir une forte valeur de couplage est un point intéressant pour la réalisation de microlasers [169] et bien évidemment de sources de photons uniques à base de fils photoniques.

Expérimentalement si $\lambda \sim 1$ μm, les tailles mises en jeu sont de l'ordre de 200 à 300 nm. Cette gamme de diamètres est peu aisée à mettre en œuvre et pose des difficultés importantes sur le

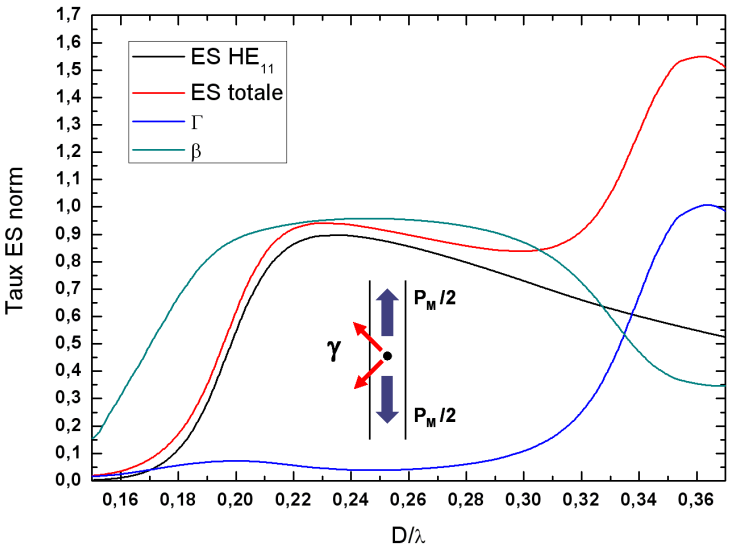


FIGURE 3.18 – Simulation numérique du taux d'émission spontanée pour différents rapports D/λ (calcul Friedler et al).

plan de la fabrication.

Position de l'émetteur dans le fil : De par la réalisation de nos fils, la position de la boîte quantique peut varier, elle n'est pas forcément au centre de celui-ci. C'est pourquoi, nous nous sommes intéressés à l'importance de son positionnnement.

Nous nous intéressons maintenant à un déplacement de l'émetteur dans le fil. N'importe quel déplacement de la boîte quantique revient à une translation suivant x en faisant une rotation des axes. En raisonnant comme tel, nous ne considérons par la suite qu'un déplacement suivant x (schéma 3.19). La boîte quantique est déplacée sur l'axe des x, le dipôle d_x est couplé à la composante E_x de HE_{11}^x et le dipôle d_y est couplé à la composante E_y de HE_{11}^y.

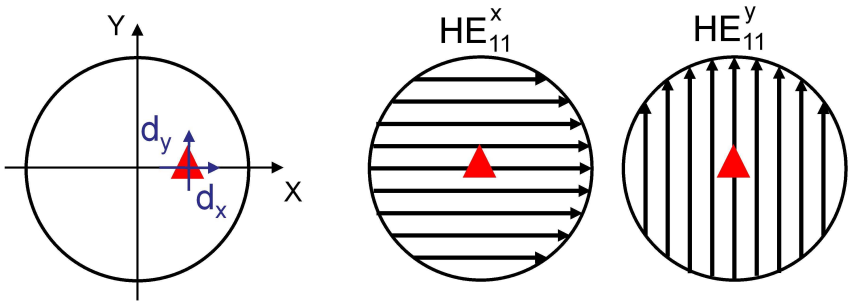


FIGURE 3.19 – Représentation schématique de la position de la boîte quantique et des composantes de son dipôle et des modes HE_{11}^x et HE_{11}^y.

La figure 3.20 nous montre le calcul du taux d'émission spontanée dans les modes HE_{11}^{x} et HE_{11}^{y} respectivement polarisés suivant x et y en fonction de la position de la boîte quantique dans le fil exprimé comme tel :

$$\frac{1}{\tau_x} = \frac{1}{\tau_x\left(\Delta_{\text{sur l'axe}}\right)} \frac{E_x^2\left(r\right)}{E_x^2\left(r=0\right)} \tag{3.4}$$

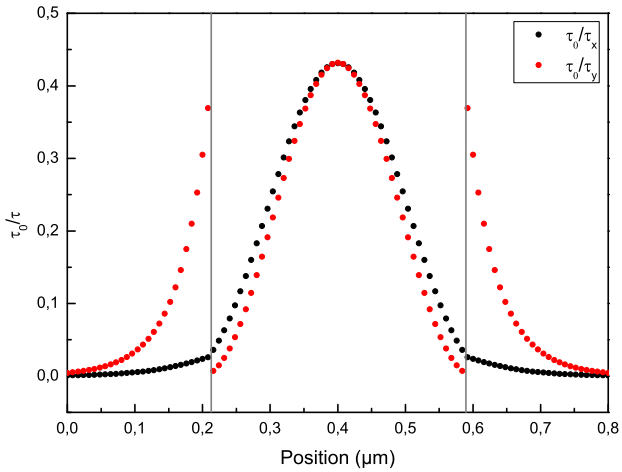


FIGURE 3.20 – Evolution du taux d'émission spontanée normalisé dans les modes HE_{11}^{x} et HE_{11}^{y} en fonction de la position de l'émetteur dans un fil photonique de 240nm de diamètre (les traits en gris délimitent les bords du fil) ou à proximité de celui-ci.

Nous avons ensuite calculé le taux d'émission spontanée total en considérant l'approximation suivante : le terme de fuites τ_{fuites} reste constant quelque soit la position dans le fil. L'expression suivante nous donne alors la figure 3.21 :

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{fuites}} + \frac{1}{\tau_x} + \frac{1}{\tau_y} \tag{3.5}$$

Comme attendu, le taux d'émission spontanée est élevé au centre du pilier ~ 0.95 et décroit sur les bords jusqu'à la valeur de ~ 0.1.

Nous pouvons maintenant calculer le couplage de l'émetteur au mode considéré. Soit β :

$$\beta = \frac{\frac{1}{\tau_x} + \frac{1}{\tau_y}}{\frac{1}{\tau}} \tag{3.6}$$

La figure 3.22 nous montre que la position de l'émetteur joue un rôle moins critique que pour le taux d'émission spontanée. En effet, nous pouvons voir un plateau à 90% sur une bonne partie du fil. Positionner l'émetteur exactement au centre n'est pas une condition nécessaire pour avoir un bon couplage. Ceci est une conséquence de la forte inhibition de l'émission spontanée dans les modes de fuites.

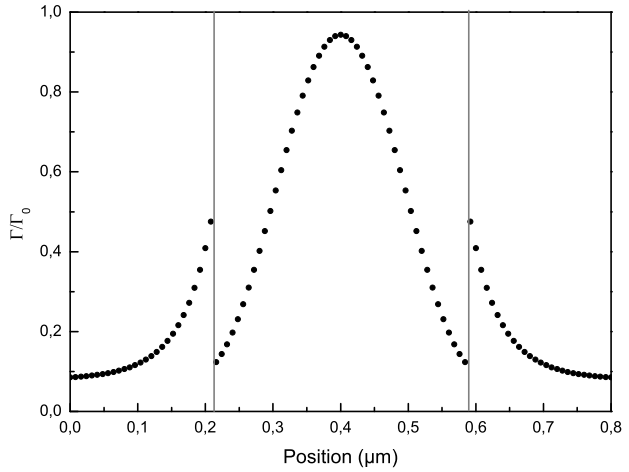


FIGURE 3.21 – Evolution du taux d'émission spontanée total en fonction de la position de l'émetteur dans un fil photonique de 240nm de diamètre (les traits en gris délimitent les bords du fil) ou à proximité de celui-ci.

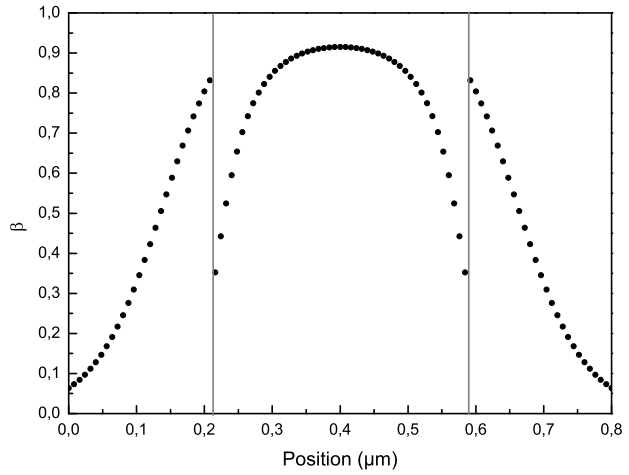


FIGURE 3.22 – Evolution du facteur de couplage β en fonction de la position de l'émetteur dans un fil photonique de 240 nm de diamètre (les traits en gris délimitent les bords du fil) ou à proximité de celui-ci.

La brisure de symétrie résultant d'un positionnement décalé de la boîte quantique par rapport à l'axe doit *a priori* induire une polarisation linéaire préférentielle de son émission. Pour compléter cette étude, nous nous sommes donc intéressés à la polarisation linéaire P de l'émission en fonction de la position de la boîte quantique.

La polarisation est estimée pour deux cas (figure 3.23) :

– le dispositif optique ne collecte que le rayonnement issu des modes guidés HE_{11}^{x} et HE_{11}^{y} :

$$P = \frac{\frac{1}{\tau_x} - \frac{1}{\tau_y}}{\frac{1}{\tau_x} + \frac{1}{\tau_y}} \tag{3.7}$$

– le système collecte toute l'émission dans le mode guidé et les modes de fuites, supposés non polarisés :

$$P_{corr} = \frac{\frac{1}{\tau_x} - \frac{1}{\tau_y}}{\frac{1}{\tau_x} + \frac{1}{\tau_y} + \frac{1}{\tau_{fuites}}} \tag{3.8}$$

La figure 3.23 montre l'évolution de la polarisation pour les deux cas cités. Celle-ci dépend fortement des hypothèses considérées. On observe un taux de polarisation de 80% sur les bords du fil photonique si on ne prend pas en compte les modes de fuites contre seulement 10% avec les modes de fuites.

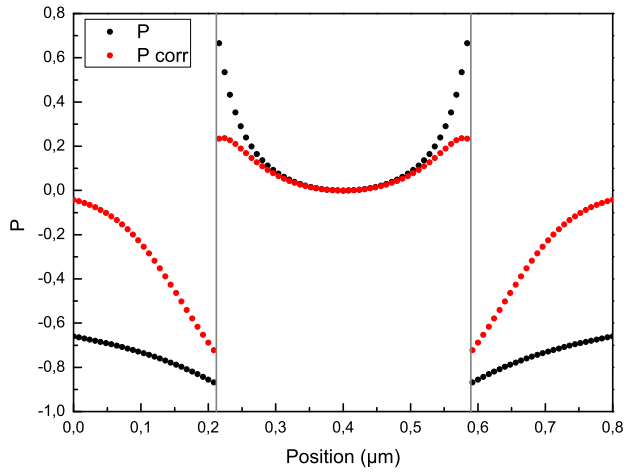


FIGURE 3.23 – Evolution de la polarisation en fonction de la position de la boîte quantique dans les deux cas limites décrits par 3.7 et 3.8 dans un fil photonique de 240nm de diamètre (les traits en gris délimitent les bords du fil) ou à proximité de celui-ci.

Si on synthétise tout sur un même graphique 3.24, nous pouvons voir que la variation de position de l'émetteur dans le fil ne modifie pas dramatiquement les valeurs de couplage ni la polarisation de l'émission. *A contrario*, le taux d'émission spontanée est très sensible à la position

de l'émetteur. Cette étude montre en particulier qu'une forte inhibition de l'émission spontanée est attendue pour une boîte quantique placée au bord du pilier.

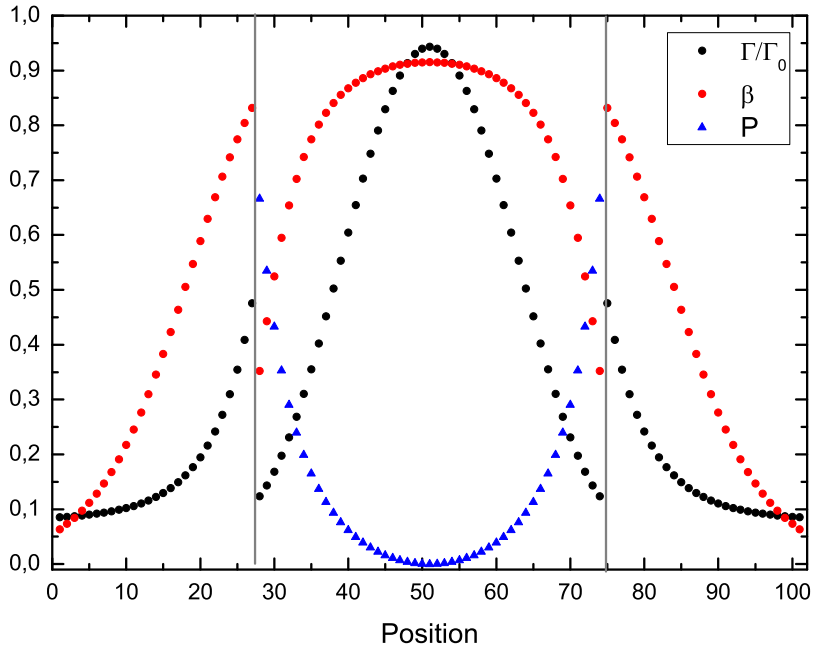


FIGURE 3.24 – Evolution des différentes variables calculées précédemment.

Contrôle du diagramme de rayonnement du fil photonique

La difficulté spécifique à cette géométrie se situe aux deux extrémités du fil. Il faut être capable de rediriger l'émission vers le haut du fil pour la collection des photons. Pour cela, il paraît naturel d'utiliser un miroir au pied du fil. Plusieurs possibilités ont été envisagées : utiliser un miroir de Bragg ou un miroir métallique. Dans un troisième temps, nous verrons comment améliorer la collection au sommet du fil en réduisant la divergence par la présence d'un adaptateur de mode ou "taper".

Miroir de Bragg : L'échantillon se présenterait sous cette forme : un miroir de Bragg sur lequel on fait croître du GaAs et un plan de boîtes quantiques. Ensuite, nous avons envisagé soit d'insérer le miroir dans le fil, soit de le laisser sous forme planaire.

Chen et al [31] ont montré théoriquement la possibilité d'obtenir une réflectivité $>90\%$ pour un miroir de Bragg intégré dans un fil photonique. Cependant, les calculs de Lecamp et al (figure 3.25) ont montré l'impossibilité d'obtenir une bonne réflexion pour des paramètres réalistes. Cela est provoqué par les mauvaises adaptations modales aux interfaces, dues à la différence d'indices effectifs entre les matériaux. En se limitant à une réflexion de l'ordre de 90%, on a besoin d'au moins une cinquantaine de paires de Bragg, ce qui n'est pas réalisable expérimentalement.

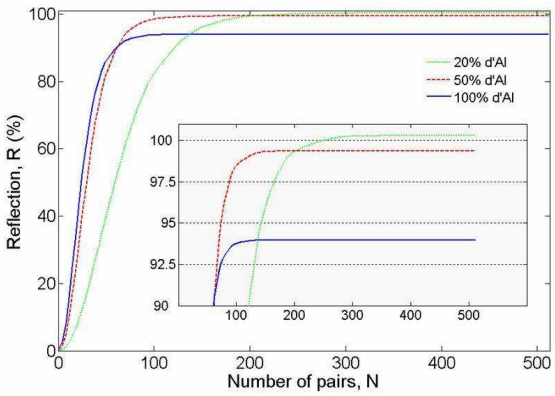


FIGURE 3.25 – Evolution de la réfléctivité en fonction du nombre de paires pour différentes concentrations en Al des couches d'AlGaAs (calcul de L. Lecamp et al communication privée).

De plus, d'après les calculs de Friedler et al [48], [49], la réflexion d'un tel miroir varie dramatiquement avec le diamètre du fil dans la gamme qui nous intéresse. Celle-ci est quasiment nulle pour un diamètre de $D > 0.25\lambda$.

Dans le cas d'un miroir de Bragg planaire, on est limité par son acceptance angulaire d'environ 20°. Le mode est très confiné ce qui crée une grande divergence au pied du fil. On comprend bien qu'une grande partie de l'émission part en dehors du cône d'acceptance et est donc perdue (figure 3.26). La répartition angulaire de l'émission des photons ne peut être entièrement contrôlée par le miroir de Bragg. Une amélioration possible est de réaliser un fil de forme conique afin de déconfiner le mode mais des problèmes de réalisation restent présents puisqu'il faudrait un diamètre de l'ordre de 800 nm au pied pour 220 nm au sommet.

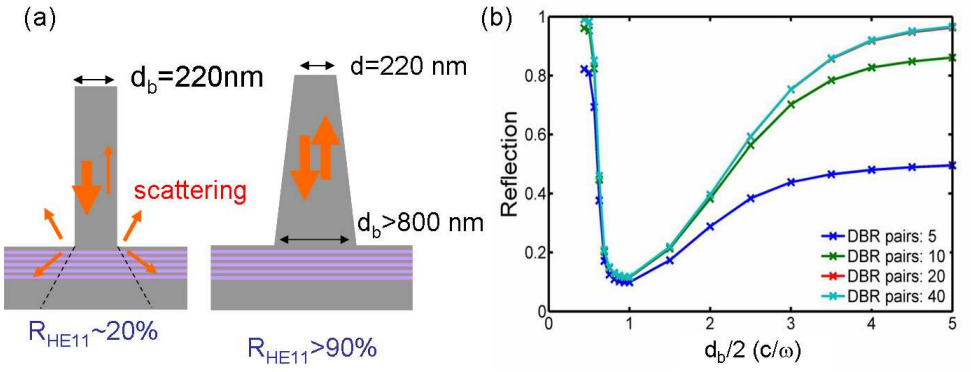


FIGURE 3.26 – (a) Schéma de la réflexion d'un miroir de Bragg planaire, (b) évolution de la réfléctivité en fonction du cône pour plusieurs nombres de paires (calcul de N. Gregersen et al [64]).

Miroir métallique : Nous nous sommes donc intéressés au cas du miroir métallique pour garder le côté large bande de notre système.

Les calculs de Friedler et al [48] montrent une bonne réflectivité aux grands et petits diamètres (figure 3.27 courbe bleu) ; le mode est, dans ces cas, assimilable à une onde plane. Pour un

diamètre critique λ/n, ce n'est plus le cas, c'est pourquoi dans la gamme de diamètres qui nous intéresse $D/\lambda \sim 0.22$ (paragraphe 3.3.1), on voit que la réflectivité s'effondre dramatiquement.

La réflectivité d'un miroir métallique, dans notre cas en or, est limitée par trois phénomènes :

- l'excitation plasmonique présente à l'interface métal-semiconducteur
- l'absorption de 15% de l'émission par le métal
- la diffraction au pied du fil à l'interface métal-semiconducteur

L'ajout d'un diélectrique entre le pied du fil et le miroir métallique permet de palier à ces problèmes, pour une épaisseur optimum de l'ordre de 11 nm de SiO_2 [48] on retrouve un cœfficient de réflexion modale théorique remarquablement élevé (R> 0.91) sur toute la plage de diamètres (figure 3.27).

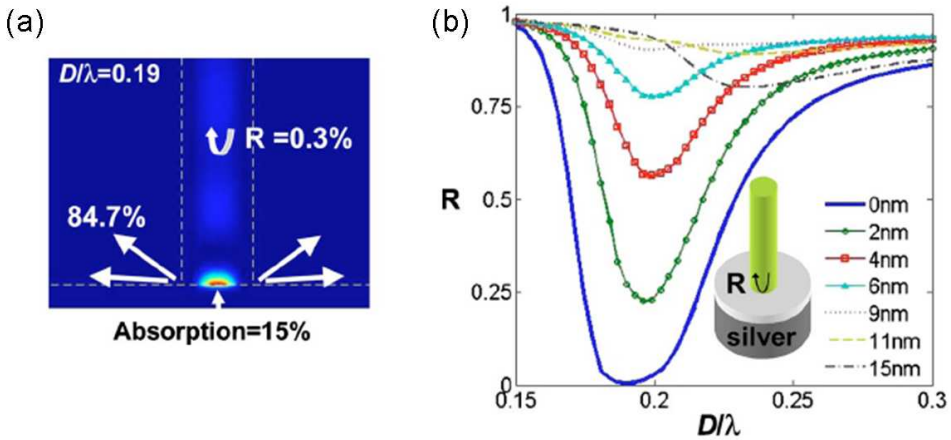


FIGURE 3.27 – Représentation des canaux de pertes du miroir métallique (a), évolution de la réflectivité modale en fonction de D/λ pour plusieurs épaisseurs de diélectrique (b)

Position de l'émetteur par rapport au miroir : Pour finaliser l'étude du miroir, nous devons maintenant nous intéresser à la position de l'émetteur dans le fil par rapport au miroir.

Prenons le cas d'un miroir idéal, dans ce cas, nous sommes en présence d'un champ E_x et d'une onde stationnaire comme sur la figure 3.28(a). A l'interface métal-semiconducteur, le déphasage est alors de π, le premier ventre se situe donc à une distance $\lambda/2n_{eff}$. En se plaçant à cette distance, le système se retrouve peu sensible aux fluctuations de longueurs d'ondes ou de diamètres et le couplage reste proche de l'optimum.

Malheureusement notre miroir n'est pas idéal. Nous devons prendre en compte le saut de phase à la réflexion sur le miroir d'or ainsi que le diélectrique. Dans notre cas, nous observons un saut de phase à la réflexion à l'interface miroir-semiconducteur de ϕ_m. Nous devons donc corriger la position de notre plan de boîtes quantiques de $(\pi - \phi_m)/\pi$. Ce calcul nous situe l'émetteur à 80 nm du miroir (figure 3.28(b)).

Taper de sortie : Intéressons nous maintenant à la seconde extrémité du fil et donc à son diagramme d'émission en sortie.

Dans nos fils, le champ est très confiné, l'émission vers l'air à l'extrémité d'un fil cylindrique serait donc très divergente comme l'ont montré en particulier Maslov et al [101], [100]. En conséquence, on ne peut pas collecter toute l'émission avec un objectif d'ouverture standard. Notre équipe a proposé avec N. Gregersen (DTU Fotonik) de structurer l'extrémité du fil en forme de

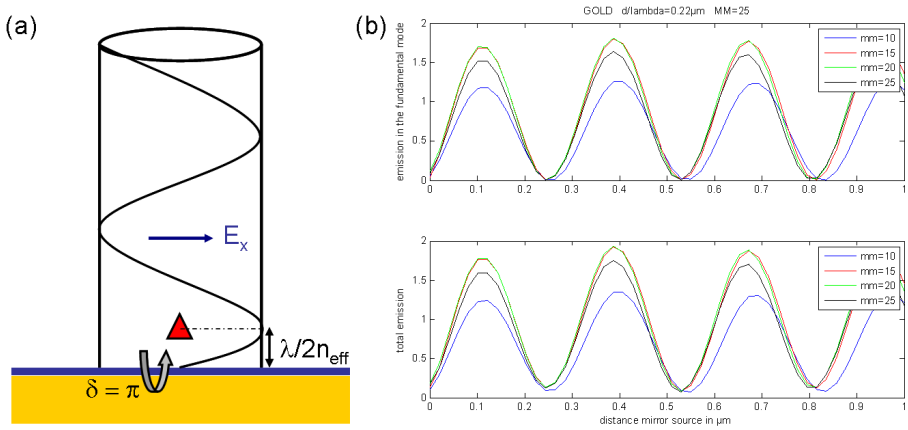


FIGURE 3.28 – (a) Schéma de la position de l'émetteur dans le cas d'un miroir idéal, (b) calcul vectoriel de l'émission dans le mode fondamental et totale en fonction de la distance entre le miroir et la boîte quantique pour différentes épaisseurs de diélectrique (mm) (Lalanne et al).

pointe pour réaliser une adaptation de mode. La présence d'un tel "taper" permet de déconfiner le champ et de rendre l'émission plus directionnelle en sortie. On peut ainsi augmenter notre efficacité de collection [49], [64].

On a vu que pour un diamètre inférieur à 0.15 μm, le champ est presque totalement déconfiné à l'extérieur du fil. L'extrémité du fil n'a donc pas besoin d'être nécessairement en pointe jusqu'au bout (figure 3.29).

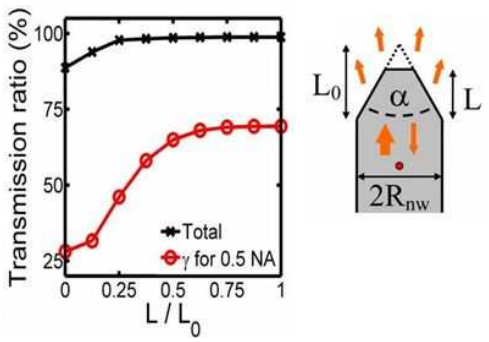


FIGURE 3.29 – Evolution de la transmission de la pointe tronquée et de la pointe complète en fonction du rapport des longueurs [64].

La figure 3.30 montre que l'absence de cône jusqu'au sommet a une très faible influence sur le diagramme d'émission. En effet, le profil du champ pour le fil tronqué (figure 3.30(b)) est quasiment identique au cas idéal (figure 3.30(a)). Pour comparaison, la figure 3.30(c) montre le champ dans le cas d'un fil totalement cylindrique.

Comportement global du système :

Le graphique 3.31 donne le comportement de l'efficacité d'extraction pour deux ouvertures numériques θ=45°(NA 0.7) et θ = 60°(NA 0.87). Les courbes en traits pleins correspondent aux

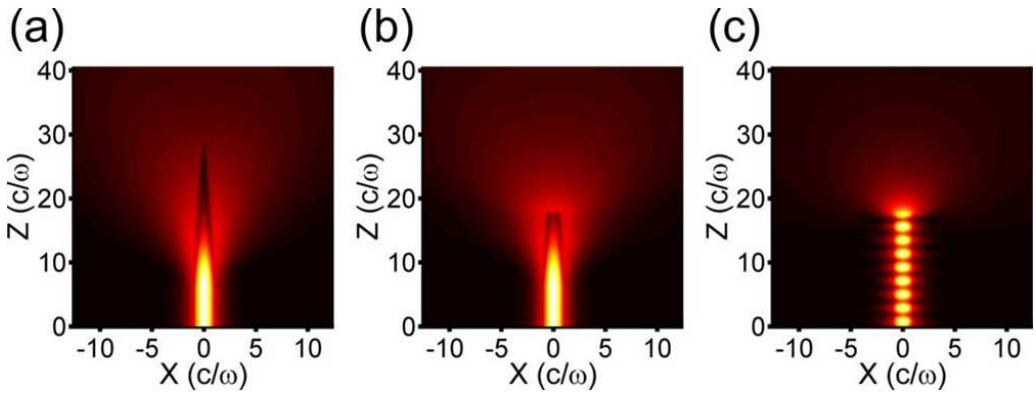


FIGURE 3.30 – (a) Profil du champ E_ϕ pour un cône, (b) un cône tronqué avec L/L_0=0.5 et α=5°et (c) pour un nanofil sans cône de sortie (N. Gregersen [64]).

calculs par tronçons des différents éléments alors que les courbes discontinues correspondent aux calculs vectoriels globaux.

Les courbes noire et rouge de la figure 3.31 montrent donc l'ajustement par un simple modèle Fabry-Perot [49] et nous donnent l'efficacité pour une source de photons uniques avec l'expression suivante :

$$\epsilon(\theta) = \frac{1}{2}\beta\frac{(1+|r_m|)^2}{1+\beta|r_m|}T_\alpha(sin\theta) \tag{3.9}$$

où $T_\alpha(sin\theta)$ désigne la transmission du taper dans l'espace libre avec un angle d'ouverture 2θ et $|r_m|$ la réflexion modale.

Les courbes discontinues rouge et noire montrent le calcul vectoriel global par méthode a-FMM (aperiodic-Fourier Modal Method). Le bon accord entre les deux calculs, réalisés par P. Lalanne et al (Institut d'Optique), montre qu'on peut s'appuyer sur le modèle Farby-Perot et la formule 3.9 pour optimiser la structure.

Pour un angle de 5° et une ouverture numérique de 0.8, le calcul donne une efficacité de collection supérieure à 90% sur une plage de 70 nm pour un fil décrit sur la figure 3.31. Cette géométrie de fil en pointe avec miroir d'or est donc théoriquement très efficace sur une large bande.

3.3.2 Méthode de fabrication

Les échantillons ont été réalisés par MBE puis le miroir est placé par une méthode de report et de gravure, développée par J. Claudon au sein du laboratoire.

Sur la couche tampon, on réalise une couche de $Al_{0.8}Ga_{0.2}As$ servant de couche dite "sacrificielle" permettant une gravure chimique sélective de par la différence de composition des matériaux. Au dessus de celle-ci on fait croître une couche épaisse de GaAs de l'ordre d'une dizaine de microns à une vitesse proche de 1MC.s^{-1}. On fait ensuite croître un plan de boîtes diluées c'est à dire 1.9 MC d'InAs pour un t_{3D} = 1 s, on encapsule avec 80 nm de GaAs afin de placer la boîte quantique au premier ventre du champ (schéma 3.32) pour un fil tel que d/λ = 0.22.

Sur cet échantillon épitaxié on dépose de la silice par évaporation sur laquelle on dépose une membrane d'or d'environ 300 nm par dépôt plasma.

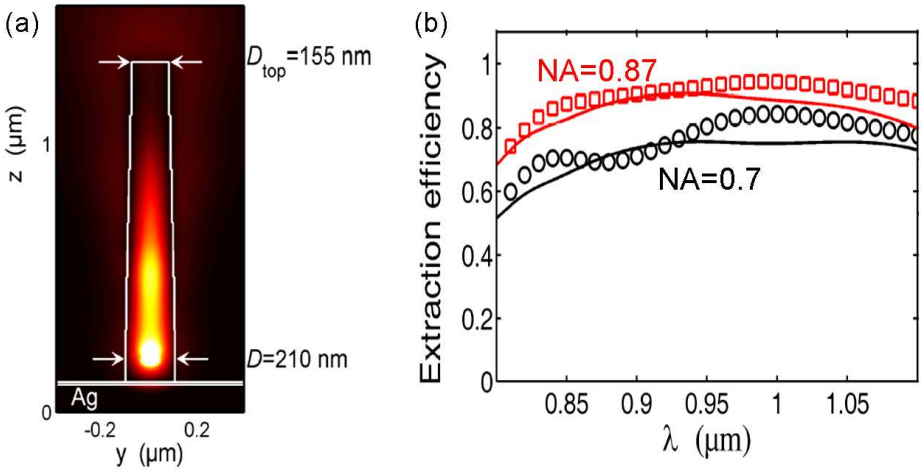


FIGURE 3.31 – Schéma de la géométrie du nanofil final (a), simulation de l'évolution de l'efficacité d'extraction en fonction de la longueur d'onde (b) les courbes pleines correspondent au calcul de chaque élément seul alors que les courbes discontinues représentent le calcul vectoriel global.

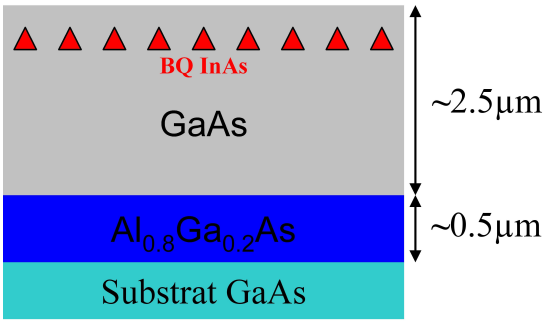


FIGURE 3.32 – Schéma de l'échantillon épitaxié

On colle ensuite cet échantillon face avant sur un substrat de GaAs recouvert de colle époxy. Après un recuit permettant de durcir le film de colle, on retire le substrat de GaAs par abrasion mécanique jusqu'à 50 μm de la couche sacrificielle. On finit de retirer le GaAs [116] et l'AlGaAs par attaque chimique sélective (schéma 3.33).

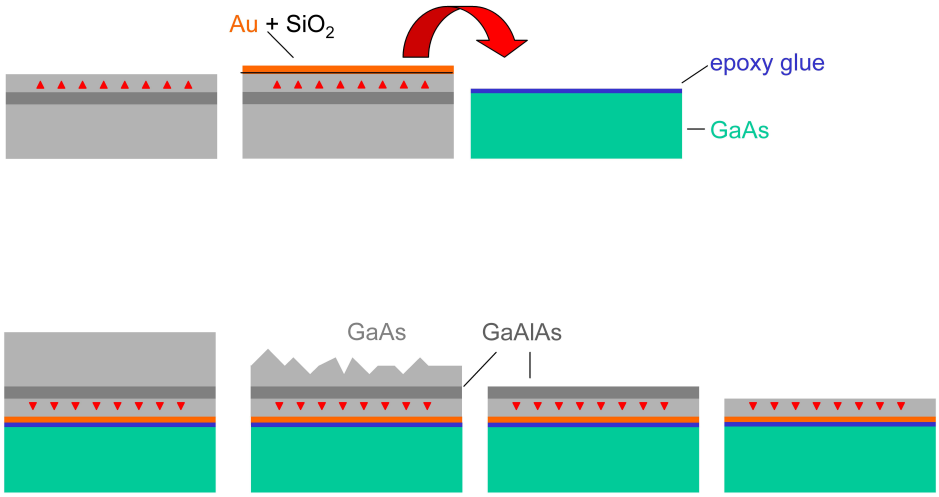


FIGURE 3.33 – Méthode de report de miroir

Ensuite on dépose le masque de Si_3N_4. On définit les motifs par lithographie électronique puis dépôt d'Al. Vient ensuite l'étape de "lift-off" pour retirer la résine. S'en suit l'étape de gravure plasma (RIE) de Si_3N_4 puis la gravure profonde du GaAs toujours par RIE Si_3N_4 et Ar (schéma 3.34). Cette gravure a été optimisée pour obtenir une forme en pointe au sommet du fil.

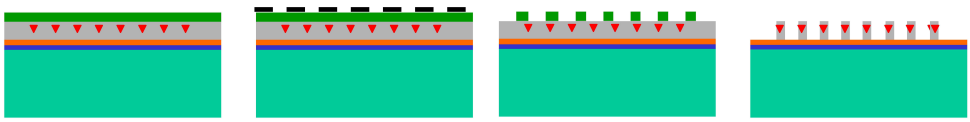


FIGURE 3.34 – Gravure des fils

L'échantillon se présente sous forme de plusieurs matrices de fils de différents diamètres avec un pas de 20 nm (image 3.35). Cette variation permet de balayer finement toute la gamme de diamètres comprise entre 800 nm et 0 nm, par pas de 20 nm.

3.4 Résultats expérimentaux

3.4.1 Mesures de micro-photoluminescence

Dans un premier temps, nous avons réalisé des mesures de micro-photoluminescence pour repérer un fil photonique contenant une boîte quantique bien isolée spectralement. L'échantillon présentant un plan de boîtes quantiques dilué, on peut estimer la densité surfacique de boîtes quantiques à 10^{10} boîtes.cm^{-2}. Les fils présentant les meilleurs résultats ont une taille comprise entre 200 et 260 nm. Leurs spectres de micro-photoluminescence présentent des boîtes bien isolées

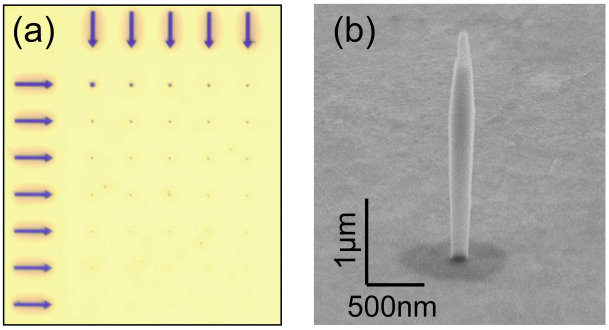


FIGURE 3.35 – Photo d'une matrice de fils par microscope optique (a), Photo SEM d'un fil de 200nm de diamètre nominal (b)

spectralement avec une intensité suffisante pour pouvoir réaliser les mesures de corrélation de photons par la suite.

La figure 3.36 montre un spectre de micro-photoluminescence pour un diamètre réel de 200 nm pris à 4 K. On observe un signal très clair de l'exciton (X) à 916.7 nm et celui du bi-exciton (XX) à 914.5 nm. A basse puissance on observe le signal de l'exciton seul, puis en augmentant la puissance on voit l'apparition d'une seconde raie correspondant vraisemblablement au biexciton.

C'est l'étude en puissance qui permet de valider l'identification de ces raies. Ces mesures ont été effectuées pour des puissances d'excitation en mode impulsionnel allant de 10 nW à 1 mW. Prenons le cas de l'exciton. En prenant l'hypothèse que la capture d'une paire électron-trou est un phénomène aléatoire et en négligeant les éventuels effets de charges, on peut estimer que le nombre de paires capturées par la boîte pour une impulsion excitatrice donné suit la loi poissonienne :

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} \exp(-\langle n \rangle) = \frac{1}{n!} \left(\frac{P}{P_0}\right)^n \exp\left(-\frac{P}{P_0}\right) \tag{3.10}$$

avec $P(n)$ la probabilité d'avoir n exciton dans la boîte et $\langle n \rangle$ le nombre moyen de paires créées par impulsion laser, qui a un comportement linéaire en fonction de la puissance d'excitation. On peut donc écrire la probabilité d'injecter au moins un exciton dans la boîte :

$$p(n \geq 1) = 1 - P(0) \tag{3.11}$$

On peut alors écrire l'intensité de la raie d'émission excitonique :

$$I_X(P) = I_0(1 - P(0)) = I_0\left(1 - \exp\left(-\frac{P}{P_0}\right)\right) \tag{3.12}$$

On peut considérer que I_0 est l'intensité à saturation de la raie et P_0 la puissance laser à saturation. A faible excitation, le signal est proportionnel à la probabilité d'injecter une paire électron-trou ; on a alors un comportement linéaire en fonction de la puissance de pompe.

En suivant le même raisonnement pour le biexciton, la probabilité d'injecter un biexciton dans la boîte s'écrit :

$$p(n \geq 2) = 1 - P(0) - P(1) \tag{3.13}$$

On écrit alors l'intensité de la raie biexcitonique :

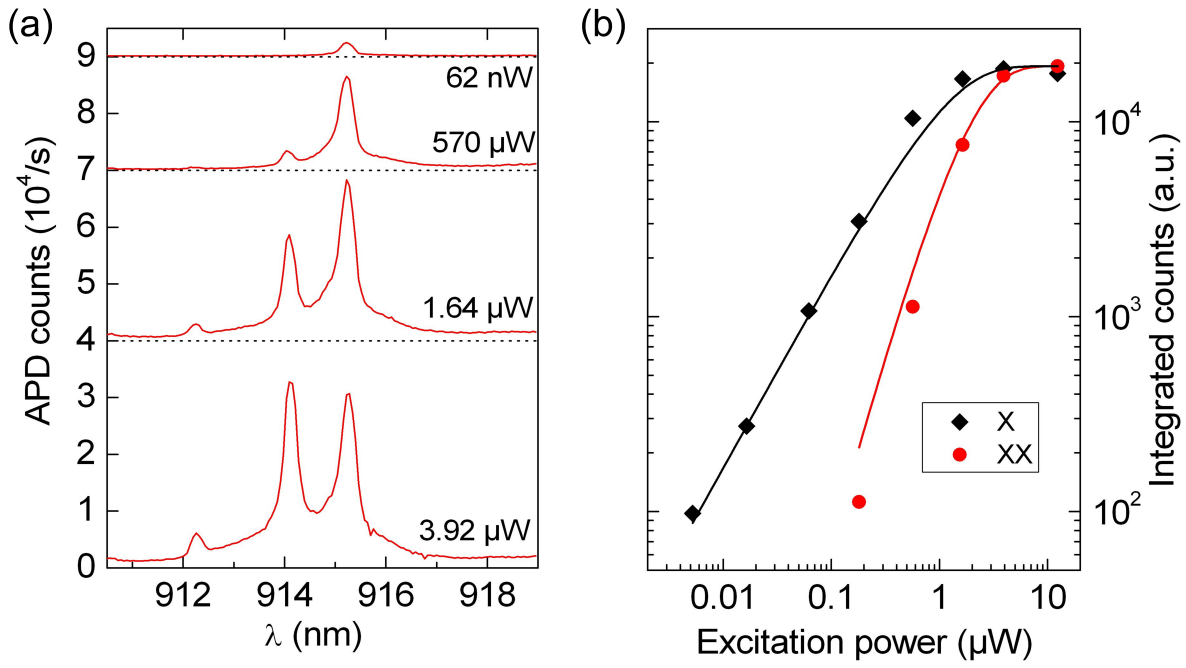


FIGURE 3.36 – Evolution de la luminescence en fonction de la puissance d'excitation (à gauche), intensité intégrée en fonction de la puissance de l'exciton(X) en noir et du bi-exciton(XX) en rouge (à droite)

$$I_{XX}(P) = I_0(1 - P(0) - P(1)) = I_0\left(1 - \exp\left(-\frac{P}{P_0}\right) - \frac{P}{P_0}\exp\left(-\frac{P}{P_0}\right)\right) \tag{3.14}$$

A la limite des faibles puissances on a $\frac{P}{P_0} \to 1$, I_{XX} s'écrit alors :

$$I_{XX}(P) = I_0\left(1 - 1 + \frac{P}{P_0} - \frac{1}{2}\left(\frac{P}{P_0}\right)^2 - \frac{P}{P_0} + \left(\frac{P}{P_0}\right)^2\right) \tag{3.15}$$

Soit :

$$I_{XX} \propto \frac{1}{2}\left(\frac{P}{P_0}\right)^2 \tag{3.16}$$

La figure de droite de 3.36 nous montre bien ces comportements, linéaire pour l'exciton et quadratique pour le biexciton, en dessous de la saturation ce qui nous permet d'identifier les raies.

A forte puissance, on a la même intensité pour l'exciton et le biexciton, cela s'explique car à saturation, la probabilité d'avoir au moins deux excitons dans la boîte quantique tend vers un. Le fait qu'on obtienne exactement le même signal à saturation est une signature d'un rendement de recombinaison radiative proche de 1 dans la boîte quantique. En effet, la présence de mécanismes non radiatifs affecterait *a priori* davantage le biexciton.

3.4.2 Mesures de temps de vie

Afin de caractériser la boîte quantique étudiée, nous nous sommes intéressés à son temps de vie.

Temps de vie de l'exciton

On estime le temps de vie de l'exciton par des expériences résolues en temps à τ ~2.4 ns (figure 3.39). Ce temps de vie est relativement long, il est deux fois supérieur au temps de vie dans du GaAs massif. Cette forte valeur peut s'expliquer par plusieurs effets.

Tout d'abord, on peut penser à un effet de diamètre, car les valeurs de temps de vie calculées varient très vite avec d pour un diamètre $d/\lambda < 0.20$ (figure 3.18).

Une étude au microscope à balayage électronique révèle que le diamètre réel du fil étudié est de 200 nm soit $0.9d_{opt}$. En supposant que la boîte quantique soit sur l'axe, on voit figure 3.18 que le temps de vie devrait être de l'ordre de 1.9 ns. L'écart au diamètre seul ne peut suffire à expliquer la valeur mesurée du temps de vie de l'exciton.

Une seconde origine possible pour cet allongement du temps de vie est un décalage spatial par rapport à l'axe qui réduit le couplage au mode guidé. Si on suppose que le taux d'émission spontanée dans les modes non guidés reste inchangé, on voit d'après la figure 3.37 que la boîte doit être localisée à environ 54 nm de l'axe pour présenter un tel temps de vie.

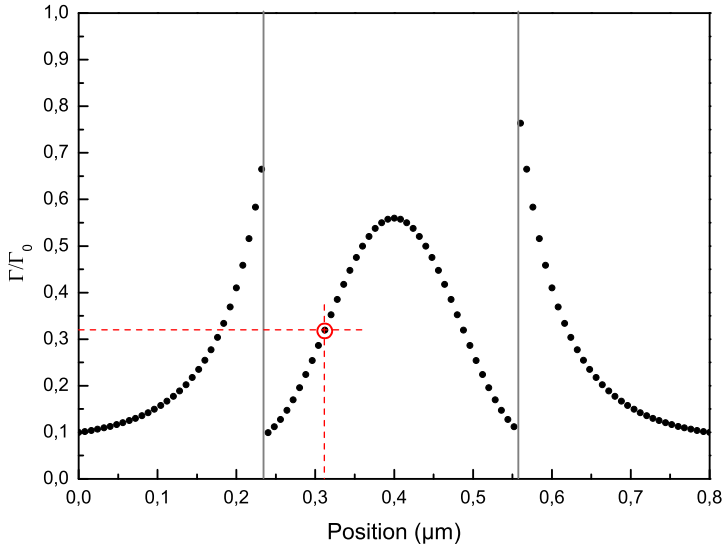


FIGURE 3.37 – Evolution du taux d'émission spontanée total en fonction de la position de l'émetteur dans un fil photonique de 200 nm de diamètre (le cercle correspond à la position de la boîte quantique étudiée et les traits en gris délimitent les bords du fil).

Du fait de ce décalage spatial, on s'attend à ce que l'émission de la boîte quantique soit légèrement polarisée. Cette polarisation peut, *a priori*, être utilisée elle aussi pour vérifier cette estimation de la position de la boîte quantique. D'après notre calcul présenté sur la figure 3.38, un déplacement hors axe de 65 nm doit conduire à un degré de polarisation linéaire de 6% si

on ne collecte que le mode guidé et inférieur à 5% si on collecte en plus les modes non guidés. En pratique, cet effet n'est pas suffisamment fort pour confirmer la position de l'émetteur dans le fil puisqu'il est comparable aux fluctuations de la polarisation de boîte à boîte (∼10%). En effet, dans une étude systématique du taux de polarisation, Favero et al [45] montrent que les boîtes quantiques présentent intrinsèquement une anisotropie optique. Ils mesurent des taux de polarisation linéaire moyen de plus de l'ordre de 30% pour des plans de boîtes quantiques d'InAs.

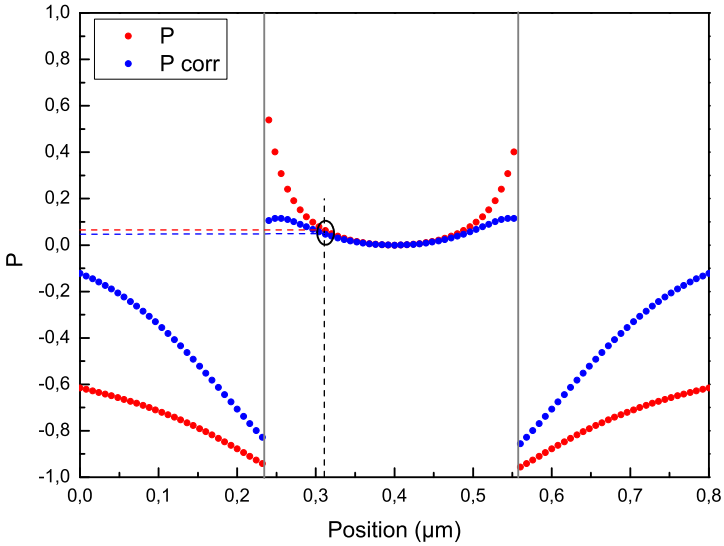


FIGURE 3.38 – Evolution de la polarisation en fonction de la position de la boîte quantique dans les deux cas limites décrits par 3.7 et 3.8 dans un fil photonique de 200 nm de diamètre (les traits en gris délimitent les bords du fil).

Temps de vie du biexciton

Le temps de vie du biexciton est estimé à $\tau \sim 1$ ns. Usuellement, pour le biexciton d'une boîte quantique d'InAs, on observe des temps de vie environ deux fois plus courts que pour l'exciton, comme le montrent Moreau et al [112] qui estiment le temps de vie de l'exciton à 1.4 ns et 0.6 ns le biexciton pour une boîte quantique d'InAs dans un mesa de GaAs.

L'observation de ce temps de vie relativement long par rapport à une boîte quantique dans du GaAs massif confirme l'effet d'inhibition observé sur l'exciton. Cet effet, attendu et observé aussi sur le biexciton, semble donc favorable à l'hypothèse sur une boîte décalée spatialement dans le fil. Dans la partie 3.6, nous présenterons plus en détail une étude systématique des temps de vie des boîtes quantiques dans les fils photoniques.

3.4.3 Mesures de corrélation de photons

Principe de la mesure

L'idée est d'étudier les propriétés statistiques d'un rayonnement émis. On cherche plus qu'une information sur un flux moyen qu'on peut obtenir avec un unique détecteur. Pour cela, on utilise

deux détecteurs pour mesurer la corrélation temporelle entre photons émis. On sépare le flux de photons en deux voies qui se dirigent vers deux détecteurs distincts. On regarde ensuite les délais entre les évènements détectés sur ceux-ci.

Ainsi, si on a une source de photons uniques, les photons sont émis de façon dégroupée, on aura donc jamais de "clic" sur les deux détecteurs simultanément.

On distingue deux modes de mesures :

- le mode continu qui nous permet de voir le dégroupement ou "antibunching".
- le mode impulsionnel qui permet une analyse des impulsions lumineuses émises par la source de photons uniques.

C'est ce dernier mode que l'on a utilisé pour nos propres mesures. La hauteur du pic de l'histogramme à zéro correspond à la probabilité d'avoir une impulsion à deux photons.

En pratique, on observe un nombre plus ou moins important d'évènements à zéro délai qui peuvent être dus à des sources d'émission parasite (couche de mouillage, autres boîtes quantiques), ou encore au bruit des détecteurs. Notons que dans notre cas nous utilisons des APDs silicium qui présentent un très faible nombre de coups d'obscurité ($\sim$100 cps.s^{-1}).

Mesures d'auto-corrélation

Les figures 3.39 montrent les histogrammes de corrélation obtenus pour l'exciton et le biexciton de la boîte quantique précédemment étudiée en micro-photoluminescence.

On mesure $g^2(\tau) = \langle I(t)\, I(t+\tau)\rangle / \langle I(t)\rangle^2$ sur la raie X et XX pour des puissances justes en dessous de la saturation et au dessus.

Le temps de vie de la boîte quantique étudiée étant assez long, on a une contribution des pics entre voisins. Pour avoir une estimation fiable de g^2 et du temps de vie, on a besoin d'ajuster l'ensemble de l'histogramme, c'est pourquoi on l'ajuste par la formule de corrélation prenant en compte cet effet :

$$f(t) = A\left[\frac{\cosh\left(\frac{t-t_0-pT}{\tau}\right)}{\cosh\left(\frac{T}{2\tau}\right)} + \left(g^2-1\right)\exp\left(\frac{-|t-t_0|}{\tau}\right)\right] \tag{3.17}$$

Avec T=13 ns la période de répétition du laser (13ns), τ le temps de vie de l'émetteur, t_0 l'origine des temps et p le plus petit entier supérieur à $[(t-t_0)/T]$ moins 1/2.

Pour l'exciton, on extrait un g^2 $< 8.10^{-3}$ de l'histogramme de corrélation (figure 3.39). Nous sommes donc en présence d'une source de photons uniques avec une très faible probabilité d'émettre deux photons simultanément. Si on se situe par rapport aux cavités, on peut citer, dans des micropiliers, Moreau et al [113] qui obtiennent un g^2 $\sim$ 0.19 mais aussi plus récemment les travaux de Strauf et al [149] qui extraient un g^2 $\sim$ 0.4 à saturation. Ces valeurs élevées de g^2 dans les cavités peuvent s'expliquer par la présence, en dehors de la résonance de la cavité, d'émetteurs pouvant alimenter celle-ci par différents mécanismes [8], [115].

Notre valeur si faible de g^2 dans les fils photoniques est un résultat remarquable par rapport à l'état de l'art des cavités dans ce domaine. Celui-ci est d'autant plus intéressant qu'il s'agit d'un paramètre clef, aussi important que l'efficacité de la source, pour les applications envisagées dans la partie 3.1.2. En cryptographie, par exemple, c'est la capacité de la source à émettre les photons un par un qui garantit la sécurité de la clef de codage.

Les mesures sur le biexciton nous donnent g^2 $\sim$ 0.13 (figure 3.39). L'augmentation du g^2 pour le biexciton s'explique par la contribution des photons due à l'aile de l'exciton. En effet, l'aile de l'exciton peut fournir des photons à l'énergie du biexciton. Ainsi, on pourra détecter

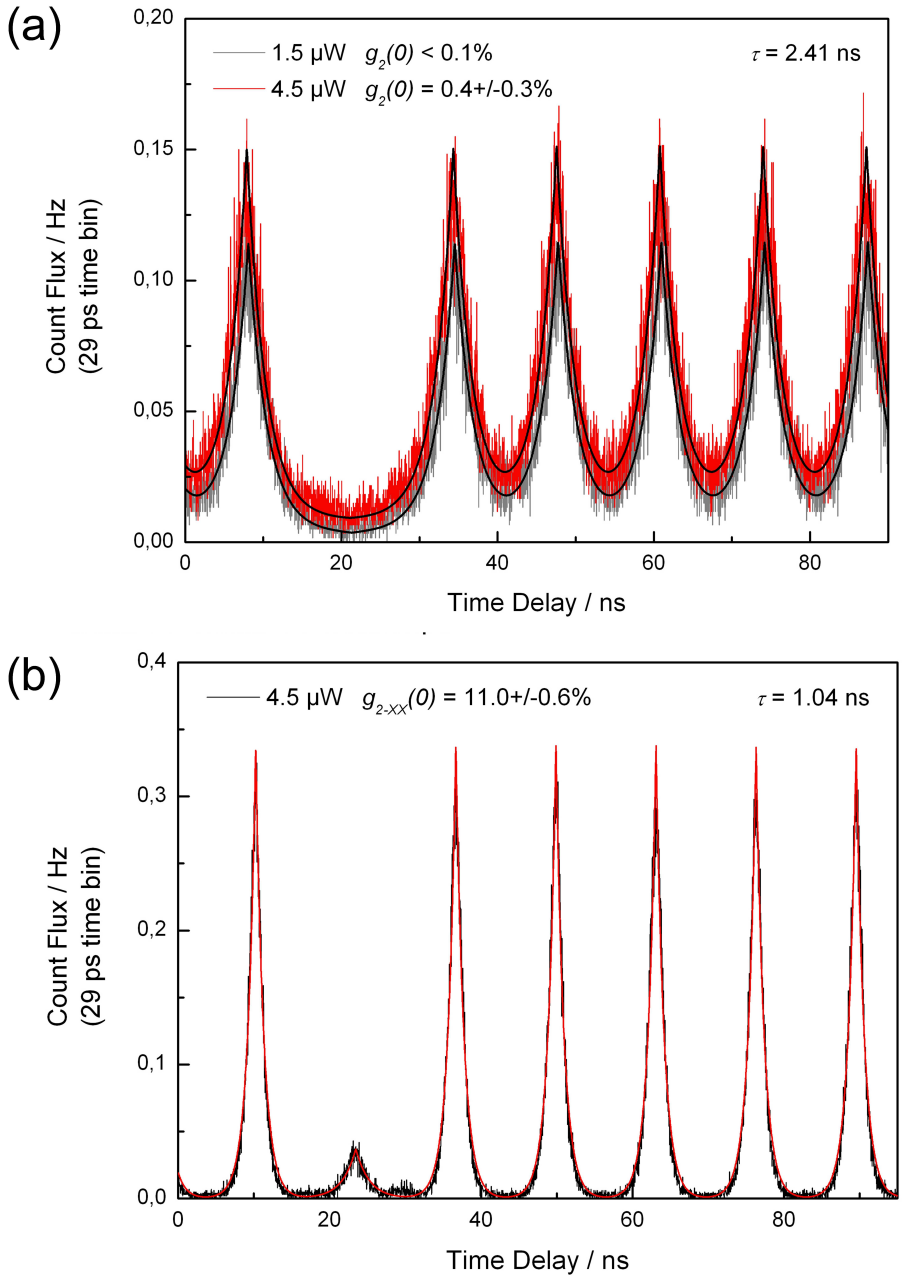


FIGURE 3.39 – Mesures de corrélation de l'exciton et du biexciton.

deux photons simultanément sur les détecteurs, l'un provenant du biexciton et l'autre de l'aile excitonique.

3.4.4 Mesure d'efficacité

Nous nous sommes intéressés à un autre paramètre clef : l'efficacité de ces sources de photons uniques.

Pour ce faire, on utilise un mode d'excitation impulsionnel et on ajuste la puissance du laser de façon à saturer la transition excitonique. On peut alors considérer que la boîte quantique capture au moins un exciton pour chaque impulsion laser excitatrice et émet par conséquent à coup sûr un photon dans la raie excitonique pour chaque cascade radiative. On veut alors connaître la probabilité ϵ qu'a ce photon d'être émis dans le cône de collection de l'objectif du microscope. Le flux de photons émis par le nanofil vaut alors $\phi_X = f\epsilon$. Pour extraire ϵ du signal mesuré sur les APDs, il faut bien entendu prendre en compte la réponse du dispositif expérimental (transmission des composants optiques, sensibilité des détecteurs) soit $S = f\epsilon r$ avec S le nombre de coups sur les APDs, f le nombre d'impulsions par seconde et r la réponse du système. Plutôt que de chercher à calculer cette réponse à partir des spécifications des nombreux composants de la chaîne optique (procédure peu fiable du fait de l'influence de l'alignement du système sur sa réponse globale), on a préféré estimer expérimentalement r.

Calibration avec le laser

Dans un premier temps, on utilise le laser comme référence. Pour cela, il est utilisé en mode pulsé à une longueur d'onde identique à celle de la raie excitonique et avec une puissance moyenne mesurable au puissancemètre.

On prend le spectre de l'exciton à la limite de saturation et le spectre du laser à 920 nm. Celui-ci est envoyé sur le miroir d'or sur une zone à proximité du fil étudié. Sa puissance P_{Laser} est mesurée après le filtre LP900 (figure 3.40). Le flux de photons alors associé au laser est de :

$$\phi_{Laser} = \frac{P_{Laser}}{\hbar\omega} \tag{3.18}$$

Les spectres sont acquis dans les mêmes conditions, exceptée l'utilisation d'une densité neutre (t = 0.01) pour le laser. Celle-ci permet d'obtenir le même ordre de grandeur en nombre de coups sur les APDs pour le pic [8]. Les intégrales des spectres de la boîte quantique et du laser valent :

$$\begin{aligned} I_X &= \eta\phi_X \\ I_{Laser} &= \eta t\phi_{Laser} \end{aligned} \tag{3.19}$$

Avec η=1.2x10^{-3} l'efficacité du dispositif expérimental. C'est le rapport des intensités qui nous permet d'obtenir l'efficacité ϵ de la source.

$$\epsilon = \frac{I_X}{I_{Laser}} = \frac{\phi_X}{t\phi_{Laser}} \tag{3.20}$$

8. Le fait d'avoir la même amplitude sur le spectre de la boîte quantique et du laser permet d'éviter un impact éventuel de non-linéarités dans la réponse des APDs.

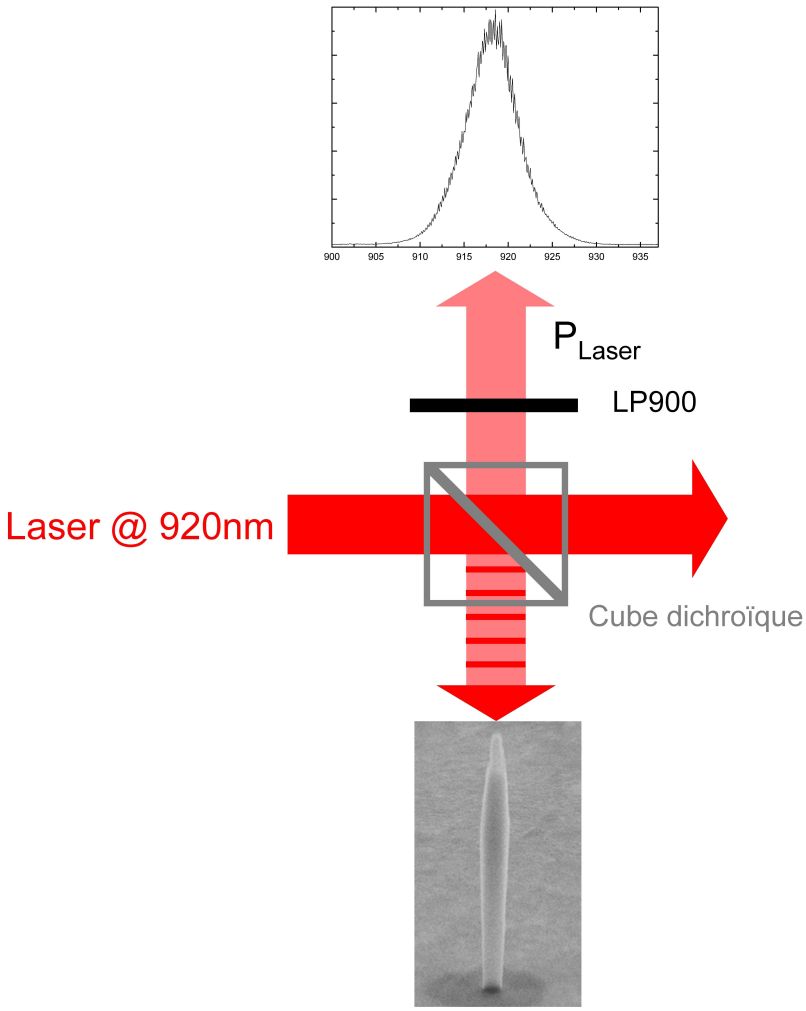


FIGURE 3.40 – Schéma de la mesure d'efficacité.

Validation de l'approche

Pour valider la méthode utilisée, on mesure de la même façon l'efficacité d'une source dont le flux de photons est connu. Pour cela, on utilise une boîte quantique unique encapsulée dans 120nm de GaAs massif dans un échantillon dit "zone frontière" (section 2.2.4). En effet, ce type de structure étant très simple, on peut calculer l'efficacité de collection des photons pour plusieurs ouvertures numériques. A la saturation de l'exciton, l'efficacité mesurée pour les ouvertures NA = 0.4 et 0.75 est respectivement $(4.5 \pm 0.8).10^{-3}$ et $(1.2 \pm 0.19).10^{-2}$. Ces valeurs sont en très bon accord avec les valeurs théoriques comme le montre la figure 3.41.

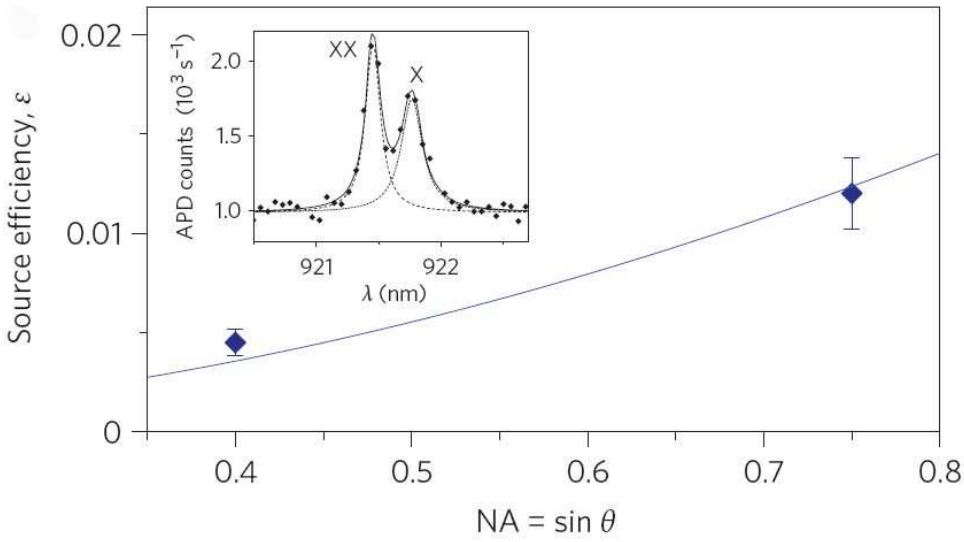


FIGURE 3.41 – Valeurs expérimentales (carré) et théoriques (ligne) calculées par N. Gregersen, pour une boîte unique dans du GaAs massif. L'encadré montre le spectre de micro-photoluminescence de cette boîte quantique, à saturation de l'exciton et du biexciton.

Application aux fils photoniques

Les mêmes mesures sur le fil photonique avec une ouverture de 0.4 donnent $\epsilon = 0.35 \pm 0.05$ (figure 3.42). Cette valeur est de l'ordre de celle obtenue dans les microcavités (0.44 [113] et 0.38 [149]). Cependant, le champ d'émission de nos fils photoniques n'est pas complètement intercepté dans le cône de collection de l'objectif d'ouverture 0.4 ; on gagne à utiliser une ouverture plus grande. Avec l'objectif d'ouverture NA=0.75, on mesure $\epsilon = 0.72 \pm 0.09$ ce qui est 1.6 fois supérieur à l'état de l'art en terme d'efficacité, par rapport aux meilleures sources de photons uniques à microcavité.

Des mesures supplémentaires sur d'autres fils de diamètres allant de 200 à 260nm avec des longueurs d'ondes d'émission différentes, nous donnent des efficacités $\epsilon > 0.5$. Ces résultats valident le côté large bande de notre géométrie ainsi que la reproductibilité.

De plus, une limitation de l'efficacité de notre source provient de la géométrie du "taper" de sortie. En effet, nos données sont décrites par un angle de 5°(figure 3.42 courbe pleine). La valeur de la transmission vaut alors $T_{5°}(0.75) = 0.77$. En améliorant la fabrication et en atteignant un angle α suffisamment faible, la limite théorique de l'efficacité serait voisine de 0.95 pour une transmission de "taper" proche de l'unité.

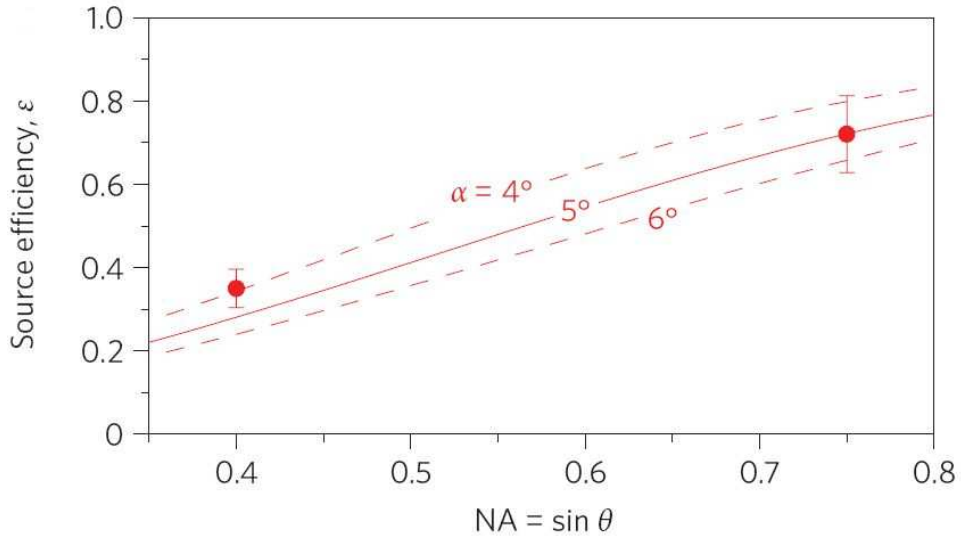


FIGURE 3.42 – Efficacité de la source nanofil ; les mesures (rond) sont présentées pour deux NA (0.4 et 0.75), les 3 lignes correspondent aux calculs de N. Gregersen pour trois angles d'ouverture de taper α.

Notons aussi que la valeur d'efficacité mesurée est réduite par rapport à la valeur théorique du fait de la position non optimale de la boîte quantique étudiée dans le fil.

L'efficacité que l'on mesure sur nos fils photoniques se situe bien au delà de l'état de l'art antérieur (∼40%). Nous avons prouvé que nos fils photoniques permettent un bon contrôle de l'émission spontanée et de la collection grâce à son optimisation via le miroir d'or et la présence du "taper". Ces différents paramètres ont permis d'obtenir une source de photons uniques très propre, g^2 à 8.10^{-3} à saturation, avec une efficacité de plus de 70% pour une large gamme spectrale. Ce qui est très différent des cavités pour lesquelles g^2 augmente fortement lorsqu'on cherche à obtenir le flux de photons maximum (ϵ_{ph} par pulse), on est limité par la saturation de la boîte quantique. Cette combinaison tout à fait unique d'une haute efficacité et d'un g^2 très faible rendant l'approche "boîte quantique dans un fil photonique" particulièrement prometteuse pour une application à la cryptographie quantique en particulier.

3.5 Perspectives

3.5.1 Pompage électrique

Pour les applications possibles des sources de photons uniques, il est naturel de s'intéresser à une source pompée électriquement. Les difficultés résident principalement sur deux points :

(1) La combinaison de l'injection électrique et une collection efficace des photons notamment en raison de la présence des contacts.

(2) Le fait que l'impulsion électrique excitatrice soit courte à l'échelle du temps de vie de l'exciton afin d'éviter les effets de re-pompage de l'exciton et impose une structure de résistance série suffisamment faible. On note que cette condition est d'autant plus stricte pour les sources exploitant l'effet Purcell puisque le temps de vie y est raccourci.

Parmi les premières tentatives de pompage électrique sur des cavités, on peut citer Böckler et al [20] qui observe un fort effet Purcell pour des boîtes quantiques dans un micropilier pompé

électriquement. Cette source ne peut pas émettre des photons un par un car la résistance série associée au transport difficile à basse température dans des miroirs de Bragg ne permet pas d'avoir des impulsion électriques courtes.

La première source de photons uniques à boîtes quantiques pompées électriquement a été démontré par Yuan et al [168] et se présente comme une diode électroluminescente à boîte quantique unique. Leur étude montre clairement un g^2 de l'ordre de 11% pour une fréquence de répétitions du courant de 80 MHz. Ce type de structure en mésa ne permet pas une bonne collection de la lumière, l'efficacité ne peut guère atteindre plus de 1%.

La solution retenue par Ellis et al [41] utilise deux contacts intracavité dans une structure semblable aux lasers à émission par surface. Cela permet de réduire la constante RC de la structure et d'émettre des photons uniques avec une haute fréquence de répétition. Cependant ces géométries ne sont pas optimisée pour la collection des photons, l'efficacité mesurée est de l'ordre de 14%.

Les fils photoniques offrent une approche très prometteuse dans ce contexte. Les nanofils montrant un bon contrôle de l'émission spontanée dans un matériau de composition homogène seraient très faciles à pomper électriquement. La figure 3.43 montre un "design" en cours d'étude au sein de notre laboratoire. Il s'agit d'une jonction p-i-n dans du GaAs contenant un plan de boîtes quantiques dilué. La fabrication des fils se réalise de la même façon que présenté précédemment (section 3.3.2), chacun contenant une ou quelques boîtes. On planarise la structure pour ajouter les contacts supérieurs semi-transparents. Des calculs récents de N. Gregersen (DTU Fotonik) prédisent une efficacité ϵ >80% pour un dessin optimisé. Du fait de l'absence de barrières AlAs/GaAs, on s'attend à ce que le transport de courant soit grandement favorisé dans ce système et qu'un fonctionnement à haute fréquence de répétitions soit possible (f>100 MHz).

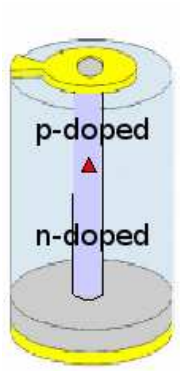


FIGURE 3.43 – Schéma d'une proposition de nanofil pompé électriquement.

3.5.2 Applications potentielles

De part le côté "large bande" des fils photoniques, on peut penser à réaliser une source accordable en longueur d'onde via la température, par exemple, tout en gardant la même efficacité.

De même, la génération de paires de photons exciton-biexciton est possible tout en collectant aussi efficacement les photons émis par l'exciton et le biexciton.

Enfin, cette géométrie pourrait être utilisée avec des émetteurs de grande largeur spectrale comme les centres colorés dans le diamant.

3.5.3 Inconvénient et solutions proposées

Pour l'application à la cryptographie quantique, l'état de polarisation du photon de départ doit être bien défini. Pour cela, on pourrait penser à décaler la boîte quantique dans un fil cylindrique. Cependant, la figure 3.23, nous montre qu'il n'est pas possible d'obtenir des taux de polarisation très élevés (80% au maximum). De plus, on ne peut obtenir de taux de polarisation significatif sans réduire notablement β et donc ϵ. Une autre approche, inspirée des travaux de B. Gayral sur des micropiliers, est d'introduire une forte anisotropie d'un fil, de forme elliptique par exemple. Cette approche est particulièrement intéressante car on a vu figure 3.16 que le champ se déconfine fortement pour des diamètres de 150 à 200 nm. On peut alors choisir le grand et le petit diamètre de l'ellipse de manière à avoir un mode très confiné et l'autre largement à l'extérieur du fil. On favoriserait alors un couplage très préférentiel de la boîte quantique à un mode polarisé linéairement. Cette approche est en cours de validation au laboratoire.

3.5.4 Génération de photons indiscernables

Un atout de l'utilisation de l'effet Purcell en cavité, réside dans le raccourcissement du temps de vie de l'exciton qu'il induit. Ce raccourcissement permet de rendre le temps de vie plus petit que le temps de déphasage et d'améliorer le taux d'indiscernabilité des photons émis [137], [158].

Une approche possible pour compenser l'absence d'effet Purcell consiste à mettre en œuvre des émetteurs à très faible temps de vie radiatif. On peut penser, par exemple, aux boîtes quantiques de force d'oscillateur géante telles que les boîtes formées par fluctuations de puits quantique [74], des boîtes quantiques tridimensionnnelles moyennement contraintes d'InGaAs [129], ou certaines impuretés telles que l'atome isoélectronique de fluor dans ZnSe [134].

3.6 Inhibition de l'émission spontanée dans les fils photoniques

Les microcavités et fils photoniques peuvent être employés pour obtenir un fort β, en vue d'une application aux sources de photons uniques ou encore aux microlasers. Il faut souligner encore une fois la différence majeure entre les deux approches. Dans une microcavité, on utilise principalement l'effet Purcell pour exalter l'émission spontanée dans le mode tandis que l'émission spontanée dans les modes de fuites est très peu inhibée (à l'exception notable des microcavités réalisées dans un cristal photonique). Le fil photonique au contraire ne permet pas d'exalter notablement le taux d'émission spontanée ; c'est ici l'inhibition de l'émission spontanée dans les modes de fuites qui permet d'obtenir un fort β. Du fait de l'importance de cet effet pour notre source de photons uniques et plus largement de son importance conceptuelle, nous avons décidé d'étudier l'inhibition de l'émission spontanée de boîtes quantiques insérées dans les fils photoniques.

Ayant en mémoire les résultats des calculs présentés dans la section 1.3.2, on s'attend à observer deux effets majeurs :

(1) dans les fils de petits diamètres (d<0.18 μm), un effet d'inhibition de toutes les boîtes quantiques, puisque le mode guidé est déconfiné à l'extérieur du guide.

(2) dans les fils plus gros mais monomodes (0.18 μm<d<0.26 μm), une fluctuation très marquée du taux d'émission spontanée des boîtes quantiques en fonction de leur position dans le fil et une inhibition forte pour des boîtes quantiques peu couplées au mode, du fait d'une position en bord de fil.

Remarquons que nous avons implicitement supposé ici que le taux d'émission spontanée dans les modes de fuites est faible et indépendant de la position de la boîte quantique.

C'est donc pour étudier l'inhibition de l'émission spontanée de boîtes quantiques dans les fils photoniques que des expériences de temps de vie ont été réalisées au cours de ce travail de thèse avec J. Bleuse et la stagiaire M. Creasey.

3.6.1 Mesure de l'inhibition dans les fils photoniques

Pour soutenir cette hypothèse, on a réalisé un grand nombre de mesures sur des fils ayant quelques raies excitoniques. Sur chacune de ces raies, on vérifie être sous la saturation pour éviter des effets biexcitoniques. On mesure ensuite le temps de déclin de la photoluminescence à basse température sur les raies relativement bien isolées d'environ une centaine de boîtes quantiques sur une quarantaine de fils de diamètres allant de 120 nm à 400 nm. L'ajustement se fait en prenant en compte la réponse instrumentale. On trouve alors des temps de déclin allant de 0.64 à 22.1 ns (figure 3.44). Pour chaque fil, on mesure un temps de vie de référence en étudiant le temps de vie moyen de l'émission de boîtes quantiques placées dans un pilier de très grosse taille afin d'avoir une bonne estimation du temps de vie d'une boîte quantique dans du GaAs massif.

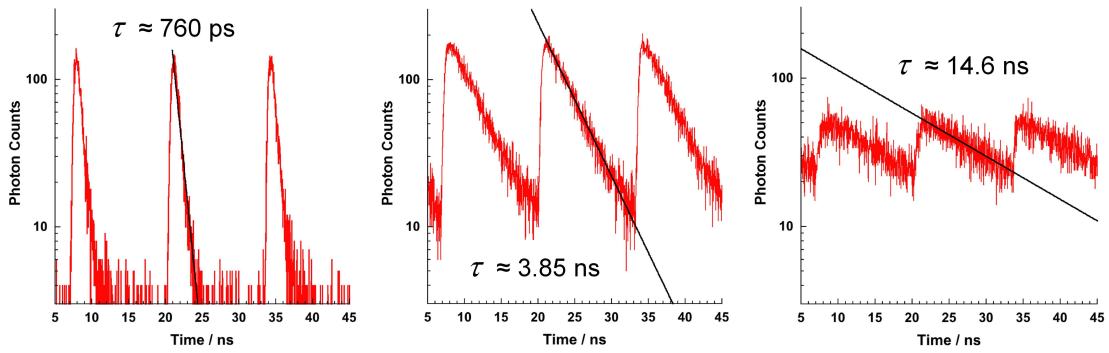


FIGURE 3.44 – Mesures de temps de vie pour trois boîtes quantiques.

Les résultats obtenus expérimentalement sont présentés figure 3.45. Le diamètre réel a été remesuré pour chaque fil par microscope à balayage électronique avec une incertitude de l'ordre de 0.02 figuré par les barres d'erreurs horizontales. Les barres d'erreurs verticales quant à elles correspondent aux incertitudes liées au dépouillement des courbes de déclin temporel. On observe bien les comportements attendus. On note des temps de vie beaucoup plus long que les temps de vie de référence. Pour de très petits diamètres (d/λ ~0.15) on a un facteur 20 entre τ_0 et τ_{BQ}. Ce degré d'inhibition est remarquablement important, il est comparable aux plus grandes valeurs observées par Noda et al [2] dans des cristaux photoniques bidimensionnels. On observe aussi pour un diamètre proche du diamètre optimal (d/λ ~0.22) la très forte dispersion attendue pour le taux d'émission spontanée normalisé. A titre d'exemple pour d/λ ~0.25, le taux d'émission spontanée normalisé varie entre 0.3 et 1.67. Nous attribuons cette dispersion au couplage plus ou moins fort des boîtes quantiques au mode guidé du fait de leur éloignement plus ou moins grand par rapport au ventre du mode.

Pour vérifier cette hypothèse, nous comparons sur la figure 3.45 les résultats expérimentaux aux taux d'émission spontanée calculés par le groupe de Lalanne et al pour la géométrie réelle, incluant le miroir inférieur. Il est intéressant de noter que sa présence provoque un léger renforcement du taux d'émission spontanée (×1.7). Les deux courbes théoriques correspondent aux

valeurs maximale et minimale du taux d'émission spontanée. Notons que la valeur maximale est obtenue pour une boite quantique sur l'axe, on considère ici que la boîte quantique présente deux dipôles identiques suivant x et y. On remarque le très bon accord global entre nos résultats expérimentaux et les bornes prédites par la théorie.

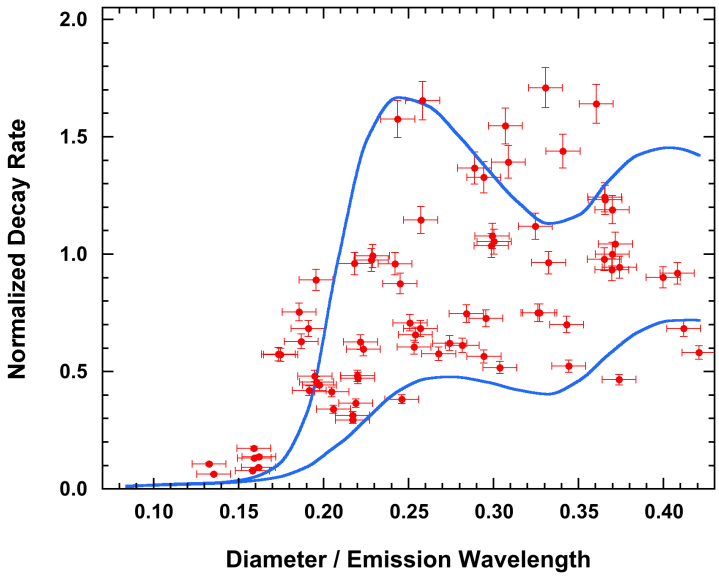


FIGURE 3.45 – Taux de déclin normalisés de boîtes quantiques en fonction du rapport diamètre-longueur d'onde des nanofils (ronds) et valeurs théoriques maximale et minimale calculées par I. Masksymov (courbes).

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons démontré que les fils photoniques sont des sources de photons uniques très propres avec un g^2 remarquablement plus faible que pour une boîte en cavité. L'optimisation de la structure des fils photoniques, c'est à dire l'intégration d'un miroir original au pied du fil et d'une pointe conique assurant une adaptation modale, a permis d'obtenir une efficacité record de 70%.

Contrairement à l'approche boîtes quantiques en cavités, cette forte efficacité est obtenue en combinant un bon couplage au mode guidé et une forte inhibition des modes non-guidés de la structure. Ce fort effet d'inhibition a été confirmé en étudiant des ensembles de boîtes quantiques insérées dans les fils photoniques.

Les sources de photons uniques à fils photoniques présentent de nombreux atouts en vue d'applications : la stratégie de collection des photons ne reposant pas sur des effets résonants, elle peut être facilement appliquée à la réalisation de sources de photons uniques efficaces et accordables en longueur d'onde, exploitant des émetteurs monochromatiques ou encore des sources de paires de photons collectant efficacement l'émission excitonique et biexcitonique d'une boîte quantique.

Chapitre 4

Etude de l'effet laser pour des modes de galerie dans des micropiliers

Sommaire

4.1 Généralités 104
4.1.1 Rappel historique des modes de galerie 104
4.1.2 Les microdisques semiconducteurs 104
4.1.3 Lasers à microdisques suspendus 106
4.1.4 Limites des microdisques suspendus 108
4.2 Des modes de galerie dans les cavités micropiliers 109
4.2.1 Micropiliers à modes de galerie 110
4.2.2 Description de l'échantillon étudié 111
4.2.3 Mesures préliminaires 112
4.3 Effet laser dans un micropilier à modes de galerie 113
4.3.1 Configuration expérimentale 113
4.3.2 Evolution de l'intensité intégrée en fonction de la puissance de pompe . 114
4.3.3 Largeur spectrale 118
4.3.4 Evacuation thermique 119
4.3.5 Températures de fonctionnement 121
4.4 Modèle théorique 123
4.4.1 Modèle à deux niveaux 123
4.4.2 Extension du modèle à 4 niveaux 129
4.5 Conclusion et Perspectives 132

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'effet laser dans une cavité à modes de galerie originale : un micropilier GaAs/AlAs. Nous décrirons tout d'abord la cavité semiconductrice la plus utilisée jusqu'à présent pour confiner des modes galerie : le microdisque reposant sur un piédestal de diamètre inférieur à celui du disque. Cette structure présente un contraste d'indice maximal, ce qui autorise un confinement optimal des modes de galerie. Toutefois, cette géométrie présente une évacuation thermique innefficace, particulièrement problématique pour un micro-laser. Le pompage du milieu à gain induit alors un échauffement de la périphérie du disque qui dégrade les performances du dipositif.

Nous verrons que les cavités micropiliers, habituellement étudiées pour leurs résonances longitudinales, peuvent également supporter des modes de galerie. En utilisant des boîtes quantiques comme milieu à gain, le régime laser a été atteint pour des températures allant de 4 K à 100 K

dans des piliers de 4 μm de diamètre. L'étude expérimentale menée démontre une relative stabilité de la longueur d'onde de la lumière émise par rapport aux microdisques, ainsi qu'un affinement spectral se maintenant pour des taux de pompage 7 fois supérieurs au seuil laser. Pour décrire le fonctionnement de ces microlasers, nous présenterons enfin un modèle simple, basé sur la résolution des équations de taux pour un milieu à gain à deux niveaux. Nous présenterons aussi l'apport d'une description plus réaliste du milieu à gain à 4 niveaux.

4.1 Généralités

4.1.1 Rappel historique des modes de galerie

Un mode de galerie est un mode résonant observable dans des cavités présentant une symétrie de révolution. L'origine de ce terme remonte à 1877, lorsque Lord Rayleigh observant les résonances acoustiques dans le dôme de St Paul de Londres les nomma "Whispering Gallery Modes" (modes de galerie en français). Ce nom rappelle la possibilité qu'ont les personnes présentes dans ce lieu de converser à voie basse (to whisper) quelque soit leur éloignement.

Dans le domaine optique, ces modes interviennent dans les travaux de Mie (1908) [107] qui s'intéresse à la diffusion de la lumière par une sphère de grande taille par rapport à la longueur d'onde. Il met en évidence les résonances dites de Mie, qui correspondent au stockage de l'énergie électromagnétique dans la sphère pour certaines longueurs d'ondes. Rayleigh interprète ce phénomène comme issu d'ondes électromagnétiques se propageant à la périphérie de la sphère par réflexion totale interne et revenant en phase avec elles-mêmes après avoir parcouru un tour [127]. Par analogie avec le domaine acoustique, ces modes résonants ont également été nommés "Whispering Gallery Modes".

Parmi les microcavités optiques supportant des modes de gallerie, on peut distinguer schématiquement deux grandes familles : premièrement les cavités à silice refondue comme les microsphères [135], [159] ou plus récemment les microtores [155], dont l'état de surface défini par la tension superficielle conduit à des facteurs de qualité géants ; et deuxièmement les cavités semiconductrices, généralement obtenues par gravures sèche ou liquide. Elles présentent des facteurs de qualité plus faibles, mais leur indice optique élevé autorise un meilleur confinement optique. D'autre part, elles offrent la possibilité d'intégrer des émetteurs optiques performants, des puits quantiques ou des boîtes quantiques, directement au sein de la cavité. Dans la suite, nous nous intéresserons à ces dernières.

4.1.2 Les microdisques semiconducteurs

Les premières microcavités semiconductrices à modes de galerie étudiées sont constituées d'un microdisque semiconducteur reposant sur un piedestal de plus petit diamètre (figure 4.2). Elles ont été réalisées pour la première fois en 1992 par McCall et al [103]. Dans ces structures, la lumière est guidée dans le plan du microdisque par un effet de guidage réfractif (structure air/semiconducteur/air). Le confinement latéral est obtenu par réflexion quasi-totale interne le long de l'interface circulaire semiconducteur/air. On observe alors une résonance optique chaque fois que la lumière revient en phase après un tour dans la structure. Dans une description plus complète [123], ces résonances sont identifiées par la polarisation du mode (TE représente la composante électrique du champ électromagnétique dans le plan du disque [9] et TM la composante magnétique [10]), et 3 nombres entiers : z le nombre de ventres du mode selon la verticale, r le

9. $E_z = 0$ et $H_z \neq 0$
10. $H_z = 0$ et $E_z \neq 0$

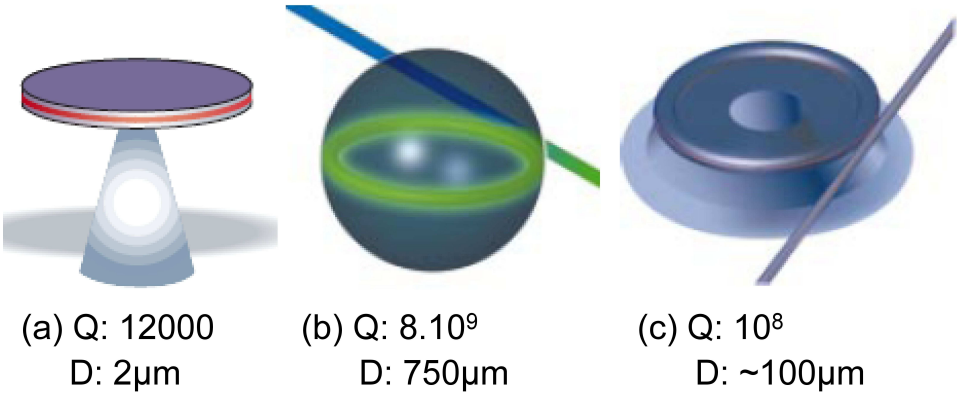


FIGURE 4.1 – Quelques cavités à modes de galerie et leurs caractéristiques : (a) microdisque, (b) microsphère et (c) microtore (ici couplés à une fibre positionnée à la périphérie du résonnateur) [155] avec Q le facteur de qualité et D le diamètre de la structure.

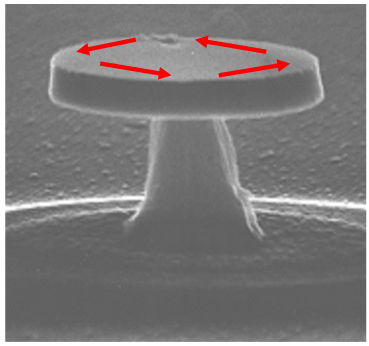


FIGURE 4.2 – Image MEB d'un microdisque, les flèches schématisent les modes de galerie à la périphérie du disque.

nombre de ventres selon un rayon et m l'indice azimutal qui compte le nombre de longueurs d'ondes réparties sur un tour. En général, la hauteur du microdisque est choisie pour optimiser le confinement vertical et seuls les modes $z = 1$ sont convenablement guidés. Pour une structure idéale, le facteur de qualité Q est limité par des pertes radiatives car la réflexion de la lumière le long de l'interface courbe n'est pas totale. Les modes $r = 1$, localisés à la périphérie du disque, correspondent à la description schématique donnée plus haut. Ils présentent en outre les plus forts facteurs de qualité car ils correspondent à l'incidence la plus rasante de la lumière sur le bord du microdisque.

Ces modes de galerie présentent un volume modal V_m très réduit : pour un disque de GaAs de 2 μm de diamètre et 200 nm d'épaisseur, on a $V_m = 6(\lambda/n)^3$ ($\lambda \sim$1 μm). Tant que le diamètre D est grand devant λ/n, V_m augmente environ linéairement avec D. En pratique, l'interface latérale n'est pas parfaitement circulaire et présente une rugosité de surface liée aux imperfections de fabrication. Cette rugosité induit des pertes optiques supplémentaires qui dégradent très fortement le facteur de qualité théorique. Depuis leur invention, le facteur de qualité de ces structures a donc progressé avec les progrès technologiques qui dépendent bien évidemment du système de matériau considéré. L'état de l'art des facteurs de qualité des microdisques se situe à $Q \sim 500000$ [23] pour des microdisques vides de 2.5 μm de diamètre et $Q \geq 20000$ [54], [148] pour des microdisques de 2 μm de diamètre contenant des boîtes quantiques. A noter que les microdisques contenant des boîtes quantiques présentent systématiquement des facteurs Q plus faibles, même lorsque l'absorption induite par les boîtes est négligeable. Cette différence est encore incomprise et plusieurs hypothèses peuvent être envisagées : l'absorption résiduelle à cause de la couche de mouillage ou une diffusion induite par les boîtes quantiques et les fluctuations d'indice qu'elles induisent dans le milieu.

En résumé, les microdisques sont de très bons microrésonateurs. Le faible volume modal combiné au fort facteur de qualité font des microdisques une cavité de choix pour la démonstration d'effets d'électrodynamique quantique en cavité. On peut citer notamment la démonstration de l'effet Purcell pour un ensemble de boîtes quantiques InAs dans un disque de GaAs (facteur de Purcell moyen de 18 [56]) et pour une boîte unique (facteur de Purcell de 6 [88]). Plus récemment, le régime de couplage fort lumière-matière a été atteint dans ces structures en insérant des boîtes à fluctuation d'interface dans un microdisque d'AlGaAs [125]. Les propriétés de contrôle de l'émission spontanée sont également très intéressantes pour la réalisation de microlasers à bas seuil, point sur lequel est centré le reste du chapitre.

4.1.3 Lasers à microdisques suspendus

Très tôt cette géométrie a montré un certain intérêt dans la réalisation de microlasers. La première réalisation utilise des puits quantiques comme milieu à gain (disque d'InGaAsP reposant sur un piedestal de SiO_2 ou d'InP contenant des puits quantiques d'InGaAs) [103]. Sous pompage optique à basse température, les auteurs observent l'effet laser sur un mode unique à 1.3 μm et 1.5 μm avec une puissance de seuil en dessous de 100 μW. Depuis, d'autres microlasers à puits quantiques ont ensuite été demontrés [108], [109], [142], [143], [150].

Le courant de seuil des microlasers à puits quantiques est notamment limité par les recombinaisons de surface non radiatives. Celles-ci consomment inutilement des porteurs et donc augmentent le seuil du laser. Elles induisent aussi un échauffement parasite de la structure. Deux stratégies se dessinent pour dépasser cette difficulté, soit diminuer la vitesse de recombinaison en surface en passivant celle-ci et/ou en utilisant un système de matériau à faible taux de recombinaison de surface comme de l'InP [142] ; soit utiliser des plans de boîtes quantiques qui localisent les porteurs et limitent la diffusion vers la surface libre [58], [53]. Notons que cette localisation

dépend du potentiel de confinement - donc du système de matériaux - et de la température. Les boîtes quantiques auto-assemblées ont un autre intérêt : elles présentent une courbe de gain dont la largeur spectrale est dominée par la largeur inhomogène (variation de taille des boîtes). Ceci permet d'obtenir un laser multimode tant que l'intervalle spectral libre est plus grand que la largeur homogène des boîtes. Ceci peut être intéressant pour certaines applications.

Pour des boîtes quantiques d'InAs dans un disque de GaAs, les mesures de Cao et al [29] montrent un seuil laser de 20 μW (figure 4.3). Ce comportement, obtenu aux températures cryogéniques, est observé sur 4 modes simultanément. Depuis, d'autres lasers à boîtes quantiques ont été démontrés [106]. Citons notamment le travail de Ide et al. [78], qui ont utilisé des boîtes InAs optimisées qui localisent efficacement les porteurs jusqu'à température ambiante. Ces dernières permettent alors d'atteindre le régime laser à température ambiante. Leurs mesures, présentées en figure 4.4, montrent également l'influence de la température sur le seuil laser. La hausse de température engendre un dépiègeage des porteurs ainsi qu'une activation des canaux non radiatifs.

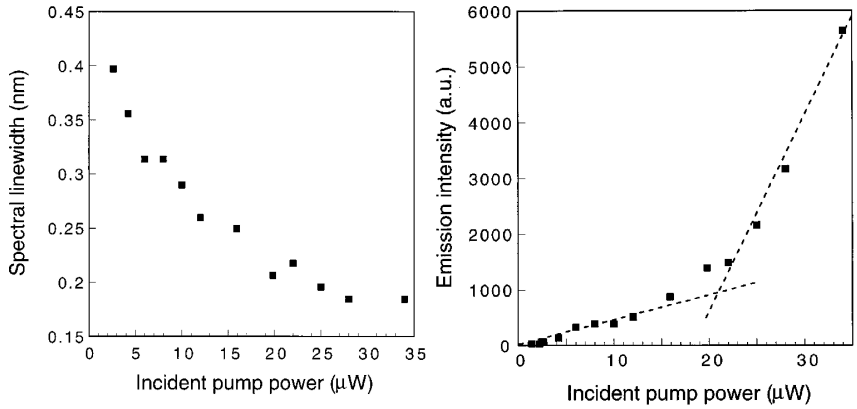


FIGURE 4.3 – Evolution de la largeur de raie et de l'intensité en fonction de la puissance de pompe (Cao et al [29]).

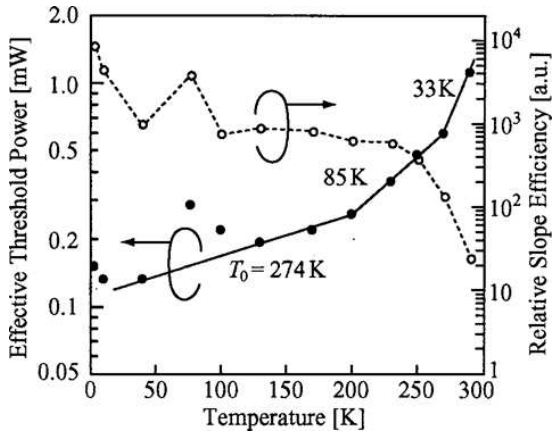


FIGURE 4.4 – Evolution du seuil laser en fonction de la température (Ide et al [78]).

Enfin, intéressons-nous aux largeurs de raies de ces lasers pour des milieux à gain à boîtes quantiques ou puits quantiques. Pour un laser "idéal", la loi de Schalow-Townes prévoit un af-

finement spectral au-dessus du seuil quand l'émission stimulée devient le mécanisme dominant de recombinaison radiative [139]. A l'exception des travaux de Mohideen et al [109] et dans une moindre mesure ceux de Michler et al [106] (figure 4.5), les microlasers à microdisques suspendus montrent un affinement spectral très peu marqué au dessus du seuil laser, voir une augmentation rapide de la largeur de raie. Les travaux plus récents de Peter et al [124] montrent un comportement similaire aux études précédentes : les largeurs de raies augmentent au dessus du seuil laser en raison de l'échauffement du disque (figure 4.6). Plusieurs mécanismes ont été invoqués pour expliquer ce phénomène : le couplage de l'indice au gain [17] ou une description microscopique du milieu à gain (figure 4.7) [109]. Cet élargissement peut être également relié aux effets de chauffage, très importants dans les microdisques suspendus, comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant.

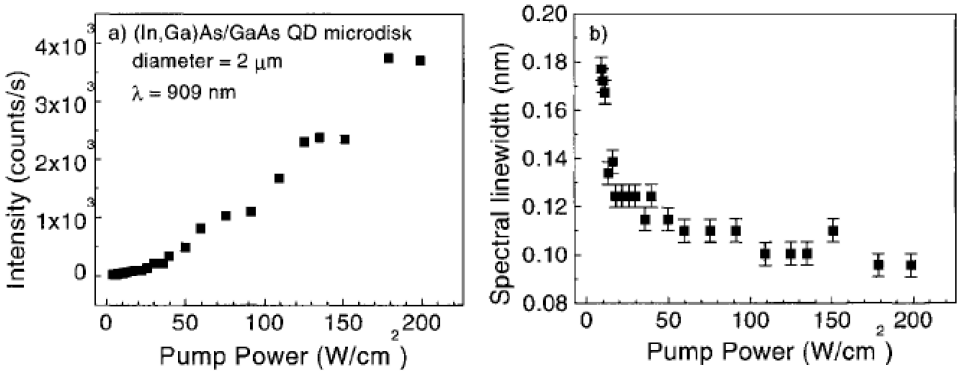


FIGURE 4.5 – Evolution des largeurs de raies et de l'intensité en fonction de la puissance de pompe (Michler et al [106]).

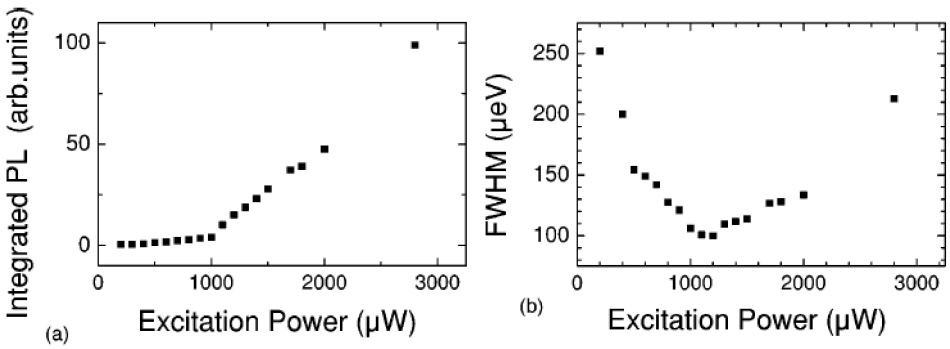


FIGURE 4.6 – Evolution de l'intensité et des largeurs de raie en fonction de la puissance de pompe (Peter et al [124]).

4.1.4 Limites des microdisques suspendus

Pour la réalisation d'un microlaser, la géométrie microdisque suspendu souffre de deux limitations. La première est liée à la mauvaise évacuation thermique par le piedestal de petit diamètre. Ainsi, Thiyagarajan et al [150] calculent une différence de plus de 90°C entre le substrat et les flancs du disque pour une puissance de pompage de l'ordre de 10 mW. Les mesures de Gayral

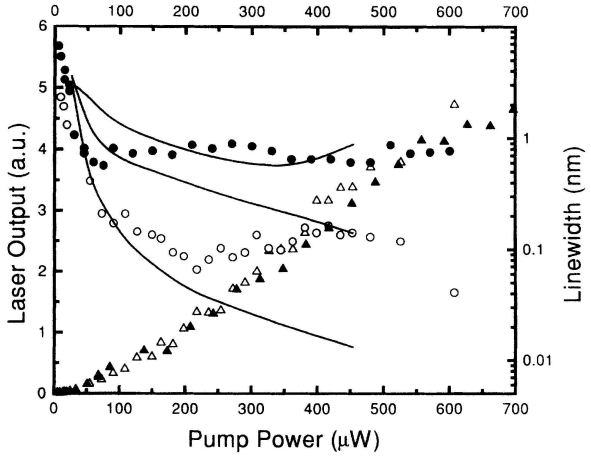


FIGURE 4.7 – Evolution des largeurs de raies expérimentales (cercles) et théoriques (traits) en fonction de la puissance de pompe et évolution de la puissance laser (triangles) pour des diamètres de 2.2μm et 5μm [109].

et al [54] fournissent une signature expérimentale de cet échauffement en montrant un décalage significatif vers le rouge des modes de galerie lorsque la puissance de pompage augmente. Ce décalage est lié à une augmentation de l'indice de réfraction due à une diminution du gap suite à l'élévation de la température. L'énergie de résonance du mode est ainsi très sensible à la température de la cavité.

Pour améliorer la dissipation thermique, Levi et al [150] ont intégré un microdisque directement sur un substrat saphir. Cependant, cette géométrie est très mal adaptée au pompage électrique du fait du caractère isolant du saphir. Plus récemment, Peter et al. ont réalisé des disques reposant sur un pied d'AlOx de même diamètre que le disque [124]. Toutefois, le problème de l'injection électrique se pose également. De plus, étant donné la conductivité thermique de l'AlOx, on s'attend à des meilleurs résultats avec un pied en AlGaAs [11] celle-ci étant meilleure que celle d'un pied de petite section ou d'une couche d'AlOx, d'oxyde amorphe.

Une seconde difficulté soulevée par cette géométrie est l'injection électrique efficace des porteurs dans la zone active du dispositif, c'est à dire la périphérie du disque. Fujita et al [50] montrent un régime laser avec un microdisque pompé électriquement pour un courant de seuil record pour un laser à semiconducteur de $\sim$140 μA (figure 4.8). Cependant la structure est loin d'être optimale puisque le seuil laser expérimental est 10 fois supérieur au seuil théorique, cette différence pouvant s'expliquer par des pertes de l'injection puisqu'on n'injecte pas directement dans la circonférence du disque. De plus, la réalisation technologique de la structure est délicate. Nous allons voir dans la suite que la géométrie micropilier permet de dépasser ces deux limitations.

4.2 Des modes de galerie dans les cavités micropiliers

Nous considérons ici des cavités à micropilier cylindrique plus communément étudiés pour leurs modes résonants longitudinaux analogues à ceux d'une cavité de type Fabry-Pérot. Nous ne nous intéressons pas ici à ces modes optiques [57] mais aux modes de galerie supportés par

11. Conductivités thermiques : AlOx $\sim$1.4 W.m^{-1}.K^{-1}, GaAs $\sim$55 W.m^{-1}.K^{-1}, AlAs $\sim$91 W.m^{-1}.K^{-1}, AlGaAs $\sim$12.5 W.m^{-1}.K^{-1} et saphir $\sim$40 W.m^{-1}.K^{-1}.

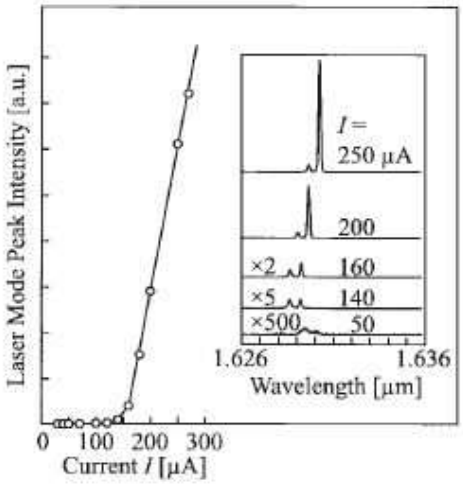


FIGURE 4.8 – Evolution de l'intensité en fonction de la puissance injectée et spectres de luminescence du mode observé à 298K (Fujita et al [50]).

cette cavité [7], [120]. Nous comparerons aussi leurs propriétés à celles des modes de galerie dans les microdisques.

4.2.1 Micropiliers à modes de galerie

Une cavité micropilier AlGaAs est typiquement composée d'un espaceur de GaAs, d'épaisseur optique d'une - ou de plusieurs - longueur(s) d'onde(s), entouré par deux miroirs de Bragg composés d'alternances de couches d'AlAs et de GaAs d'épaisseur $\lambda/4$. Ces cavités confinent la lumière dans les 3 directions de l'espace : la lumière est confinée verticalement par les miroirs et latéralement par guidage réfractif. Toutefois, cette géométrie est également susceptible de supporter des modes de galerie. En effet, pour la lumière se propageant dans le plan de la cavité centrale de GaAs, les miroirs de Bragg apparaissent comme un milieu d'indice moyen plus faible ($\langle n \rangle_{AlGaAs} \sim 3.2$) et donc assurent un confinement réfractif. Comme dans un microdisque, la réflexion totale interne à l'interface semiconducteur-air assure le confinement latéral du mode de galerie.

Pour autant, jusqu'à très récemment, les micropiliers étaient uniquement étudiés pour leurs résonances longitudinales. C'est en 2007 que des modes de galerie dans des micropiliers ont été observés de façon assez inattendue au sein de notre équipe [120] et simultanément par Astratov et al [7]. Cette découverte relativement tardive est liée à 2 raisons. En premier lieu, les micropiliers ont généralement une hauteur de 5 à 6 μm, l'état de surface est devenu compatible avec l'observation de modes de galerie à hauts facteurs de qualité grâce aux progrès de la gravure qui ont permis une progression des facteurs de qualité de 5000 en 1998 (Gérard et al [61]) à 150000 en 2007 (Reitzenstein et al [130]). De plus, le diagramme de rayonnement associé aux modes de galerie est émis préférentiellement par la tranche, c'est à dire dans l'axe perpendiculaire au pilier. Si on réalise une expérience avec des micropiliers, la lumière est collectée par le haut, le signal est alors dominé par l'émission des boîtes quantiques dans les modes strandard du micropilier.

Pour un micropilier, le contraste d'indices suivant z est plus faible que dans les microdisques suspendus dans l'air. Le confinement suivant z et donc la structure modale sont modifiés. Pour modéliser ces modes optiques, Y.R. Nowicki-Bringuier [119] a utilisé la "méthode de l'indice

effectif" qui permet de séparer le problème du confinement vertical de celui du confinement latéral. Pour illustrer la différence entre microdisques et micropiliers, nous pouvons comparer leurs profils d'intensités calculés [119]. Sur la figure 4.9, nous voyons nettement une extension du champ plus importante suivant z dans le cas du micropilier, due au plus faible confinement selon z. Globalement, à diamètre identique, un mode de galerie dans un micropilier présente un volume modal deux fois plus élevé.

Toutefois, ce désavantage est largement compensé par la présence d'un pied aussi large que la cavité de GaAs, assurant pour le micropilier une meilleure conductivité thermique que pour un pied de petite section ou d'une couche d'AlOx.

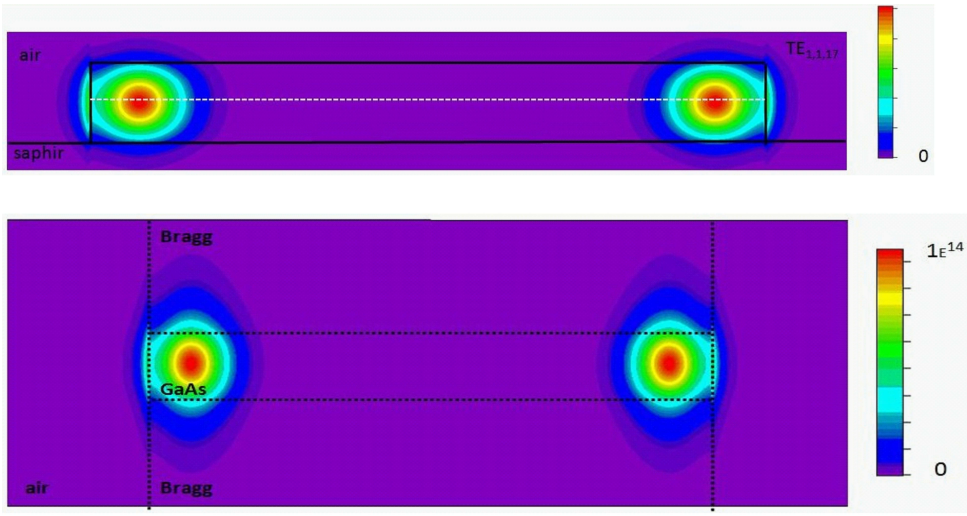


FIGURE 4.9 – Profils d'intensité du champ électromagnétique selon une coupe suivant l'axe z. Il s'agit du mode $TE_{1,1,17}$ pour un disque et un pilier de 4μm de diamètre.

4.2.2 Description de l'échantillon étudié

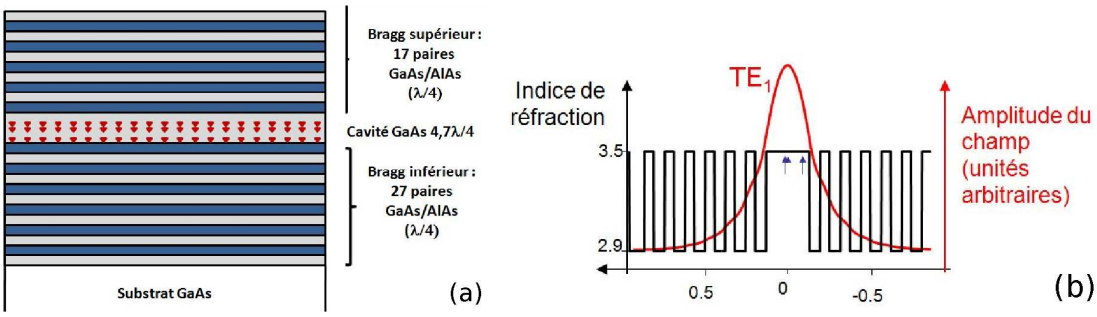


FIGURE 4.10 – (a) Schéma de la cavité planaire utilisée, (b) intensité du champ en fonction de la position le long du pilier pour le mode résonant TE_1 (en rouge), profil d'indices (en noir), les flèches représentent les positions des plans de boîtes dans la cavité.

L'échantillon étudié a été fabriqué à partir d'une couche planaire obtenue par épitaxie par jets moléculaires. Celui-ci est composé de deux miroirs de Bragg AlAs/GaAs composés respectivement de 17 et 27 paires d'épaisseurs $\lambda/4n$ pour les miroirs supérieurs et inférieurs. La cavité

présente une épaisseur de $4.7\lambda/4n$, celle-ci avait été définie au départ pour un autre type d'expérience (figure 4.10). L'énergie du mode résonant de cette cavité planaire se situe vers 1.35 eV à température ambiante, le facteur de qualité théorique est de 4.10^4. Au sein de cette cavité, on a placé 3 plans de boîtes quantiques InAs, insérés respectivement à 10 nm de part et d'autre du centre de la cavité et un à 20 nm du miroir inférieur.

La gravure des piliers de diamètres compris entre 0.5 μm et 4 μm a été réalisée, en collaboration avec l'équipe de Reitzenstein de l'université de Würzburg, par dépôt d'un masque de nickel puis une attaque par gravure via un plasma de $SiCl_4$ excité par résonance cyclotron.

Pour connaître les caractéristiques spectrales des boîtes quantiques insérées, nous avons enregistré le spectre de microphotoluminescence à basse puissance de pompe (figure 4.11). L'émission des boîtes s'étend approximativement de 920 à 1020 nm et la distribution de boîtes est centrée autour de 970 nm.

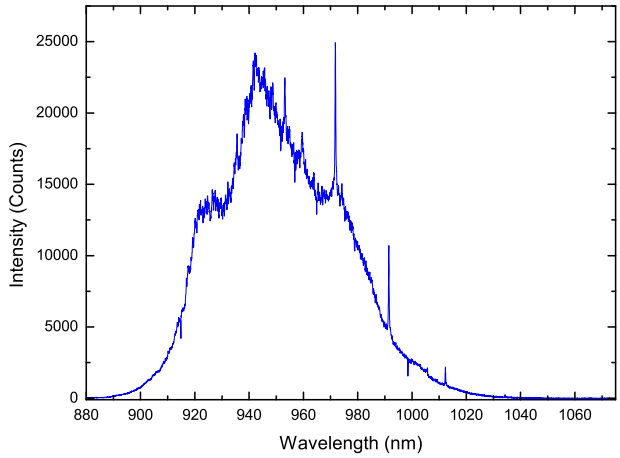


FIGURE 4.11 – Spectre de luminescence des boîtes quantiques obtenu à faible puissance, un filtre à 900nm coupe le laser et donc la distribution.

4.2.3 Mesures préliminaires

Les modes de galerie ont été observés pour la première fois durant la thèse de Y.R. Nowicki-Bringuier, sur l'échantillon à micropiliers décrit au paragraphe précédent. Durant les expériences de micro-photoluminescence, l'excitation et la collection de la luminescence étaient réalisées dans une géométrie verticale. C'est la présence d'un masque dur de nickel au sommet des piliers (lié à un défaut de fabrication lors de la gravure) qui nous a permis d'observer les modes de galerie (figure 4.12). La présence du nickel permet de masquer les modes de pilier longitudinaux [119], [120] et surtout de limiter l'intensité du fond de luminescence lié aux boîtes quantiques. On bénéficie alors d'un meilleur rapport signal sur bruit pour mettre en évidence la faible fraction du signal associée aux modes de galerie émis vers le haut. Nous avons également vérifié que lorsque le masque de Ni est retiré, les modes de pilier sont visibles. On notera que les modes de galerie sont toujours visibles après le retrait du masque (encart figure 4.12) mais avec un faible rapport signal sur bruit.

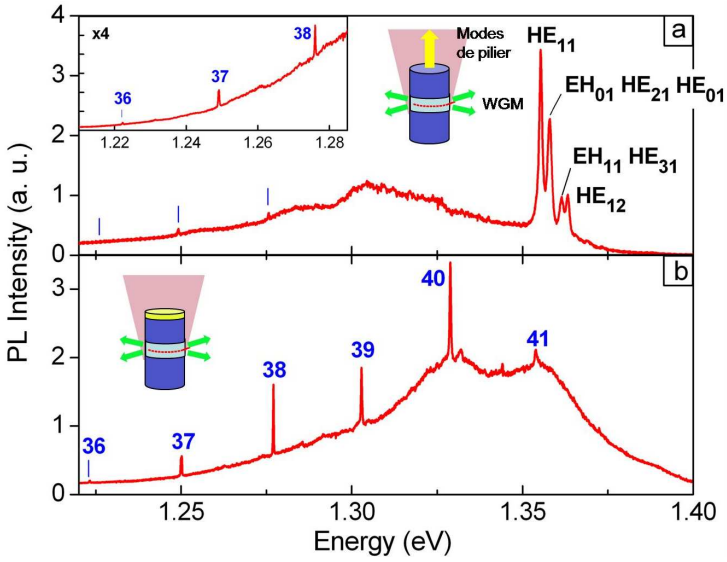


FIGURE 4.12 – Spectres de μ-photoluminescence à 4K obtenus après (a) et avant (b) retrait du masque de Ni.

Une première étude qualitative sur l'effet laser de ces modes a été réalisée au cours de la thèse de Y.R. Nowicki-Bringuier. Cette étude a permis d'observer un seuil laser élevé ($\sim$ 100 mW), lié à une excitation inefficace des boîtes quantiques. Dans une géométrie de collection/excitation verticale, en présence du masque de Ni, l'excitation des boîtes a en effet lieu par les flancs et seule une faible fraction du spot d'excitation est efficace. Notons que dans cette géométrie, le signal collecté est lui aussi faible. Dans la section suivante, nous présentons les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse, en utilisant une configuration expérimentale plus favorable à cette étude.

4.3 Effet laser dans un micropilier à modes de galerie

4.3.1 Configuration expérimentale

Pour améliorer à la fois l'excitation des boîtes et la collection des modes nous avons changé la géométrie de l'expérience en inclinant à 45° notre échantillon dans le cryostat (figure 4.13). Cette géométrie inclinée est plus sensible aux vibrations, nous avons donc amélioré la stabilité mécanique du montage en changeant notamment le support de l'objectif de microscope.

En ce qui concerne la longueur d'onde d'excitation, nous avons choisi d'exciter en résonance avec la couche de mouillage à 845 nm (1.47 eV). Dans ce cas, le GaAs et l'AlAs sont transparents, ce qui permet d'exciter les boîtes quantiques de manière à peu près homogène.

Le spot d'excitation laser ayant un diamètre de l'ordre de 4-5 μm, on peut estimer le pourcentage de lumière injectée dans le milieu à gain à quelques pourcents. Dans la suite de ce manuscrit, vu les incertitudes sur cette estimation, nous donnerons les résultats en fonction de la puissance lumineuse du spot d'excitation, mesurée au puissancemètre.

Observation des modes de galerie

Grâce à cette nouvelle configuration d'excitation, nous avons pu réaliser une étude plus précise des modes de galerie dans les micropiliers. Sur la figure 4.14, nous observons les spectres

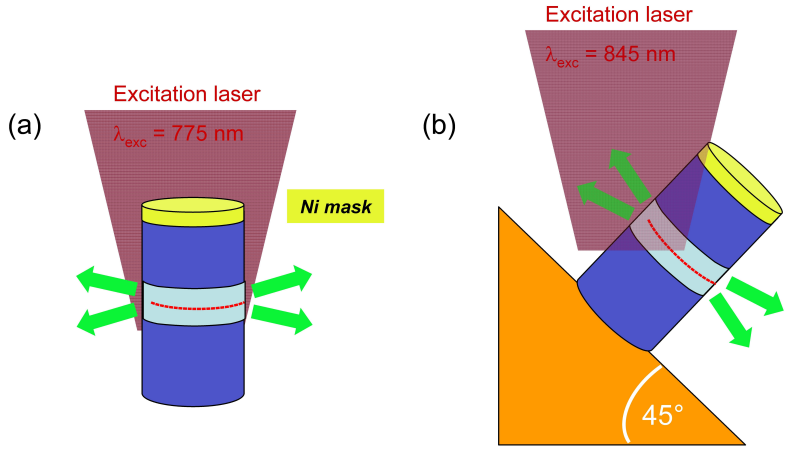


FIGURE 4.13 – Schéma de la configuration expérimentale (a) ancienne, utilisée pour les premières études de modes de galerie et (b) nouvelle position d'excitation de l'échantillon.

de microphotoluminescence à 4K pour trois micropiliers de diamètres 3.2 (a), 3.28 (b) et 3.38 μm (c) pour plusieurs puissances de pompe. Pour chacune de ces puissances, les spectres sont dominés par une série de raies fines et régulièrement espacées en énergie : ce sont les modes de galerie.

Pour une structure idéale, la théorie prévoit des modes doublement dégénérés en énergie, avec des valeurs opposées de l'indice azimutal m. Les valeurs $\pm m$ correspondent en fait à des modes contrapropageants. Expérimentalement, la plupart des modes sont dédoublés comme le montrent les spectres des modes à haute et basse énergie de la figure 4.15. Cette levée de dégénérescence est vraisemblablement due à des défauts ponctuels (taille sub-λ) qui couplent les modes contrapropageants pour créer 2 modes stationnaires d'énergies différentes et qui sont des combinaisons linéaires des modes initiaux [102]. L'origine de ces défauts n'est pas complètement élucidée : on peut penser à des rugosités sur les flancs des piliers provenant de défauts de fabrication, lors de la gravure notamment. Par ailleurs, comme proposé dans les travaux de Hiremath et al [72], les boîtes quantiques constituent une perturbation de l'indice de réfraction à l'intérieur de la cavité, ce qui pourrait également conduire à la levée de dégénérescence.

Pour étudier plus précisément l'effet laser des modes de galerie dans nos structures, on s'intéresse dans la suite à un pilier de 4 μm (figure 4.15). Sur ce pilier, les modes $TE_{1,1,m}$ sont identifiés en utilisant la théorie de l'indice effectif [120]. Dans la suite, pour analyser les résultats expérimentaux donc l'intensité intégrée, la largeur spectrale et la position de la résonance, les modes sont ajustés par des lorentziennes, une seule pour les modes non dédoublés et deux pour les modes dédoublés.

4.3.2 Evolution de l'intensité intégrée en fonction de la puissance de pompe

L'intensité intégrée des modes en fonction de la puissance incidente (P_{in} - P_{out}) est présentée sur la figure 4.16 [12]. Nous observons un comportement différent suivant les modes. Les deux modes à haute énergie ont un comportement linéaire jusqu'à environ 7 mW, puis l'évolution devient surlinéaire. Ce comportement est typique de l'effet laser, le seuil est alors estimé à 7 mW.

Le mode basse énergie quant à lui, ne montre pas de seuil laser. Il présente un comportement similaire aux boîtes hors résonance, c'est à dire une dépendance linéaire avec la puissance, suivie

12. Par la suite, on notera (a) pour le mode à 1.28 eV, (b) pour 1.30 eV et (c) pour 1.33 eV.

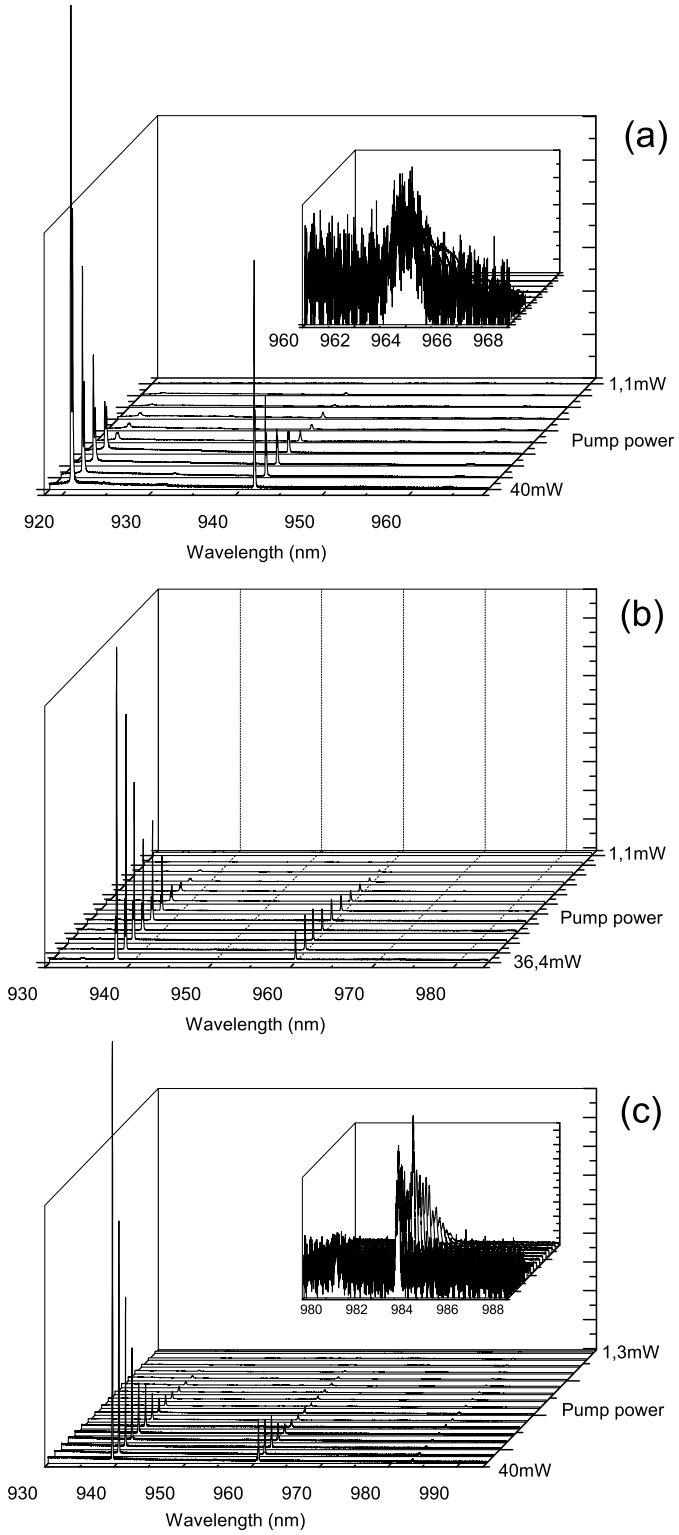


FIGURE 4.14 – Spectres de μ-photoluminescence pour plusieurs puissances de pompe pour des piliers de 3.2μm (a), 3.28μm (b), 3.38μm (c). L'encart correspond à un agrandissement du mode basse énergie.

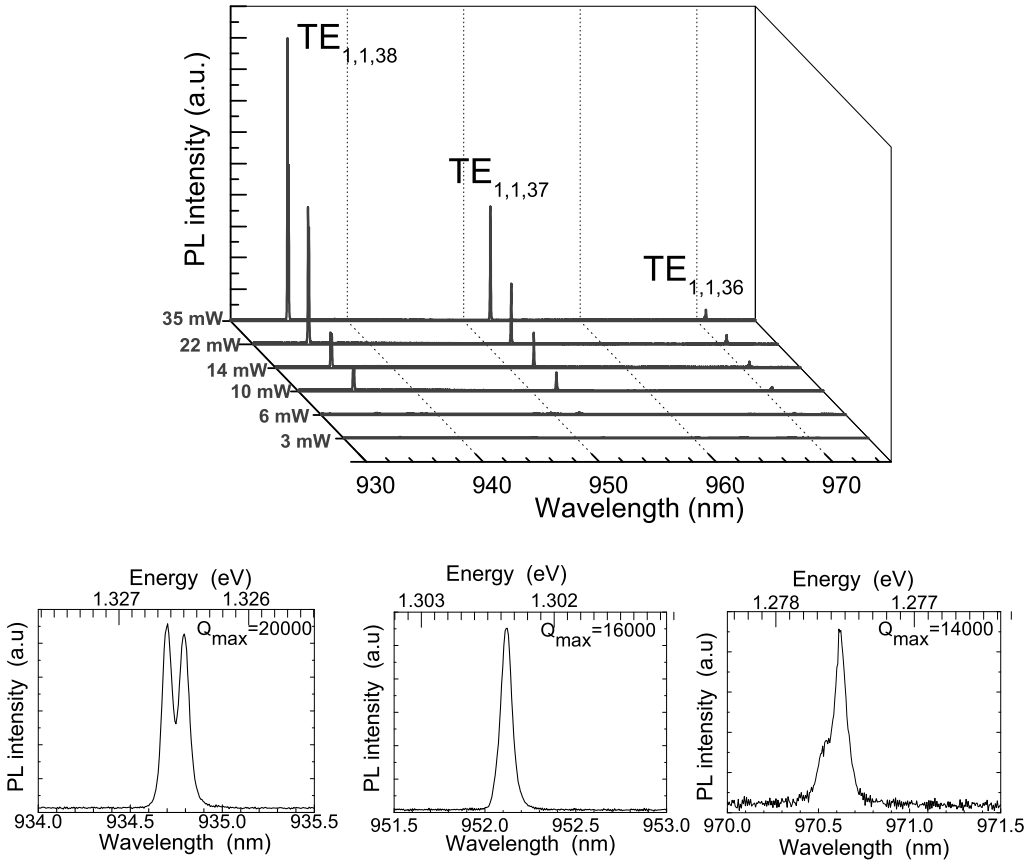


FIGURE 4.15 – Spectres d'un pilier de 4μm à différentes puissance de pompe et zoom des modes $TE_{1,1,m}$ pour P=10.4mW

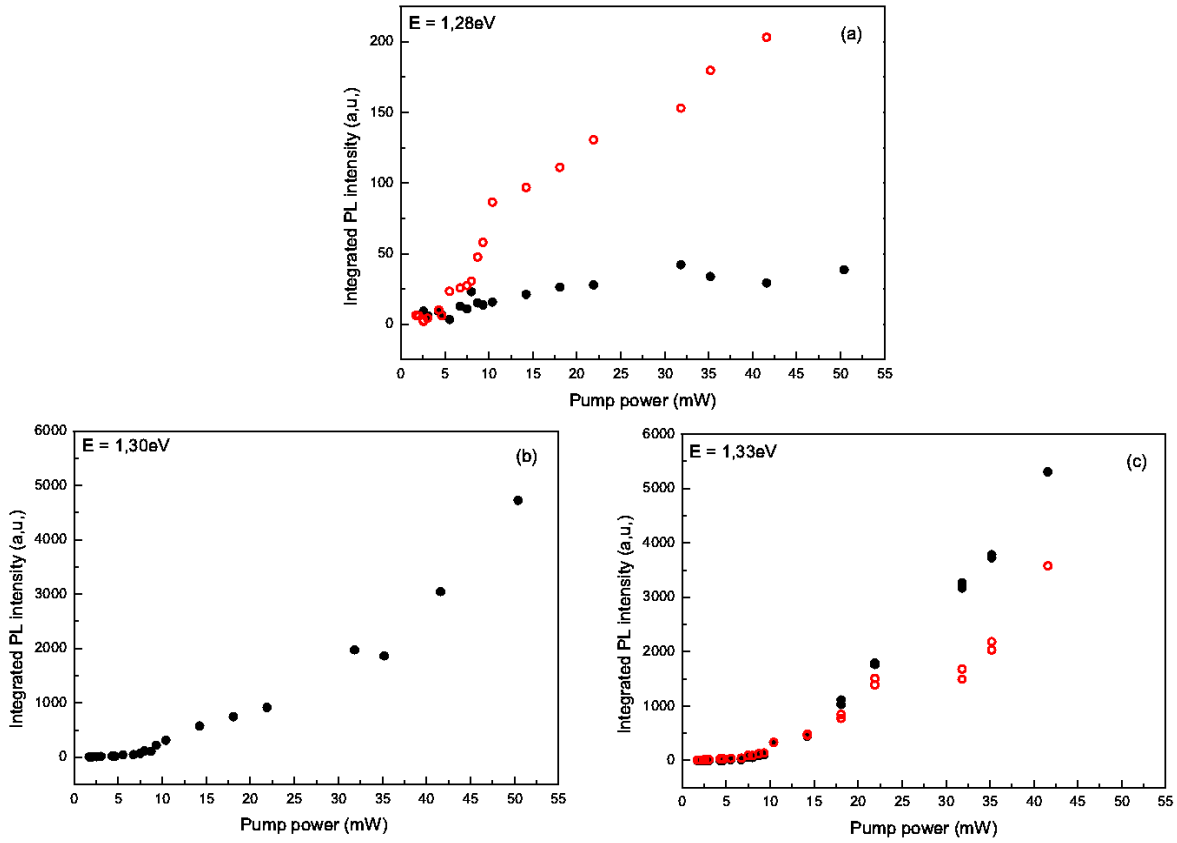


FIGURE 4.16 – Spectres de l'intensité intégrée en fonction de la puissance de pompe à T=5K pour les trois modes du pilier 4μm précédemment cités, du mode basse énergie au mode haute énergie (les points rouges et noirs correspondent aux valeurs respectives des modes dédoublés).

d'une saturation décalée en puissance. A cette longueur d'onde, le gain procuré par les plans de boîtes quantiques n'est pas assez grand pour dominer les pertes optiques associées aux modes de galerie.

Les modes qui lasent sont couplés à la distribution d'états excités des boîtes (figure 4.11). Le mode basse énergie est, quant à lui, couplé à la transition fondamentale des boîtes et ne lase pas [13].

4.3.3 Largeur spectrale

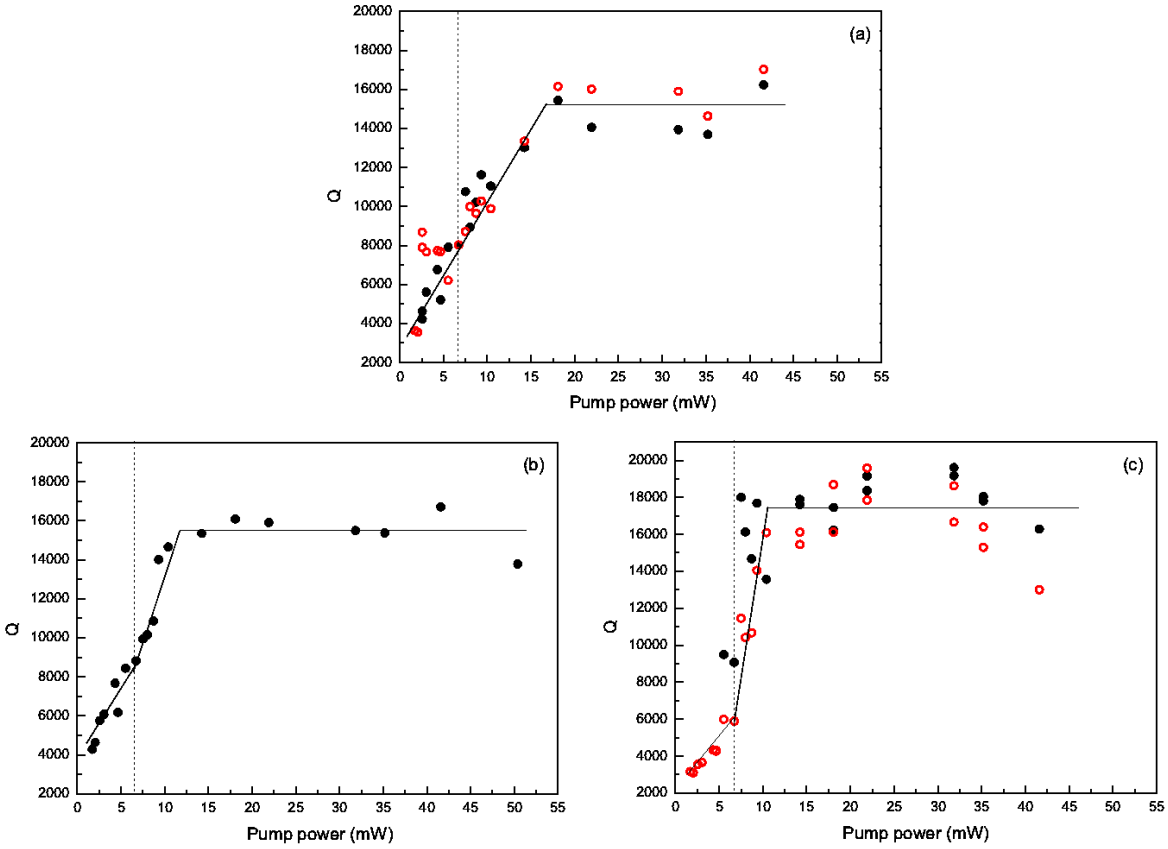


FIGURE 4.17 – Evolution du facteur de qualité en fonction de la puissance de pompe à T=5K pour les trois modes du pilier 4 μm précédemment cité, du mode basse énergie au mode haute énergie. Les droites sont là pour guider l'oeil.

Mode non-lasant : L'étude de ce mode "non-lasant" (figure 4.17(a)) permet d'estimer le facteur de qualité Q_c des modes de galerie uniquement lié aux pertes optiques.

Pour ce mode, nous observons une augmentation du facteur de qualité dans un premier temps, suivie d'une saturation. Le blanchiment de l'absorption des boîtes quantiques conduit à un affinement du mode, notons que cela reste valable dans le cas d'un mode "non-lasant" et

13. Une densité de boîtes quantiques plus grande permettrait de déclencher un effet laser avec les niveaux fondamentaux.

"lasant". Ce mode ne présentant pas de déclenchement d'effet laser on peut attribuer l'affinement uniquement au blanchiment des boîtes. Au delà de $P = 15$ mW, la valeur du facteur de qualité se stabilise vers 15000.

Globalement, le facteur de qualité augmente avec P jusqu'à saturer (figure 4.17). En régime de faible perte, on peut alors écrire le facteur de qualité expérimental comme une somme des différentes contributions :

$$Q^{-1} = Q_c^{-1} + Q_{em}^{-1}(P) \tag{4.1}$$

Le terme $Q_{em}(P)$ rend compte de l'absorption et de l'émission stimulée liées au milieu actif. On peut différencier deux régimes, la limite basse et haute puissance.

– Dans la limite basse puissance, le facteur de qualité exprérimental peut s'écrire :

$$Q^{-1}(P = 0) = Q_c^{-1} + Q_{abs}^{-1} \tag{4.2}$$

L'absorption des boîtes diminue le facteur de qualité.

– Dans la limite haute puissance, le facteur de qualité expérimental peut s'écrire :

$$Q^{-1}(P = \infty) = Q_c^{-1} - Q_{abs}^{-1} \tag{4.3}$$

Le facteur de qualité est amélioré par l'émission stimulée.

On voit aussi que la mesure du facteur de qualité à basse et haute puissance de pompage permet d'extraire le facteur de qualité de la cavité nue.

$$Q_c = \frac{2}{Q^{-1}(P = 0) + Q^{-1}(P = \infty)} \tag{4.4}$$

On trouve alors une valeur du facteur de qualité de la cavité nue $Q = 5000$.

Modes lasants : Nous nous intéressons maintenant aux deux autres modes "lasants" (figure 4.17(b) et (c)), nous observons une évolution du facteur de qualité en trois parties : une augmentation linéaire puis une augmentation surlinéaire et enfin un plateau. Sous le seuil, l'affinement est dû au blanchiment des boîtes. Au seuil, l'émission stimulée devient prédominante, on attend un affinement spectral et donc une augmentation du facteur de qualité, comme le prédit la loi de Schawlow-Townes [139].

Expérimentalement, le facteur de qualité augmente rapidement après le seuil puis sature à une valeur 4 fois supérieure à sa valeur au seuil puis celui-ci reste constant jusqu'à une puissance $P=6P_{th}$. Au delà de cette valeur, on a observé une augmentation de la largeur de raie. Comme on va le voir dans la partie suivante cette diminution du facteur de qualité est corrélée à l'apparition d'un décalage vers le rouge du pic d'émission, signe d'un échauffement de la structure.

4.3.4 Evacuation thermique

Pour estimer l'efficacité de nos microlasers en terme d'évacuation thermique, nous nous intéressons au décalage spectral des modes en fonction de la puissance de pompe, lui-même très dépendant de l'indice de réfraction de la cavité. Dans notre cas, quelque soient les modes, cette évolution se fait en trois parties. Nous observons d'abord un décalage spectral vers le bleu puis, un plateau suivi d'un décalage spectral vers le rouge (figure 4.18). Le décalage vers le bleu est attribué à l'augmentation de la concentration des porteurs libres dans la couche de mouillage. Le décalage vers le rouge est, quant à lui, dû à une élévation de la température qui abaisse le gap du semiconducteur et donc augmente l'indice optique de la cavité.

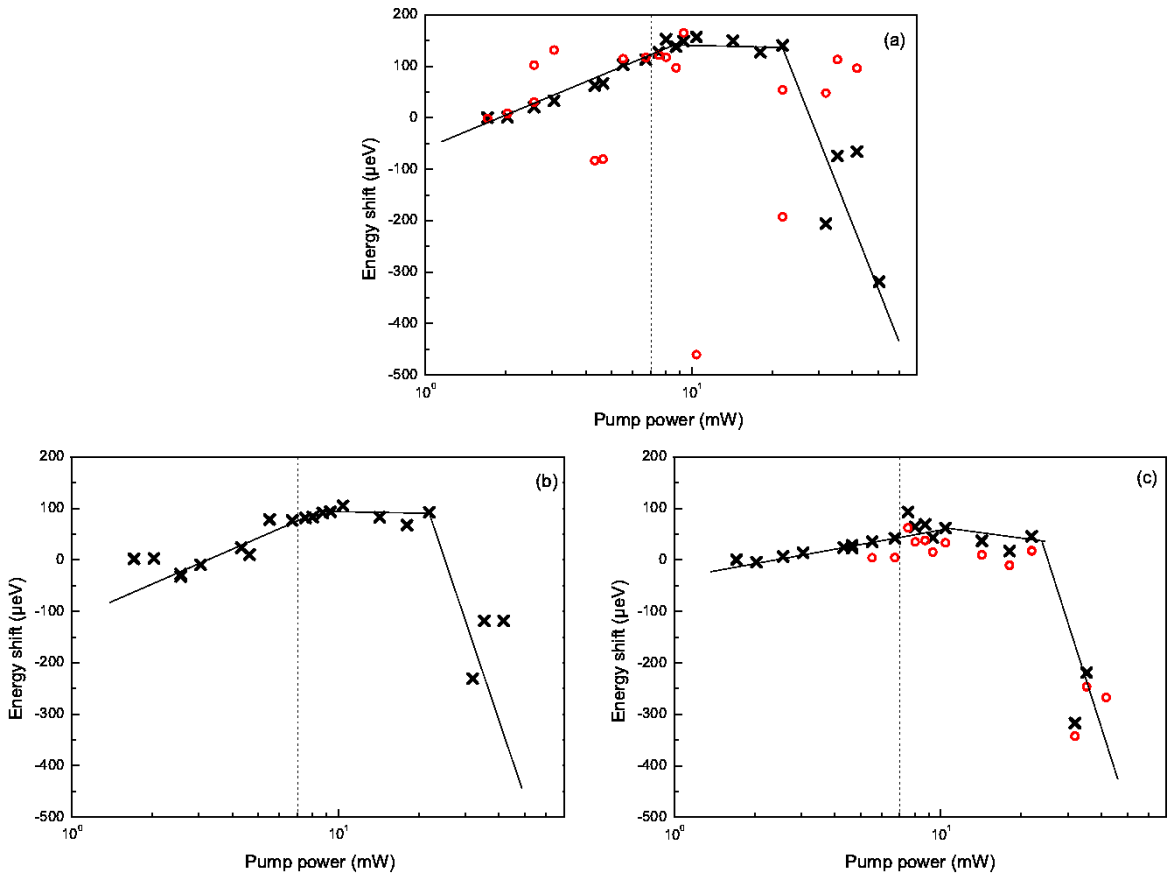


FIGURE 4.18 – Décalage en énergie des modes $TE_{1,1,m}$ du pilier 4μm étudié en fonction de la puissance à 5K.

Pour expliquer la présence du plateau entre ces deux régimes on peut émettre deux hypothèses. On peut supposer un début d'échauffement. La variation de l'énergie de gap en fonction de la température n'est pas linéaire, elle varie lentement à basse température (figure 4.19). On peut donc penser à un régime de compensation entre les effets de porteurs libres et un début d'échauffement du système. La seconde hypothèse envisageable est un augmentation de la vitesse de capture des porteurs. Le décalage vers le bleu étant directement liée aux nombres de porteurs libres dans la couche de mouillage, si ceux-ci saturent, on observera un effet de saturation du décalage vers le bleu.

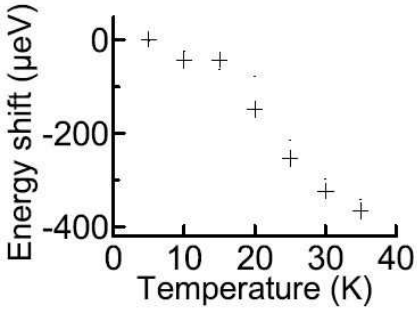


FIGURE 4.19 – Décalage de l'énergie en fonction de la température.

Afin de quantifier l'échauffement du système, nous avons mesuré le décalage spectral des modes à différentes températures du cryostat, à faible puissance de pompage. En traçant l'énergie du mode en fonction de la température entre 5 et 50 K (figure 4.19), nous estimons l'augmentation de la température du pilier inférieur à 15 K pour une puissance inférieure à trois fois la puissance du seuil laser. Le point de plus haute puissance mesurée, c'est à dire $P=6P_{seuil}=40$ mW, correspond à une élévation de température de 35 K.

Il est maintenant intéressant de situer nos résultats par rapport à la littérature. Prenons le cas des cristaux photoniques, Bordas et al [21] observent une dégradation des facteurs de qualité et un décalage spectral vers le rouge au seuil laser (figure 4.20). Le système s'échauffe donc rapidement au dessus du seuil, ceux-ci sont de très mauvais candidats en terme d'évacuation thermique. Dans les microdisques, une première étude de Gayral et al [54] montre un décalage vers le rouge à forte puissance traduisant un échauffement de la structure.

4.3.5 Températures de fonctionnement

Il est maintenant naturel de s'intéresser aux performances de nos microlasers à plus haute température. Nous observons un effet laser jusqu'à une température d'environ 100 K avec un seuil plus élevé (figure 4.21). Nous n'avons pas pu faire une analyse précise des modes à ces températures du fait du mauvais rapport signal sur bruit à cette température. Nous pouvons quand même estimer des seuils laser quatre à cinq fois supérieurs.

L'augmentation de la température a plusieurs conséquences néfastes sur le seuil laser. D'une part elle conduit à l'ionisation des boîtes par activation thermique et donc diminue le gain. Pour obtenir une meilleure tenue en température des boîtes on peut optimiser le potentiel de confinement [78]. D'autre part, l'élévation de la température augmente les taux de recombinaison non-radiatifs, notamment aux interfaces. Ceci rend le pompage moins efficace. Ces deux effets ont pour conséquence d'augmenter le seuil laser.

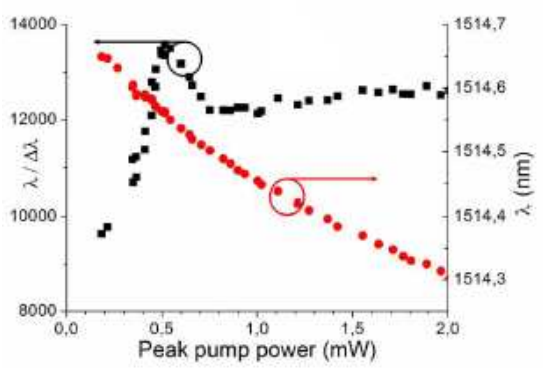


FIGURE 4.20 – Evolution du facteur de qualité et de la longueur d'onde en fonction de la puissance de pompe dans un cristal photonique (Bordas et al [21]).

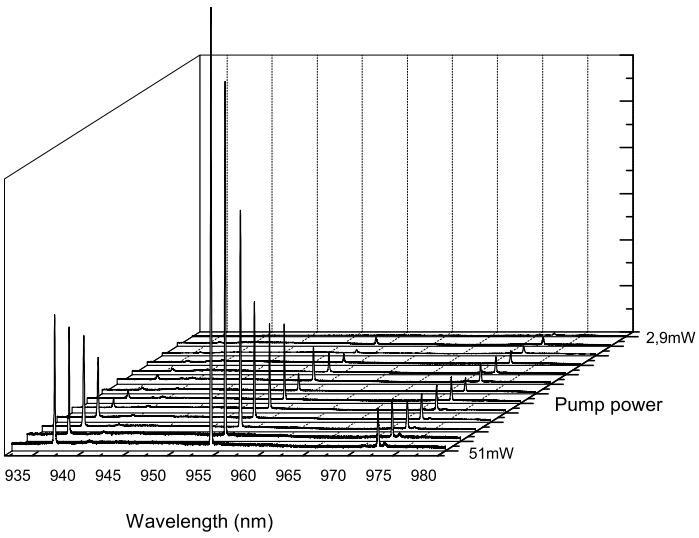


FIGURE 4.21 – Spectre du pilier de 4μm pour une puissance de pompe allant d'environ 3mW à 60mW pour une température de 100K.

En ce qui concerne les microdisques, un effet laser a déjà été observé à 300 K avec des boîtes quantiques d'InAs [78], [79]. Ces études montrent un seuil laser relativement stable jusqu'à 200 K. Au dessus de cette température, on observe une violente augmentation du seuil (dix fois supérieur) attribuée aux recombinaisons non radiatives et à l'absorption des porteurs libres. Il est intéressant de noter l'étude de Thiyagarajan et al [150] sur des microdisques présentant un déclenchement de l'effet laser via un pompage électrique à température ambiante. Constatons que l'étude citée précédemment sur les cristaux photoniques par Bordas et al [21], montrant un effet laser, a été réalisée entièrement à température ambiante grâce aux faibles recombinaisons non radiatives de surface InAs/InP.

4.4 Modèle théorique

Pour analyser plus en détail les caractéristiques des microlasers, nous avons utilisé un modèle où les boîtes quantiques sont modelisées comme un système à deux niveaux. La description du modèle résume la section correspondante de la référence [99]. A la fin de cette partie, nous examinerons aussi l'apport d'un modèle plus complexe, qui prend en compte les états excités supérieurs de la boîte quantique.

4.4.1 Modèle à deux niveaux

Description et équations bilan

En première approche, les boîtes quantiques sont décrites comme un système à deux niveaux : vide ou contenant une paire électron-trou piégée (état noté 1). On suppose que la cavité optique supporte un seul mode résonant et on note N_t le nombre total de boîtes couplées à ce mode. On note N_0 et N_1 le nombre de boîtes respectivement dans l'état vide et dans l'état excité. Le taux d'émission spontanée des boîtes est noté Γ et β est la fraction de photons issus de ce processus émis dans le mode de cavité. On note enfin n_ϕ le nombre moyen de photons dans ce mode et Γ_ϕ le taux de pertes optiques de la cavité vide. En négligeant les corrélations entre la population des boîtes et le nombre de photons dans la cavité, on peut décrire l'évolution du système par un jeu d'équations de bilan appelées "équations à taux de population" [18], [164], [165], [166]. Cette approche est notamment valide tant que le nombre N_t d'émetteurs couplés au mode est grand devant 1.

La population du niveau excité évolue suivant plusieurs processus d'intéraction matière-rayonnement : ils sont illustrés par les schémas 4.22 et sont détaillés ci-dessous :

(a) La boîte quantique est initialement dans l'état fondamental, le processus de pompage fait passer celle-ci dans son état excité avec un taux P_{in}.

(b) La désexcitation de la boîte par émission spontanée : elle passe de l'état excité à son état fondamental en émettant un photon. Une fraction β de ces photons est émise dans le mode de cavité.

(c) Si la boîte quantique est initialement vide, elle peut alors absorber un photon de la cavité et passer dans l'état excité avec un taux $\beta\Gamma n_\phi$.

(d) Le processus d'émission stimulée, induit par un photon de la cavité, fait revenir la boîte, initialement excitée, dans son état fondamental. La recombinaison s'accompagne de l'émission d'un photon dans le mode de cavité, identique au photon incident. Le taux associé à ce processus est $\beta\Gamma n_\phi$.

En prenant en compte ces différents processus, l'évolution des populations N_1 (boîtes dans

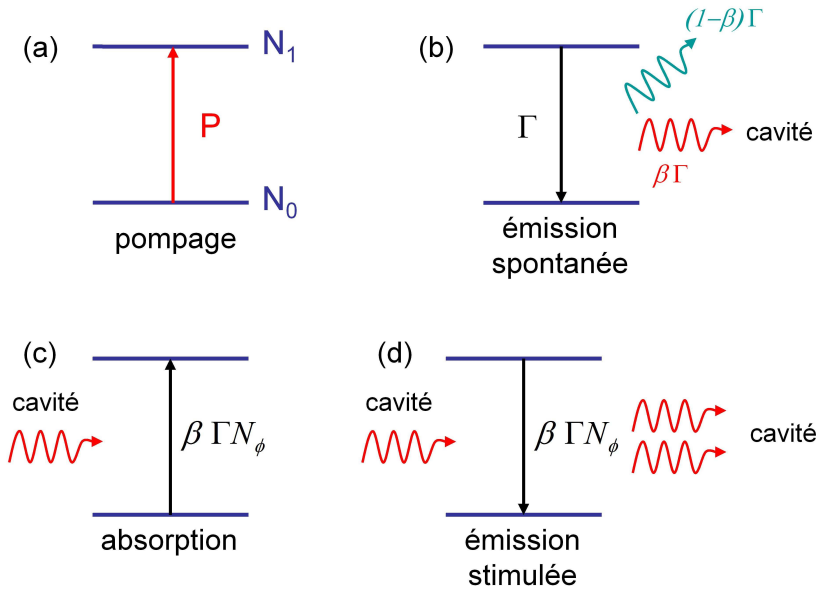


FIGURE 4.22 – Schémas des processus élémentaires pris en compte dans les équations de taux.

l'état excité) et N_ϕ (photons dans le mode de cavité) vérifient alors les équations de taux suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= P_{in} - \Gamma N_1 - \beta\Gamma\left(N_1 - N_0\right) n_\phi \\ \frac{dn_\phi}{dt} &= \beta\Gamma N_1 + \beta\Gamma\left(N_1 - N_0\right) n_\phi - \Gamma_\phi n_\phi. \end{aligned} \tag{4.5}$$

Dans la suite, nous nous intéressons au régime stationnaire, pour lequel les dérivées temporelles apparaissant dans les équations 4.5 sont nulles. On en déduit alors les populations électroniques et la population du mode de cavité :

$$\begin{aligned} \frac{N_1}{N_t} &= \frac{1}{2}\frac{1+2\xi}{1+2n_\phi}\frac{n_\phi}{\xi} \\ P_{in} &= \frac{\Gamma_\phi}{\beta}\left[1+2\xi+2\beta\left(n_\phi-\xi\right)\right]\frac{n_\phi}{1+2n_\phi}. \end{aligned} \tag{4.6}$$

Le paramètre $\xi = \beta\Gamma N_t/2\Gamma_\phi$ apparaissant dans ces relations représente le nombre moyen de photons dans la cavité, issus de l'émission spontanée, à la transparence du milieu ($N_1 = N_0 = N_t/2$).

Seuil du laser

Le seuil du microlaser est atteint lorsque $n_\phi = 1$, soit pour un taux de pompage :

$$P_{\text{th}} = \frac{\Gamma_\phi}{3\beta}\left[1+2\xi+2\beta(1-\xi)\right], \tag{4.7}$$

La fraction de boîtes excitées correspondante vaut alors :

$$\frac{N_{1,th}}{N_t} = \frac{1}{2}\frac{2+1/\xi}{3}. \tag{4.8}$$

Si $\xi > 1$, on constate que le seuil laser est atteint sous le seuil de transparence, c'est à dire avant que le milieu atomique ne soit inversé ($N_1/N_t > 1/2$). On parle alors de laser "sans inversion". Ceci est possible si une fraction importante de l'émission spontanée vient alimenter le mode de cavité. Dans un laser conventionnel, où β est typiquement de l'ordre de 10^{-5}, l'inversion de population est nécessaire pour entrer dans le régime d'oscillation laser. De plus, on déduit de la borne supérieure $N_{1,th}/N_t < 1$ que le système ne peut laser que si ξ excède 1/4.

Comportements asymptotiques

Nous allons maintenant nous intéresser au comportement asymptotique du système, de part et d'autre du seuil. La puissance lumineuse sortant du laser vaut $P_{out} = \Gamma_\phi n_\phi$. Très en-dessous du seuil, on a $n_\phi \ll 1$, d'où les expressions assymptotiques :

$$\begin{aligned} \frac{N_1}{N_t} &= = \frac{1}{\Gamma_\phi}\frac{1+2\xi}{2\xi}\frac{\beta}{1+2\xi(1-\beta)}P_{in} \\ P_{\text{out}} &= \frac{\beta}{1+2\xi(1-\beta)}P_{\text{in}}. \end{aligned} \tag{4.9}$$

La fraction de boîtes excitées, ainsi que le nombre de photons dans le mode de cavité croîssent linéairement avec le taux de pompage. En particulier, la pente de la caractéristique $P_{in} - P_{out}$ est globalement contrôlée par le facteur β, qui peut varier sur plusieurs ordres de grandeur suivant le laser considéré. Si β tend vers 1, tous les porteurs injectés dans le milieu à gain sont convertis en photons du mode de cavité. La pente de la courbe $P_{in} - P_{out}$ tend alors vers 1.

Très au dessus du seuil, on a $n_\phi \gg 1$ et les comportements assymptotiques suivant :

$$\begin{aligned} \frac{N_1}{N_t} &= \frac{1}{2}\frac{1+2\xi}{2\xi} \\ P_{\text{out}} &= P_{\text{in}} \end{aligned} \tag{4.10}$$

Comme le montre la seconde relation, très au-dessus du seuil, tous les porteurs injectés sont convertis en photons du mode de cavité. De plus, la population de boîtes excitées sature à une valeur finie. C'est un résultat habituel pour un laser. Notons toutefois une spécificité du système décrit ici, liée au nombre fini d'émetteurs couplés au mode. Si $\xi < 1/2$, N_1/N_t tend vers une valeur supérieure à 1, ce qui n'a pas de signification physique. Dans ce cas, l'inversion totale du milieu est atteinte pour un taux de pompage fini, au-delà de laquelle la puissance émise par le laser reste constante.

Courbes $P_{in} - P_{out}$

La figure 4.23 montre l'évolution du nombre de photons dans le mode en fonction de la puissance de pompe pour différentes valeurs de β, les autres paramètres étant fixés ($N_t = 7000$, $\Gamma^{-1} = 10^{-9}$ s, $\Gamma_\phi^{-1} = \lambda Q/2\pi c \sim 2.52\ 10^{-12}$ s). Pour $\beta \ll 1$, le passage entre émission spontanée et stimulée est marqué par une forte non-linéarité sur le nombre de photons qui s'accroît au dessus du seuil. Ce passage se traduit par la présence d'une marche abrupte et nette dans la caractéristique (figure 4.23). En revanche, lorsque le couplage de l'émission spontanée au mode laser devient plus efficace, l'amplitude de cette marche diminue et le passage au seuil s'étale

sur une plage de puissance plus large. Dans la limite où β=1, on observe une caractéristique particulière qui conduit à la notion de laser "sans seuil" [165]. Sa caractéristique est parfaitement linéaire, puisque toute paire électron-trou injectée donne un photon dans le mode de cavité que le processus soit spontané ou stimulé. En revanche, il convient de souligner que ce laser n'a pas un seuil nul. En effet, on peut distinguer deux régimes différents suivant le nombre moyen de photons dans le mode : si ce nombre est inférieur à 1, les photons sont émis par émission spontanée, si ce nombre est supérieur, l'émission stimulée domine et le seuil peut alors être défini pour n_ϕ=1.

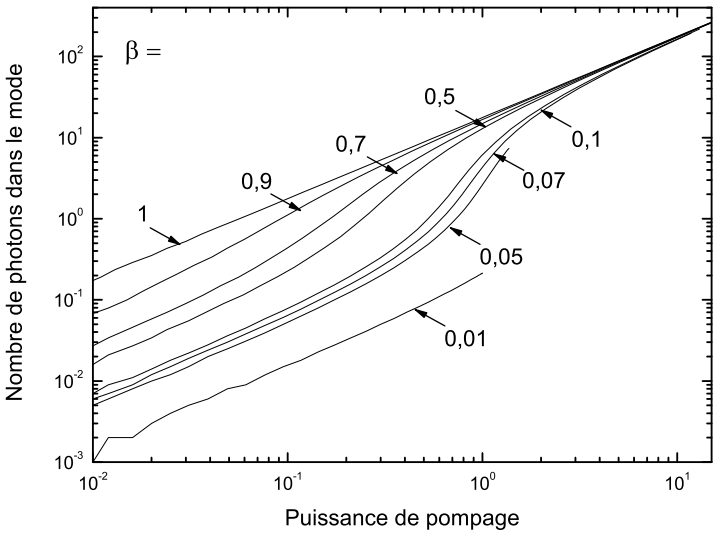


FIGURE 4.23 – Evolution du nombre de photons dans le mode pour plusieures valeurs de β en fonction de P_{in}.

Largeurs de raies

Pour déterminer l'évolution de la largeur de raie ΔE avec le taux de pompage, nous utilisons le résultat de Bjork et al [18] :

$$\Delta E = \hbar \left[\Gamma_\phi - \beta\Gamma(N_1 - N_0)\right]. \tag{4.11}$$

Notons tout de même que les auteurs emploient un modèle légèrement différent du nôtre, avec en particulier un niveau d'absorption constant. Dans notre cas, nous utilisons la même expression, avec N_0 et N_1 qui dépendent tous les deux du taux de pompage. En utilisant les relations 4.6 et 4.11, nous trouvons alors :

$$\Delta E = \hbar\Gamma_\phi \frac{1+2\xi}{1+2n_\phi}. \tag{4.12}$$

A la transparence du milieu ($N_0 = N_1$), on a $n_\phi = \xi$ et la largeur de raie est celle associée à la cavité vide : absorption et émission stimulée se compensent exactement. Comme précédemment, il est également intéressant de considérer les deux cas limites, en dessous et au dessus du seuil

laser. Quand $n_\phi \ll 1$, les boîtes sont toutes dans leur état fondamental et l'émission stimulée est négligable. ΔE est alors donnée par :

$$\Delta E = \hbar\Gamma_\phi(1+2\xi) = \hbar[\Gamma_\phi + \beta\Gamma N_t]. \tag{4.13}$$

A contrario, quand $n_\phi \gg 1$, l'émission stimulée domine et ΔE décroît de manière inversement proportionnelle à n_ϕ, conformément à la prédiction de Schalow-Townes [139] :

$$\Delta E = \hbar\Gamma_\phi \frac{1+2\xi}{2n_\phi}. \tag{4.14}$$

Ajustements aux données expérimentales

La figure 4.24 montre l'ajustement avec le modèle à deux niveaux de la caractéristique $P_{in} - P_{out}$ d'un mode étudié précédemment. On extrait β=0.075 et ξ=0.52 de cet ajustement.

En particulier, la valeur de β peut paraître faible en regard du facteur de Purcell $F_P = 21$ associé au mode (pour ce mode de galerie stationnaire, on a $V_{eff} = 18(\lambda/n)^3$ et $Q = 5000$). Rappellons que cette valeur correspond à un émetteur monochromatique, polarisé linéairement et aligné avec la polarisation du mode, en accord spectral et spatial avec ce dernier. La thèse de B. Gayral [52] détaille comment déterminer un facteur de Purcell effectif pour un ensemble de boîtes (dipôle dans le plan) distribué spatialement et spectralement. Dans le cas discuté ici, le facteur de Purcell moyen $\bar{F}_P$ vaut $0.125 \times F_P \sim 2.6$ (0.5 dipole de la boîte quantique, 0.5 moyennage spatial, 0.5 moyennage spectral). Même en prenant en compte toutes ces corrections, ceci conduit à une estimation de β encore trop élevée.

En fait, les boîtes quantiques InAs pompées de manière non-résonante ne sont monochromatiques que sous faible taux de pompage. Pour les taux de pompage couramment atteints dans les microlasers, Borri et al ont montré que des élargissements homogènes de 10 meV étaient atteints [22]. Sous un fort pompage non-résonant, les porteurs libres présents au voisinage des boîtes induisent un potentiel électrostatique fluctuant, qui élargit en retour la transition de la boîte. Dans ce cas, l'émetteur devient beaucoup plus large spectralement que la cavité et le facteur de qualité de l'émetteur doit être utilisé dans l'expresssion du facteur de Purcell. $\beta = 0.075$ correspond alors à $\bar{F'}_P = 0.08$, soit $F'_P = 0.32$ (pas de moyennage spectral dans ce cas). On en déduit une largeur homogène des émetteurs d'environ 3 meV, ordre de grandeur en accord avec la littérature.

La figure 4.25 montre l'ajustement des largeurs expérimentales avec l'expression 4.12. Pour $P<P_{th}$ on observe un bon accord entre le modèle et les valeurs expérimentales pour $\hbar\Gamma_\phi = 260\ \mu$eV. Pour une forte puissance de pompage, les valeurs expérimentales montrent une saturation et dévient de la loi de Schalow-Townes ($\Delta E \propto 1/n_\phi$) [139].

La compréhension de ce phénomène de saturation nécessite une description plus fine du système. Nous nous bornons ici à donner quelques pistes. Le modèle de Henry et al [70] et étendu aux cas des microlaser par Bjork et al [17] prédit que les fluctuations de l'indice de réfraction associées aux fluctuations de porteurs du gain moyen ajoutent un facteur $(1+\alpha^2)/2$ à la largeur de raie après le seuil laser. Avec $\alpha = \Delta n''/\Delta n'$ où $\Delta n''$ et $\Delta n'$ correspondent respectivement à la variation de la partie imaginaire et réelle de l'indice de réfraction à cause du changement de la densité de porteurs. Cet effet élargit la raie laser mais ne rend pas compte de la saturation. Dans un travail sur des microlasers à puits quantiques, la présence de ce plateau a été expliquée par une description microscopique complète de la dynamique des porteurs [109].

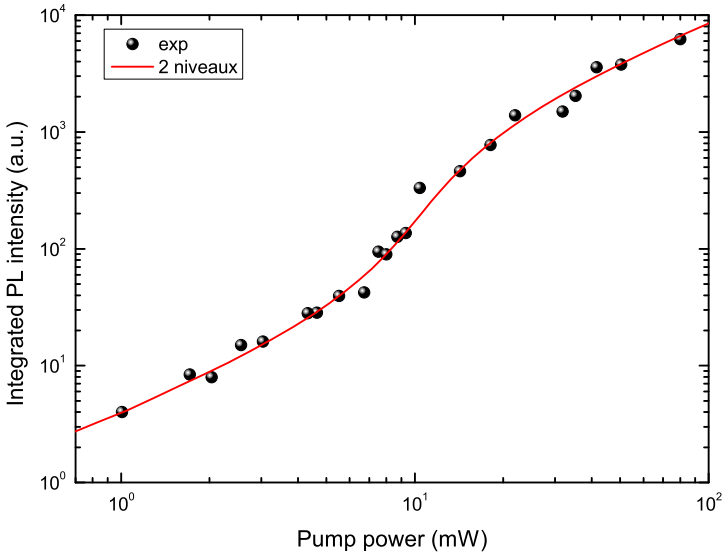


FIGURE 4.24 – Caractéristique P_{in}-P_{out} du mode $TEM_{1,1,38}$ à 5K. L'intensité intégrée expérimentale (points) est ajustée avec le modèle à deux niveaux (rouge).

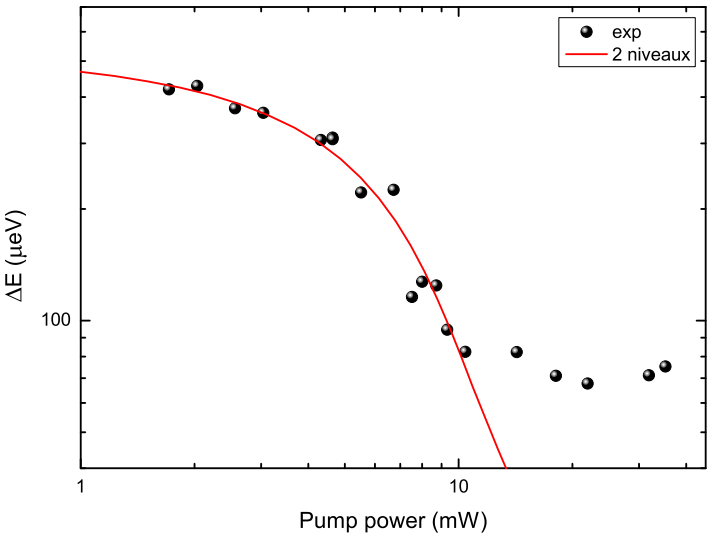


FIGURE 4.25 – Largeurs de raie (points) en fonction de la puissance de pompe. La courbe correspond à la prédiction de notre modèle (équation 4.12).

4.4.2 Extension du modèle à 4 niveaux

Le modèle à deux niveaux détaillé dans la section précédente reproduit bien les données expérimentales. On peut toutefois s'étonner qu'une description aussi simple des boîtes suffise à reproduire la réalité expérimentale. En effet, nous venons de voir que sous fort pompage, l'élargissement homogène des boîtes excède la séparation XX-X (typiquement 1 à 3 meV). Dès lors, la transition bi-excitonique contribue aussi à la lumière émise dans le mode de cavité. Nous proposons donc dans cette partie un modèle étendu où les 4 premiers niveaux de la boîte sont considérés (vide, 1, 2 et 3 paires e-h piégées). Les résultats de ce modèle sont ensuite comparés au modèle à 2 niveaux.

Nous examinons maintenant l'apport de chaque transition en terme d'émission spontanée, d'émission stimulée et d'absorption.

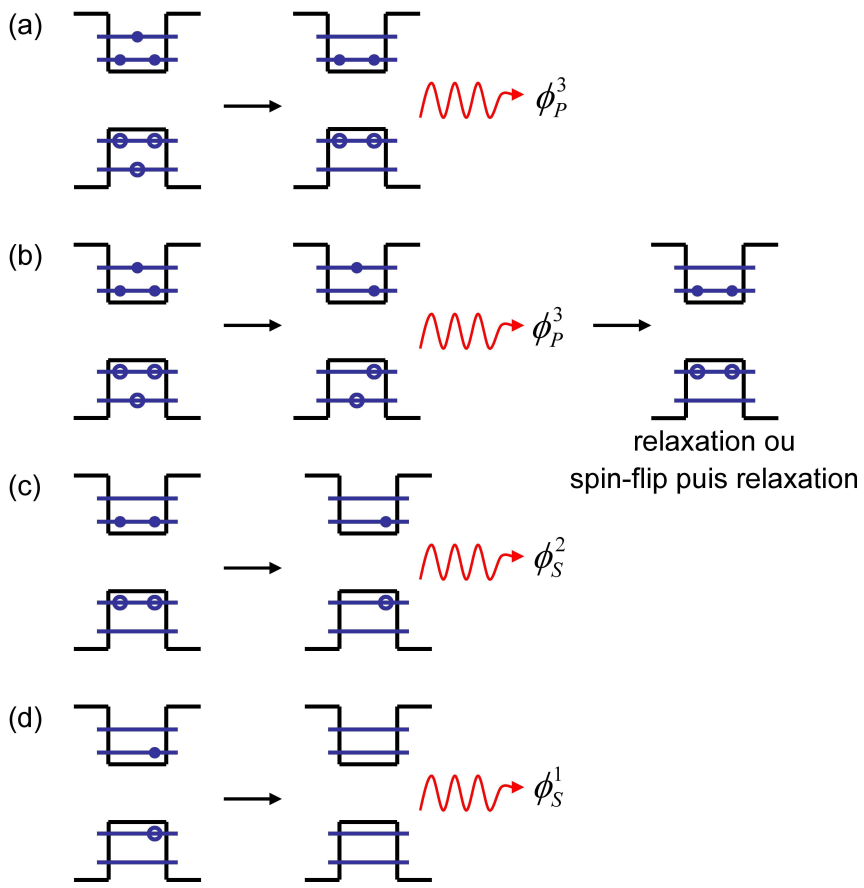


FIGURE 4.26 – Schéma des différentes sources de photons issus de l'émission spontanée (ϕ_x^i corresponds à i nombre d'états occupés avant l'émission et x l'état qui se désexcite) avec (a) et (b) recombinaisons des états P, (c) des états (2S) et (d) de l'état (1S).

Emission spontanée Le schéma 4.26 récapitule les différents canaux d'émission spontanée dans un système à quatre niveaux.

Supposons la boîte dans l'état (2S)(1P) (3 paires e-h piégées dans la boîte). Deux recombinaisons sont possibles :

(a) (2S)(1P) $\rightarrow$ (2S) avec émission d'un photon ϕ_P^3 (notation : recombinaison d'une paire e-h de la couche P, 3 paires e-h initialement présentes dans la boîte). Un taux Γ est associé à cette recombinaison.
(b) (2S)(1P) $\rightarrow$ (1S)(1P) avec émission d'un photon ϕ_S^3. L'état électronique de la boîte relaxe ensuite de manière non-radiative vers (2S) (après un spin-flip si nécessaire). Il y a 2 recombinaisons possibles pour les paires e-h de la couche S, d'où un taux global 2Γ pour cette transition.

Si on considère maintenant les autres états initiaux possibles de la boîte, soit (2S) et (1S), on a les recombinaisons suivantes :

(c) Si la boîte est initialement dans l'état (2S), on a la transition (2S) $\rightarrow$ (1S) avec émission d'un photon ϕ_S^2. Comme précédemment, un taux global 2Γ est associé à ce processus.
(d) Enfin, le dernier état (1S) présente une seule recombinaison vers l'état vide (1S) $\rightarrow$ (vide) avec émission d'un photon ϕ_S^1 et un taux associé Γ.

Emission stimulée et absorption

Nous décrivons maintenant plus rapidement les transitions fournissant du gain par émission stimulée. Trois transitions sont possibles :

- (2S)(1P) + ϕ_S $\rightarrow$ (2S) + $2\phi_S$ (taux $2\beta\Gamma n_\phi$).
- (2S) + ϕ_S $\rightarrow$ (1S) + $2\phi_S$ (taux $2\beta\Gamma n_\phi$).
- (1S) + ϕ_S $\rightarrow$ (vide) + $2\phi_S$ (taux $\beta\Gamma n_\phi$).

L'état (2S)(1P) ne contribue pas à l'absorption des photons du mode de cavité. Il reste alors les processus suivant :

- (1S) + ϕ_S $\rightarrow$ (2S) (taux 2Γ).
- (vide) + ϕ_S $\rightarrow$ (1S) (taux Γ).

Pompage des boîtes

Dans la suite, les états de la boîte (2S)(1P), (2S), (1S) et (vide) sont respectivement notés 3, 2, 1 et 0. On note N_i le nombre de boîtes dans l'état i. Nous supposons que le taux de capture Γ_c d'une paire électron-trou par une boîte est indépendant de l'état de celle-ci. Cette hypothèse est valable tant que la boîte n'est pas complètement saturée en porteurs. La puissance injectée dans le milieu à gain vaut alors $P_{in} = \Gamma_c[N_0 + N_1 + N_2]$. Nous supposons également que P_{in} est proportionnelle à la puissance de pompage externe.

Equations bilan

Les équations de taux associées aux populations électroniques s'écrivent :

$$
\begin{aligned}
\frac{dN_3}{dt} &= \Gamma_c N_2 \\
&\quad -3\Gamma N_3 - 2\beta\Gamma N_3 n_\phi \\
\frac{dN_2}{dt} &= \Gamma_c (N_1 - N_2) \\
&\quad +3\Gamma N_3 + 2\beta\Gamma N_3 n_\phi + 2\beta\Gamma N_1 n_\phi \\
&\quad -2\Gamma N_2 - 2\beta\Gamma N_2 n_\phi \\
\frac{dN_1}{dt} &= \Gamma_c (N_0 - N_1) \\
&\quad +2\Gamma N_2 + 2\beta\Gamma N_2 n_\phi + \beta\Gamma N_0 n_\phi \\
&\quad -\Gamma N_1 - \beta\Gamma N_1 n_\phi - 2\beta\Gamma N_1 n_\phi \\
\frac{dN_0}{dt} &= -\Gamma_c N_0 \\
&\quad +\Gamma N_1 + \beta\Gamma N_1 n_\phi \\
&\quad -\beta\Gamma N_0 n_\phi
\end{aligned}
\tag{4.15}
$$

La population de photons dans le mode de cavité évolue selon :

$$
\begin{aligned}
\frac{dn_\phi}{dt} &= \beta\Gamma (2N_3 + 2N_2 + N_1) \\
&\quad +\beta\Gamma (2N_3 + 2N_2 + N_1) n_\phi \\
&\quad -\beta\Gamma (2N_1 + N_0) n_\phi \\
&\quad -\Gamma_\phi n_\phi
\end{aligned}
\tag{4.16}
$$

Ce système d'équations couplées est résolu numériquement en utilisant la méthode de Newton.

Comparaison avec le modèle à 2 niveaux

Dans un premier temps, nous comparons les résultats du modèle à 4 et 2 niveaux pour un jeu de paramètres identiques ($N_t = 7000$, $\Gamma^{-1} = 10^{-9}$ s, $\Gamma_\phi^{-1} = 2.92\ 10^{-12}$, $\beta = 0.05, 0.1, 0.5$). Les caractéristiques $P_{in} - P_{out}$ correspondantes sont tracées sur la figure 4.27. Au dessus et au dessous du seuil, on observe le même comportement quelque soit le modèle utilisé. Par contre, on observe un décalage systématique du seuil laser entre les deux modèles. Le modèle à quatre niveaux montre un seuil plus élevé, ce qui semble naturel car la transparence du milieu à 4 états est atteinte pour des puissances de pompe plus élevées que celle du modèle à 2 états.

Très schématiquement, on peut considérer que le changement principal introduit par le modèle à 4 niveaux est de fournir une transition supplémentaire couplée au mode par boîte quantique (la transition bi-excitonique). C'est pourquoi nous réalisons pour finir une comparaison des deux modèles en divisant systématiqement N_t par 2 pour le modèle à 4 niveaux (les autres paramètres sont identiques). La comparaison est réalisée pour les paramètres reproduisant les données expérimentales et sont présentées sur la figure 4.28. Le facteur multiplicatif entre la puissance de pompe externe et P_{in} est un paramètre de l'ajustement, différent pour les 2 modèles. Cette figure montre que la différence entre les deux modèles est négligeable devant les incertitudes expérimentales.

En résumé, le modèle à 4 niveaux, bien que plus correct physiquement, n'apporte pas de changement radicaux par rapport au modèle à 2 niveaux. Notons toutefois que l'estimation, donnée par le modèle à 2 niveaux, du nombre de boîtes couplées au mode est systématiquement sur-évaluée d'un facteur 2.

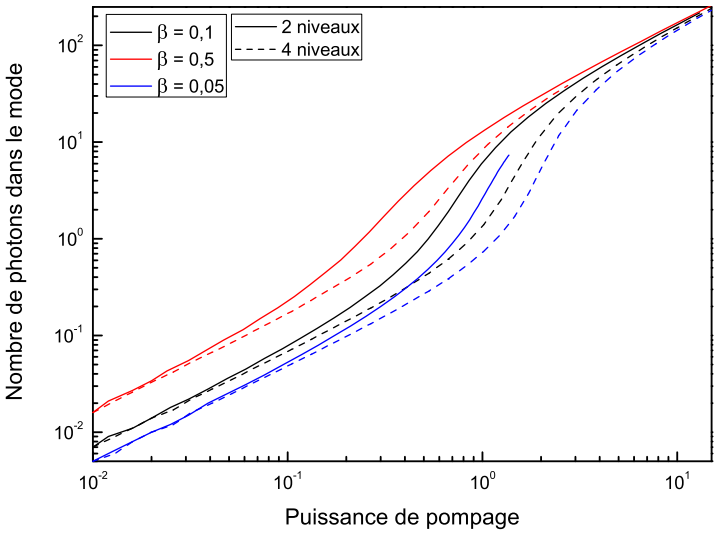


FIGURE 4.27 – Evolution du nombre de photons dans le mode pour plusieures valeurs de β en fonction de P_{in}, les traits pleins et pointillés sont calculés respectivement avec le modèle à deux et quatre niveaux avec les mêmes paramètres d'entrée.

4.5 Conclusion et Perspectives

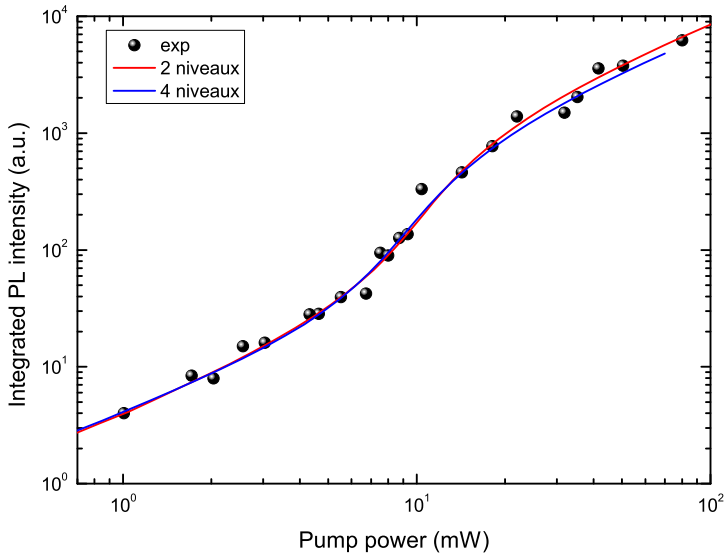
L'amélioration de la collection et de l'excitation via l'utilisation d'un porte-échantillon incliné a permis d'obtenir des données bien au delà du seuil laser. Nos études des modes de galerie confirment la meilleure stabilité thermique des micropiliers par rapport aux microdisques suspendus. De plus, les lasers à micropiliers démontrent un affinement spectral se maintenant jusqu'à sept fois le seuil laser.

De plus, la géométrie micropilier facilite les opérations de prise de contacts pour le pompage électrique, au prix d'une légère augmentation du volume modal. L'optimisation de la géométrie comme sur la figure 4.29(a) permettrait d'améliorer l'injection du courant. On s'attend à une amélioration notable par rapport aux résultats de Fujita et al [50] : une diminution du courant de seuil, un fonctionnement à "haute" puissance, c'est à dire largement au dessus du seuil sans échauffement et élargissement spectral. Pour faciliter l'injection des porteurs dans le volume des modes de galerie, on peut penser réaliser un trou dans la partie supérieure du pilier comme le montre la figure 4.29(b).

Ces micro-sources originales offrent en particulier des perspectives d'application intéressante dans le domaine de la génération d'ondes térahertz. Dumeige et al [38], [39], ainsi que Andronico et al [3] ont montré qu'il est possible de générer une onde térahertz par différence de fréquences entre deux modes de galerie dans un microdisque ou dans un micropilier de GaAs.

On peut aussi noter que l'utilisation de miroirs de Bragg garde quand même un certain intérêt pour le contrôle de l'émission spontanée. En effet, si on place notre mode de galerie du côté haute énergie de notre stop-band en incidence normale, on peut inhiber l'émission des boîtes dans la stop-band sur une plage de 0 à 23°(figure 4.30). Ainsi, l'émission dans les modes de fuites pourrait être réduite d'environ 20% et on améliorerait le couplage aux modes de galerie.

Enfin, pour appronfondir notre étude, il sera sans doute nécessaire d'améliorer encore le



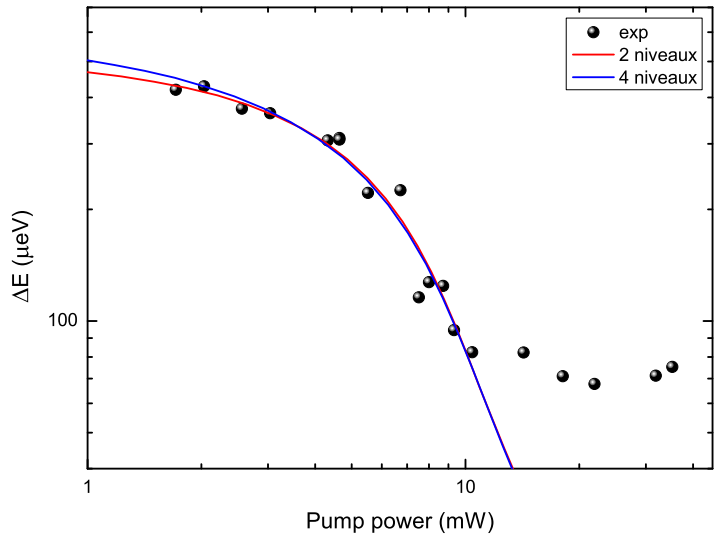


FIGURE 4.28 – Caractéristique P_{in}-P_{out} du mode $TEM_{1,1,38}$ à 5K et évolution de sa largeur de raie (points) en fonction de la puissance de pompe. Les courbes correspondent aux modèles à deux niveaux (rouge) et quatre niveaux (bleu).

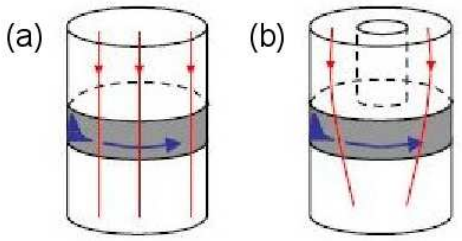


FIGURE 4.29 – Quelques géométries possibles : (a) piliers sans miroirs de Bragg (b) couronne.

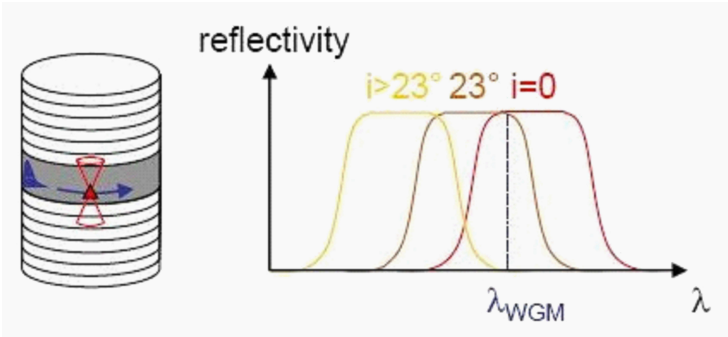


FIGURE 4.30 – Utilisation de miroirs pour contrôler l'angle d'incidence d'une partie des photons émis dans les modes de fuites.

dispositif expérimental. Les facteurs de qualité mesurés approchent de près la limite de résolution de notre réseau, il est souhaitable de mettre en place un réseau plus résolvant à l'avenir. Une géométrie "excitation par le haut" et "collection par la tranche", présentée sur la figure 4.31 serait également intéressante. Elle permettrait d'obtenir une excitation uniforme des boîtes tout en optimisant la collection des modes de galerie.

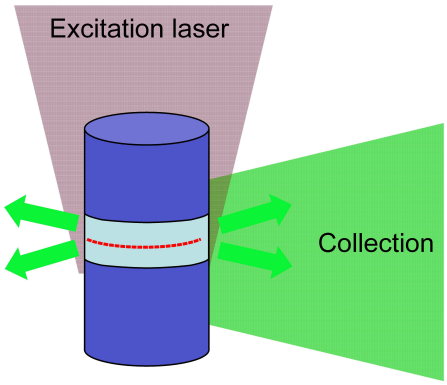


FIGURE 4.31 – Position d'excitation de l'échantillon à l'avenir.

Conclusion

Pour les besoins de ce travail de thèse, notre étude sur le contrôle de l'émission spontanée de boîte quantique s'est portée sur deux types de microstructures semiconductrices originales : les fils photoniques dans le but de réaliser une source de photons uniques de très haute efficacité et les micropiliers à modes de galerie afin d'y étudier l'effet laser.

En comparant à d'autres types de cavité à confinement 0D ou 2D, nous avons pu mettre en lumière le potentiel des fils photoniques pour contrôler l'émission spontanée. Nous avons montré que le degré d'inhibition est nettement plus fort que dans les piliers métallisés et de même amplitude que les effets d'inhibition les plus marqués observés dans les cristaux photoniques. Cet effet offre une nouvelle stratégie pour observer un couplage presque monomode de l'émission spontanée.

Dans un premier temps nous avons mis en évidence la génération très propre de photons uniques dans des nanofils avec une probabilité remarquablement plus faible d'émettre deux photons simultanément, $g^2 \sim 8.10^{-3}$, que dans les approches en cavité, $g^2 \sim 0.19$. Ce sont les travaux d'optimisation de la géométrie fils photoniques, l'intégration d'un miroir original au pied du fil et la présence d'une pointe de forme conique pour assurer une adaptation modale, qui ont permis de mesurer une efficacité record de 70%. Cette valeur, *a contrario* de l'approche boîte unique en cavité, a pu être obtenue par la combinaison d'un fort couplage au mode guidé et une forte inhibition des modes non guidés. De plus, cette forte inhibition a été l'objet d'une étude systématique permettant de mettre en évidence l'importance de la position de la boîte quantique dans le guide. La possibilité de structurer le fil directement autour d'une boîte préalablement caractérisée peut donc sembler très attractive.

La géométrie fil photonique présente des intérêts certains en vue d'applications potentielles. Le fait de s'affranchir des effets résonants et donc d'avoir une source large-bande permet de penser à une source de photons uniques efficace, accordable en longueurs d'ondes en exploitant des émetteurs monochromatiques mais aussi la possibilité de collecter efficacement des paires de photons issues de l'émission de l'exciton et du biexciton d'une boîte quantique.

De plus, pour une utilisation potentielle en cryptographie quantique, la génération de photons indiscernables est nécessaire, c'est pourquoi à l'avenir on peut penser à utiliser des émetteurs à très faible temps de vie radiatif comme des boîtes quantiques à forces d'oscillateurs géantes. Toujours dans le cadre d'applications possibles, il est naturel de s'intéresser à l'utilisation de fils photoniques pompés électriquement. Pour cela, une nouvelle génération de fils photoniques contactés est en cours de réalisation au sein du laboratoire.

La seconde partie de ce travail de thèse a porté sur l'étude de l'effet laser dans des micropiliers à modes de galerie. L'optimisation du dispositif expérimental a permis de mesurer un seuil laser faible, nous avons ainsi pu réaliser une étude en puissance à plus de vingt fois le seuil laser. Celle-ci montre une stabilité en longueur d'onde mais aussi un affinement spectral au dessus du seuil. Ce résultat est peu observé dans les géométries "standards" à modes de galerie : les microdisques, il résulte de la réduction de l'échauffement dans les micropiliers.

La facilité de pomper électriquement un micropilier associée à ce résultat semble attrayant pour la réalisation de microlasers à bas seuil.

De plus, l'effet laser a pu être observé sur plusieurs modes simultanément. Ce résultat particulièrement pertinent permet d'imaginer facilement les micropiliers à modes de galerie dans le cadre des récentes propositions de sources térahertz. Une onde térahertz serait générée par différence de fréquences entre deux modes de galerie.

Annexe A

Inhibition dans les micropiliers métallisés

Sommaire

A.1 Contrôle de l'émission spontanée dans un guide métallisé 139

A.2 Miroir de Bragg métallisé 141

A.2.1 Premier cas 142

A.2.2 Second cas 143

A.3 Application à l'expérience de Bayer et al [13] 143

A.1 Contrôle de l'émission spontanée dans un guide métallisé

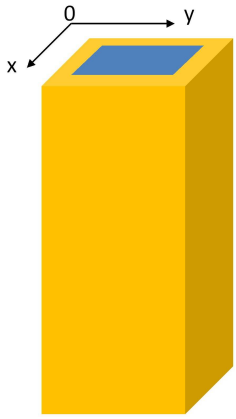


FIGURE A.1 – Guide d'ondes cylindrique de section rectangulaire à flancs métallisés.

Considérons un guide d'ondes de section carrée recouvert sur les flancs par un métal parfait, illustré par le schéma A.1.

La forme générale du champ électrique s'écrit :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} \alpha k_z \cos k_x x \sin k_y y e^{ik_z z} \\ beta k_z \sin k_x x \cos k_y y e^{ik_z z} \\ -i\left(\alpha k_x + \beta k_y\right) \sin k_x x \sin k_y y e^{ik_z z} \end{pmatrix} \tag{A.1}$$

On a ici deux familles de modes :
– Modes polarisés suivant y :

$$\vec{E}_{\Pi_y} = \begin{pmatrix} 0 \\ k_z \sin k_x x \cos k_y y e^{ik_z z} \\ -ik_y \sin k_x x \sin k_y y e^{ik_z z} \end{pmatrix} \tag{A.2}$$

– Modes polarisés suivant x :

$$\vec{E}_{\Pi_x} = \begin{pmatrix} k_z \cos k_x x \sin k_y y e^{ik_z z} \\ 0 \\ -ik_x \sin k_x x \sin k_y y e^{ik_z z} \end{pmatrix} \tag{A.3}$$

Avec les conditions aux limites telles que : $k_{x,y} = n_{x,y}\pi/L_{x,y}$ pour $n_{x,y} \in \mathbb{N}$ et pour les modes Π_x, $n_y \neq 0$ et Π_y, $n_x \neq 0$.

La relation de dispersion s'écrit alors :

$$\omega_{n_x,n_y} = \frac{c}{n}|k| = \frac{c}{n}\sqrt{\tilde{k}_{xy}^2 + k_z^2} \tag{A.4}$$

$$\text{Avec } \tilde{k}_{xy}^2 = \left(\frac{n_x^2}{L_x^2} + \frac{n_y^2}{L_y^2}\right)\pi^2 \tag{A.5}$$

Cette relation est représentée sur la figure A.2.

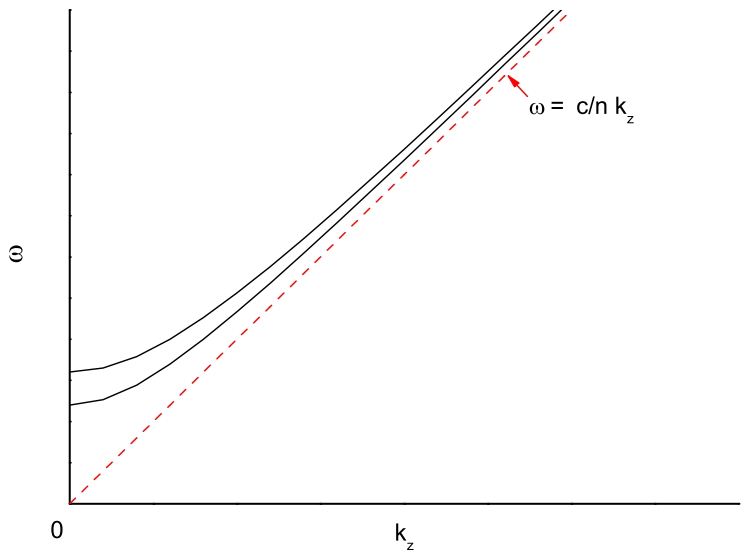


FIGURE A.2 – Représentation de la relation de dispersion c'est à dire ω fonction de k_z.

On définit l'indice effectif du mode par :

$$n_{eff} = \frac{c}{\omega} k_z = \frac{n k_z}{\sqrt{\tilde{k}_{xy}^2 + k_z^2}} \tag{A.6}$$

La condition de "cut-off" pour une fréquence ω donnée, s'écrit pour $k_z = 0$:

$$\omega = \frac{c}{n} |\tilde{k}_{xy}| \tag{A.7}$$

On peut maintenant définir le nombre de modes Π_x (ou Π_y) pour un guide large ($\gg \lambda/2$). La zone accessible pour les modes est représentée par la figure A.3.

$$\text{Soit : } \frac{\pi/4|\tilde{k}_{xy}|^2}{\pi/L_x L_y} = \frac{S}{4\pi} \frac{n^2 \omega^2}{c^2} \tag{A.8}$$

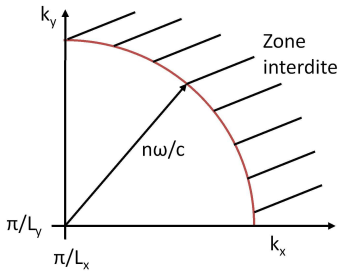


FIGURE A.3 – Schéma de la zone accessible aux modes dans l'espace réciproque.

A.2 Miroir de Bragg métallisé

On considère maintenant, non plus un guide d'ondes, mais un miroir de Bragg de période p recouvert sur les flancs d'un métal parfait, celui-ci est représenté sur le schéma A.4.

De par la présence du miroir de Bragg, on observe une coupure de la courbe de dispersion à la valeur de la fréquence de centrage de la stop-band. La courbe se sépare avec un espacement de 2Δ en ordonnée. Pour un miroir de Bragg, on sait que Δ ne dépend que du contraste d'indices entre matériaux constitutifs. Ici, on supposera dans la suite que Δ est indépendant du mode guidé considéré. Pour un mode n_x, n_y la fréquence centrale de la stop-band est donnée par :

$$\omega_{n_x,n_y}^c = \frac{c}{n_{eff}} \frac{\pi}{p} \tag{A.9}$$

Les modes contrôlés par le Bragg à la fréquence ω sont définis par :

$$|\omega - \omega_{x,y}^c| < \Delta \tag{A.10}$$

On trouve alors :

$$\omega - \Delta < \omega_{x,y}^c < \omega + \Delta \tag{A.11}$$

$$\text{Et : } \frac{n^2}{c^2} (\omega - \Delta)^2 - \frac{\pi^2}{p^2} < \tilde{k}_{x,y}^2 < \frac{n^2}{c^2} (\omega + \Delta)^2 - \frac{\pi^2}{p^2} \tag{A.12}$$

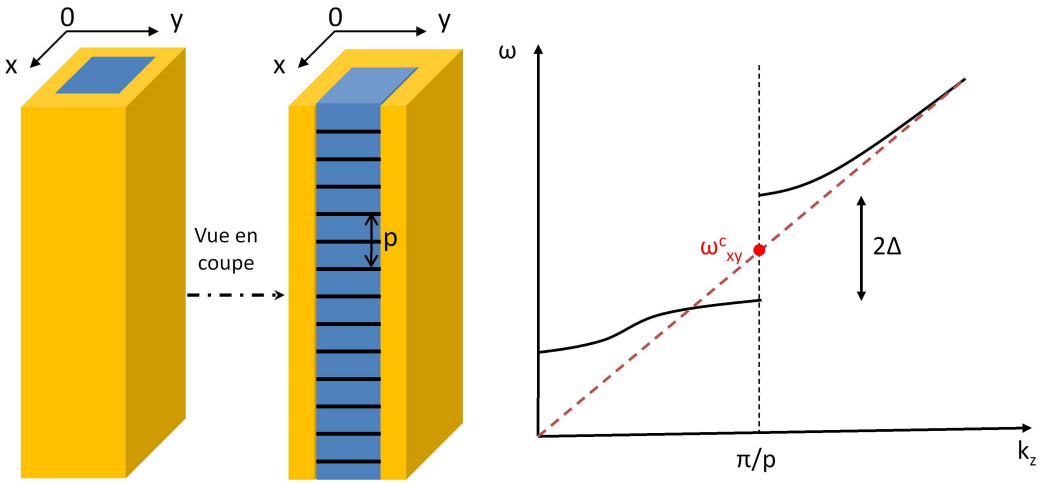


FIGURE A.4 – Miroir de Bragg à flancs métallisés de période p et l'évolution de ω en fonction de k_z pour un mode guidé.

On peut maintenant estimer l'inhibition pour un guide large par comptage de modes. Pour cela on va différencier deux cas.

A.2.1 Premier cas

Considérons que seul, le mode fondamental est contrôlé par le miroir de Bragg, alors $\tilde{k_{xy}} \simeq 0$.

$$\frac{c}{n}\frac{\pi}{p} - \Delta < \omega < \frac{c}{n}\frac{\pi}{p} + \Delta \tag{A.13}$$

Dans ce cas il reste une seule inégalité A.12 :

$$\tilde{k}_{x,y}^2 < \frac{n^2}{c^2}(\omega + \Delta)^2 - \frac{\pi^2}{p^2} \tag{A.14}$$

On peut ainsi obtenir la proportion de modes controlés par le miroir.
Soit :

$$\rho_{inh} = \frac{\frac{n^2}{c^2}(\omega + \Delta)^2 - \frac{\pi^2}{p^2}}{\frac{n^2\omega^2}{c^2}} = \frac{(\omega + \Delta)^2}{\omega^2} - \frac{\omega_B^2}{\omega^2} \tag{A.15}$$

Où ω_B est la fréquence de centrage du Bragg.

La figure A.5 illustre la proportion de modes contrôlés par le miroir. On peut voir que l'on aura une inhibition totale pour $\omega + \Delta > \omega_B$.

Tandis que pour $\omega < \omega_B - \Delta$, soit $\omega + \Delta < \omega_B$, on n'observe pas d'inhibition.

Ainsi pour $\omega - \Delta < \omega_B < \omega_B + \Delta$ et en supposant que $\Delta \ll \omega_B$ et $\omega \simeq \omega_B$ alors en première approximation on peut écrire :

$$\rho_{inh} \simeq \frac{2(\omega + \Delta - \omega_B)}{\omega} \tag{A.16}$$

Si on prend $\omega_B = \omega - \Delta$, on a alors :

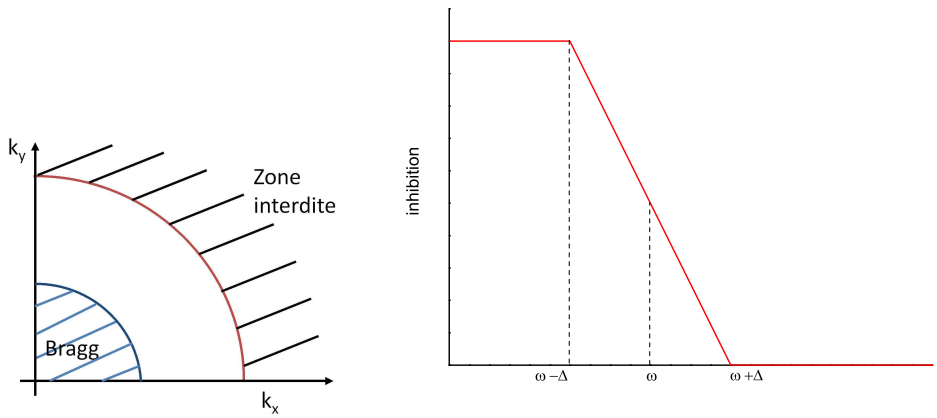


FIGURE A.5 – Proportion des modes contrôlés par le miroir de Bragg à flancs métallisés et évolution du taux d'émission spontanée en fonction de la pulsation.

$$\rho_{inh} = \frac{4\Delta}{\omega} \tag{A.17}$$

A.2.2 Second cas

Considérons maintenant que les modes supérieurs sont contrôlés par le Bragg mais pas le mode fondamental. Soit $\omega < \omega_B - \Delta$, on trouve alors :

$$\rho_{inh} = \frac{\frac{n^2}{c^2}(\omega+\Delta)^2 - \frac{n^2}{c^2}(\omega-\Delta)^2}{\frac{n^2\omega^2}{c^2}} = \frac{4\Delta}{\omega} \tag{A.18}$$

A.3 Application à l'expérience de Bayer et al [13]

Dans son expérience Bayer mesure un taux d'inhibition de 10 dans des micropiliers à flancs métallisés (section 1.4.2). Il est intéressant d'utiliser notre approche afin de calculer la valeur théorique d'inhibition estimée à l'aide de notre modèle : $\Delta \sim$50 meV pour un miroir GaAs/AlAs pour une énergie $\hbar\omega$ =1 eV. D'où :

$$\rho_{inh} = \frac{4\Delta}{\omega} \simeq 20\% \tag{A.19}$$

L'utilisation de micropiliers à flancs métallisés ne permet pas d'espérer une inhibition de plus de 20%. Bien que nous ayons fait quelques approximations dans notre modèle, on voit qu'il est peu plausible qu'on puisse réellement obtenir une inhibition de 90% de l'émission spontanée dans ces structures. Un calcul numérique exact du facteur d'inhibition est en cours dans notre équipe.

Bibliographie

[1] T. Aichele, A. Tribu, G. Sallen, J. Bocquel, E. Bellet-Amalric, C. Bougerol, J.-P. Poizat, K. Kheng, R. André, S. Tatarenko, and H. Mariette. CdSe quantum dots in ZnSe nanowires as efficient source for single photons up to 220 K. *Journal of Crystal Growth*, 311(7) :2123 – 2127, 2009. International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE-XV), The 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE-XV).

[2] Y. Akahane, T. Asano, B. Song, and S. Noda. High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal. *Nature*, 425 :944–947, Oct. 2003.

[3] Alessio Andronico, J. Claudon, J.-M. Gérard, V. Berger, and G. Leo. Integrated terahertz source based on three-wave mixing of whispering-gallery modes. *Opt. Lett.*, 33(21) :2416–2418, 2008.

[4] A. P. Alivisatos. Perspectives on the physical chemistry of semiconductor nanocrystals. *The Journal of Physical Chemistry*, 100 :13226–13239, 1996.

[5] R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y. Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source. *New Journal of Physics*, 6(1) :92, 2004.

[6] A. Aspect, J. Dalibard, and G. Roger. Experimental test of bell's Inequalities using time-varying analyzers. *Phys. Rev. Lett.*, 49(25) :1804–1807, 1982.

[7] V. N. Astratov, S. Yang, S. Lam, B. D. Jones, D. Sanvitto, D. M. Whittaker, A. M. Fox, M. S. Skolnick, A. Tahraoui, P. W. Fry, and M. Hopkinson. Whispering gallery resonances in semiconductor micropillars. *Applied Physics Letters*, 91(7) :071115, 2007.

[8] A. Auffèves, J.-M. Gérard, and J.-P. Poizat. Pure emitter dephasing : A resource for advanced solid-state single-photon sources. *Phys. Rev. A*, 79(5) :053838, 2009.

[9] P. Auvray, M. Baudet, J. Caulet, and A. Regreny. Caractérisation par diffraction x des superréseaux GaAlAs-GaAs. importance des techniques et de la procédure utilisées. *Rev. Phys. Appl. (Paris)*, 24(7) :711–720, 1989.

[10] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atature, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff, and A. Imamoglu. Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes. *Science*, 308(5725) :1158–1161, 2005.

[11] W. L. Barnes, G. Björk, J. M. Gérard, P. Jonsson, J. A. E. Wasey, P. T. Worthing, and V. Zwiller. Solid-state single photon sources : light collection strategies. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics.*, 18(2) :197–210, 2002.

[12] T. Basché, W. E. Moerner, M. Orrit, and H. Talon. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 69(10) :1516–1519, 1992.

[13] M. Bayer, T. L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald, and A. Forchel. Inhibition and enhancement of the spontaneous emission of quantum dots in structured microresonators. *Phys. Rev. Lett.*, 86(14) :3168–3171, 2001.

[14] M. Bayer, S. N. Walck, T. L. Reinecke, and A. Forchel. Exciton binding energies and diamagnetic shifts in semiconductor quantum wires and quantum dots. *Phys. Rev. B*, 57(11) :6584–6591, Mar 1998.

[15] C. H. Bennett and G. Brassard. Quantum cryptography : public key distribution and coin tossing. *Proceeding of IEEE International Conference on Computer Systems and Signal Proceessing, Bangalore, India*, page 175, 1984.

[16] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Single photon quantum cryptography. *Phys. Rev. Lett.*, 89(18) :187901, 2002.

[17] G. Bjork, A. Karlsson, and Y. Yamamoto. On the linewidth of microcavity lasers. *Applied Physics Letters*, 60(3) :304–306, 1992.

[18] G. Björk and Y. Yamamoto. Analysis of semiconductor microcavity lasers using rate equations. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 27(11) :2386–2396, 1991.

[19] J. S. Blakemore. Semiconducting and other major properties of gallium arsenide. *Journal of Applied Physics*, 53 :123, Oct. 1982.

[20] C. Böckler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Löffler, T. Kida, S. Höfling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon, and J. M. Gérard. Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities. *Applied Physics Letters*, 92(9) :091107, 2008.

[21] F. Bordas, C. Seassal, E. Dupuy, P. Regreny, M. Gendry, P. Viktorovitch, M. J. Steel, and A. Rahmani. Room temperature low-threshold InAs/Inp quantum dot single mode photonic crystal microlasers at 1.5 μm using cavity-confined slow light. *Opt. Express*, 17(7) :5439–5445, 2009.

[22] P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam, F. Heinrichsdorff, M.-H. Mao, and D. Bimberg. Time-resolved four-wave mixing in InAs/InGaAs quantum-dot amplifiers under electrical injection. *Applied Physics Letters*, 76(11) :1380–1382, 2000.

[23] M. Borselli, K. Srinivasan, P. E. Barclay, and O. Painter. Rayleigh scattering, mode coupling, and optical loss in silicon microdisks. *Applied Physics Letters*, 85(17) :3693–3695, 2004.

[24] G. Bourdon, I. Robert, R. Adams, K. Nelep, I. Sagnes, J. M. Moison, and I. Abram. Room temperature enhancement and inhibition of spontaneous emission in semiconductor microcavities. *Applied Physics Letters*, 77(9) :1345–1347, 2000.

[25] G. Brassard, N. Lütkenhaus, T. Mor, and B. C. Sanders. Limitations on practical quantum cryptography. *Phys. Rev. Lett.*, 85(6) :1330–1333, 2000.

[26] X. Brokmann, E. Giacobino, M. Dahan, and J. P. Hermier. Highly efficient triggered emission of single photons by colloidal CdSe/ZnS nanocrystals. *Applied Physics Letters*, 85(5) :712–714, 2004.

[27] R. Brouri, Alexios Beveratos, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond. *Opt. Lett.*, 25(17) :1294–1296, 2000.

[28] E. Burstein and C. Weisbuch. *Confined Electron and Photons*. Plenum Press, 1995.

[29] H. Cao, J. Y. Xu, W. H. Xiang, Y. Ma, S.-H. Chang, S. T. Ho, and G. S. Solomon. Optically pumped InAs quantum dot microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 76(24) :3519–3521, 2000.

[30] L. L. Chang, A. Segmuller, and L. Esaki. Smooth and coherent layers of GaAs and AlAs grown by molecular beam epitaxy. *Applied Physics Letters*, 28(1) :39–41, 1976.

[31] L. Chen and E. Towe. Nanowire lasers with distributed-bragg-reflector mirrors. *Applied Physics Letters*, 89(5) :053125, 2006.

[32] C. Constantin, E. Martinet, D. Y. Oberli, E. Kapon, B. Gayral, and J. M. Gérard. Quantum wires in multidimensional microcavities : Effects of photon dimensionality on emission properties. *Phys. Rev. B*, 66(16) :165306, 2002.

[33] S. Cortez, O. Krebs, P. Voisin, and J. M. Gérard. Polarization of the interband optical dipole in InAs/GaAs self-organized quantum dots. *Phys. Rev. B*, 63(23) :233306, 2001.

[34] F. De Martini and G. R. Jacobovitz. Anomalous spontaneous–stimulated-decay phase transition and zero-threshold laser action in a microscopic cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 60(17) :1711–1714, Apr 1988.

[35] F. De Martini, M. Marrocco, and D. Murra. Transverse quantum correlations in the active microscopic cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 65(15) :1853–1856, Oct 1990.

[36] 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. *Phys. Rev. Lett.*, 101(26) :267404, 2008.

[37] L.-M. Duan and H. J. Kimble. Scalable photonic quantum computation through cavity-Assisted Interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 92(12) :127902, 2004.

[38] Y. Dumeige and P. Féron. Whispering-gallery-mode analysis of phase-matched doubly resonant second-harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 74(6) :063804, 2006.

[39] Y. Dumeige and P. Féron. Second-harmonic generation using tailored whispering gallery modes. *Phys. Rev. A*, 76(3) :035803, 2007.

[40] J. E. M. Clausen, H. G. Craighead, J. M. Worlock, J. P. Harbison, L. M. Schiavone, L. Florez, and B. V. der Gaag. Determination of nonradiative surface layer thickness in quantum dots etched from single quantum well GaAs/AlGaAs. *Applied Physics Letters*, 55(14) :1427–1429, 1989.

[41] D. J. P. Ellis, A. J. Bennett, S. J. Dewhurst, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields. Cavity-enhanced radiative emission rate in a single-photon-emitting diode operating at 0.5 ghz. *New Journal of Physics*, 10(4) :043035, 2008.

[42] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto, and J. Vučković. Controlling the spontaneous emission rate of single quantum dots in a two-dimensional photonic crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 95(1) :013904, 2005.

[43] U. Fano. Effects of configuration Interaction on Intensities and phase shifts. *Phys. Rev.*, 124(6) :1866–1878, 1961.

[44] I. Favero, A. Berthelot, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gerard. 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.

[45] I. Favero, G. Cassabois, A. Jankovic, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, A. Badolato, P. M. Petroff, and J. M. Gérard. Giant optical anisotropy in a single InAs quantum dot in a very dilute quantum-dot ensemble. *Applied Physics Letters*, 86(4) :041904, 2005.

[46] R. E. Fern and A. Onton. Refractive Index of AlAs. *Journal of Applied Physics*, 42 :3499–3500, 1971.

[47] C. Foxon, J. Harvey, and B. Joyce. The evaporation of GaAs under equilibrium and non-equilibrium conditions using a modulated beam technique. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 34(10) :1693 – 1701, 1973.

[48] I. Friedler, P. Lalanne, J. P. Hugonin, J. Claudon, J. M. Gérard, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Efficient photonic mirrors for semiconductor nanowires. *Opt. Lett.*, 33(22) :2635–2637, 2008.

[49] I. Friedler, C. Sauvan, J. P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, and J. M. Gérard. Solid-state single photon sources : the nanowire antenna. *Opt. Express*, 17(4) :2095–2110, 2009.

[50] Fujita, M and Sakai, A and Baba, T. Ultrasmall and ultralow threshold GaInAsP-InP microdisk injection lasers : Design, fabrication, lasing characteristics, and spontaneous emission factor. *IEEE Journal of Selected Topic in Quantum Electronics*, 5(3) :673–681, 1999.

[51] T. Fukui, S. Ando, Y. Tokura, and T. Toriyama. GaAs tetrahedral quantum dot structures fabricated using selective area metalorganic chemical vapor deposition. *Applied Physics Letters*, 58(18) :2018–2020, 1991.

[52] B. Gayral. Controlling spontaneous emission dynamics in semiconductor micro cavities. *Ann. Phys. Fr.*, 26(2) :1–135, 2001.

[53] B. Gayral, J. M. Gérard, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg. Optical study of gaas/alas pillar microcavities with elliptical cross section. *Applied Physics Letters*, 72(12) :1421–1423, 1998.

[54] B. Gayral, J. M. Gerard, A. Lemaitre, C. Dupuis, L. Manin, and J. L. Pelouard. High-Q wet-etched GaAs microdisks containing InAs quantum boxes. *Applied Physics Letters*, 75(13) :1908–1910, 1999.

[55] B. Gayral, J.-M. Gerard, B. Sermage, A. Lemaitre, and C. Dupuis. Time-resolved probing of the purcell effect for InAs quantum boxes in GaAs microdisks. *Applied Physics Letters*, 78(19) :2828–2830, 2001.

[56] B. Gayral and J. M. Gérard. Strong purcell effect for InAs quantum boxes in high-Q wet-etched microdisks. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 7(3-4) :641 – 645, 2000.

[57] J. M. Gerard, D. Barrier, J. Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg, and T. Rivera. Quantum boxes as active probes for photonic microstructures : The pillar microcavity case. *Applied Physics Letters*, 69(4) :449–451, 1996.

[58] J. M. Gérard, O. Cabrol, and B. Sermage. InAs quantum boxes : Highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si. *Applied Physics Letters*, 68(22) :3123–3125, 1996.

[59] J.-M. Gerard and B. Gayral. Strong purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities. *J. Lightwave Technol.*, 17(11) :2089, 1999.

[60] J.-M. Gerard and B. Gayral. Toward high-efficiency quantum-dot single-photon sources. In D. L. Huffaker and P. Bhattacharya, editors, *Quantum Dots, Nanoparticles, and Nanoclusters*, volume 5361, pages 88–95. SPIE, 2004.

[61] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg. Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 81(5) :1110–1113, 1998.

[62] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. L. Roux. Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices. *Applied Physics Letters*, 47(10) :1099–1101, 1985.

[63] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross, and S. Haroche. Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission. *Phys. Rev. Lett.*, 50(24) :1903–1906, 1983.

[64] N. Gregersen, T. R. Nielsen, J. Claudon, J.-M. Gérard, and J. Mørk. Controlling the emission profile of a nanowire with a conical taper. *Opt. Lett.*, 33(15) :1693–1695, 2008.

[65] P. R. Griffiths. Fourier transform infrared spectrometry. *Science*, 222(4621) :297–302, 1983.

[66] F. J. Grunthaner, M. Y. Yen, R. Fernandez, T. C. Lee, A. Madhukar, and B. F. Lewis. Molecular beam epitaxial growth and transmission electron microscopy studies of thin GaAs/InAs(100) multiple quantum well structures. *Applied Physics Letters*, 46(10) :983–985, 1985.

[67] J. M. Gérard, J. B. Génin, J. Lefebvre, J. M. Moison, N. Lebouché, and F. Barthe. Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes. *Journal of Crystal Growth*, 150(Part 1) :351 – 356, 1995.

[68] T. D. Happ, I. I. Tartakovskii, V. D. Kulakovskii, J.-P. Reithmaier, M. Kamp, and A. Forchel. Enhanced light emission of $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots in a two-dimensional photonic-crystal defect microcavity. *Phys. Rev. B*, 66(4) :041303, 2002.

[69] T. Hashizume, Q. K. Xue, J. Zhou, A. Ichimiya, and T. Sakurai. Structures of As-Rich GaAs(001)-(2 × 4) reconstructions. *Phys. Rev. Lett.*, 73(16) :2208–2211, 1994.

[70] C. Henry. Theory of the linewidth of semiconductor lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 18(2) :259–264, 1982.

[71] M. A. Hines. Synthesis and characterization of strongly luminescing ZnS-Capped CdSe nanocrystals. *The Journal of Physical Chemistry*, 100 :468–471, 1996.

[72] K. R. Hiremath and V. N. Astratov. Perturbations of whispering gallery modes by nanoparticles embedded in microcavities. *Opt. Express*, 16(8) :5421–5426, 2008.

[73] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Phys. Rev. Lett.*, 59(18) :2044–2046, 1987.

[74] 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. *Phys. Rev. B*, 71(16) :161306, 2005.

[75] F. Houzay, C. Guille, J. M. Moison, P. Henoc, and F. Barthe. First stages of the MBE growth of InAs on (001)GaAs. *Journal of Crystal Growth*, 81(1-4) :67 – 72, 1987.

[76] J. M. V. Hove, C. S. Lent, P. R. Pukite, and P. I. Cohen. Damped oscillations in reflection high energy electron diffraction during GaAs MBE. *Journal of Vacuum Science and Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 1(3) :741–746, 1983.

[77] J. M. V. Hove, P. R. Pukite, and P. I. Cohen. The dependence of rheed oscillations on MBE growth parameters. *Journal of Vacuum Science and Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 3(2) :563–567, 1985.

[78] T. Ide, T. Baba, J. Tatebayashi, S. Iwamoto, T. Nakaoka, and Y. Arakawa. Lasing characteristics of InAs quantum-dot microdisk from 3 K to room temperature. *Applied Physics Letters*, 85(8) :1326–1328, 2004.

[79] T. Ide, T. Baba, J. Tatebayashi, S. Iwamoto, T. Nakaoka, and Y. Arakawa. Room temperature continuous wave lasing in InAs quantum-dot microdisks with air cladding. *Opt. Express*, 13(5) :1615–1620, 2005.

[80] A. Imamoglu and Y. Yamamoto. Turnstile device for heralded single photons : Coulomb blockade of electron and hole tunneling in quantum confined p-i-n heterojunctions. *Phys. Rev. Lett.*, 72(2) :210–213, Jan 1994.

[81] A. Izrael, B. Sermage, J. Y. Marzin, A. Ougazzaden, R. Azoulay, J. Etrillard, V. Thierry-Mieg, and L. Henry. Microfabrication and optical study of reactive ion etched InGaAsP/InP and GaAs/GaAlAs quantum wires. *Applied Physics Letters*, 56(9) :830–832, 1990.

[82] J. Jewell, Y. Lee, S. Walker, A. Scherer, J. Harbison, L. Florez, and S. McCall. Low-threshold electrically pumped vertical-cavity surface-emitting microlasers. *Electronics Letters*, 25(17) :1123–1124, 1989.

[83] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Götzinger, Y. Yamamoto, and Y. Arakawa. A gallium nitride single-photon source operating at 200K. *Nature Materials*, 5 :887–892, 2006.

[84] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, and J. M. Gérard. Photoluminescence up-conversion in single self-Assembled $InAs/GaAs$ quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 87(20) :207401, Oct 2001.

[85] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, P. Roussignol, F. Klopf, J. P. Reithmaier, A. Forchel, and J. M. Gérard. Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects. *Phys. Rev. B*, 66(4) :041306, 2002.

[86] J. Kim, O. Benson, H. Kan, and Y. Yamamoto. A single-photon turnistile device. *Nature*, 397 :500–503, 1999.

[87] A. Kiraz, M. Ehrl, T. Hellerer, O. E. Müstecaplıoğlu, C. Bräuchle, and A. Zumbusch. Indistinguishable photons from a single molecule. *Phys. Rev. Lett.*, 94(22) :223602, 2005.

[88] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, L. 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.

[89] E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature*, 409 :46–52, 2001.

[90] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, and H. Weinfurter. Stable solid-state source of single photons. *Phys. Rev. Lett.*, 85(2) :290–293, 2000.

[91] P. Lalanne, J. P. Hugonin, and J. M. Gérard. Electromagnetic study of the quality factor of pillar microcavities in the small diameter limit. *Applied Physics Letters*, 84 :4726, 2004.

[92] A. Laucht, F. Hofbauer, N. Hauke, J. Angele, S. Stobbe, M. Kaniber, G. Bohm, P. Lodahl, M.-C. Amann, and J. J. Finley. Electrical control of spontaneous emission and strong coupling for a single quantum dot. *New Journal of Physics*, 11(2) :023034, 2009.

[93] S. Laurent, S. Varoutsis, L. L. Gratiet, A. Lemaitre, 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.

[94] J. A. Lebens, C. S. Tsai, K. J. Vahala, and T. F. Kuech. Application of selective epitaxy to fabrication of nanometer scale wire and dot structures. *Applied Physics Letters*, 56(26) :2642–2644, 1990.

[95] T. Legero, T. Wilk, M. Hennrich, G. Rempe, and A. Kuhn. Quantum beat of two single photons. *Phys. Rev. Lett.*, 93(7) :070503, 2004.

[96] D. Leonard, K. Pond, and P. M. Petroff. Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs. *Phys. Rev. B*, 50(16) :11687–11692, 1994.

[97] P. Lodahl, A. Floris van Driel, I. S. Nikolaev, A. Irman, K. Overgaag, D. Vanmaekelbergh, and W. L. Vos. Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals. *Nature*, 430 :654–657, 2004.

[98] A. Loffler, J. P. Reithmaier, G. Sek, C. Hofmann, S. Reitzenstein, M. Kamp, and A. Forchel. Semiconductor quantum dot microcavity pillars with high-quality factors and enlarged dot dimensions. *Applied Physics Letters*, 86(11) :111105, 2005.

[99] J. Lourtioz, H. Benisty, V. Berger, J. Gérard, D. Maystre, and A. Tchelnokov. *Les cristaux photoniques ou la lumière en cage.* Hermès Science Publication, 2003.

[100] A. V. Maslov, M. I. Bakunov, and C. Z. Ning. Distribution of optical emission between guided modes and free space in a semiconductor nanowire. *Journal of Applied Physics*, 99(2) :024314, 2006.

[101] A. V. Maslov and C. Z. Ning. Far-field emission of a semiconductor nanowire laser. *Opt. Lett.*, 29(6) :572–574, 2004.

[102] A. Mazzei, S. Götzinger, L. de S. Menezes, G. Zumofen, O. Benson, and V. Sandoghdar. Controlled coupling of counterpropagating whispering-Gallery modes by a single rayleigh scatterer : A classical problem in a quantum optical light. *Phys. Rev. Lett.*, 99(17) :173603, 2007.

[103] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton, and R. A. Logan. Whispering-gallery mode microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 60(3) :289–291, 1992.

[104] P. Michler, A. Imamoğlu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, and S. K. Buratto. Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature. *Nature*, 406 :968–970, 2000.

[105] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoğlu. A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device. *Science*, 290 :2282–2285, 2000.

[106] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, L. Zhang, E. Hu, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, and P. M. Petroff. Quantum Dot Lasers Using High-Q Microdisk Cavities. *Physica Status Solidi B Basic Research*, 224 :797–801, 2001.

[107] G. Mie. Beitrage zur optik truber medien, speziell kolloidaler. *Ann. Phys*, 23 :337, 1908.

[108] U. Mohideen, W. S. Hobson, S. J. Pearton, F. Ren, and R. E. Slusher. GaAs/AlGaAs microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 64(15) :1911–1913, 1994.

[109] U. Mohideen, R. E. Slusher, F. Jahnke, and S. W. Koch. Semiconductor microlaser linewidths. *Phys. Rev. Lett.*, 73(13) :1785–1788, 1994.

[110] 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 de Paris VI, 2002.

[111] 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 :2865, 2001.

[112] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gérard, and I. Abram. Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 87(18) :183601, 2001.

[113] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gérard, and I. Abram. A single-mode solid-state source of single photons based on isolated quantum dots in a micropillar. *Physica E Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, 13 :418–422, 2002.

[114] C. B. Murray, D. J. Norris, and M. G. Bawendi. Synthesis and characterization of nearly monodisperse CdE (E = sulfur, selenium, tellurium) semiconductor nanocrystallites. *Journal of the American Chemical Society*, 115 :8706–8715, 1993.

[115] A. Naesby, T. Suhr, P. T. Kristensen, and J. Mørk. Influence of pure dephasing on emission spectra from single photon sources. *Phys. Rev. A*, 78(4) :045802, Oct 2008.

[116] C. Nelep. *Développement de diodes électroluminescentes à microcavité à miroir métalliques pour le contrôle de l'émission spontanée.* PhD thesis, Université de Paris VI, 2002.

[117] S. Noda, M. Fujita, and T. Asano. Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities. *Nature Photonics*, 1 :449–458, 2007.

[118] Y. R. Nowicki-Bringier, R. Hahner, J. Claudon, G. Lecamp, P. Lalanne, and J. M. Gérard. A novel hight-efficiency single-mode single photon source. *Ann. Phys*, 32(2-3) :151–154, 2007.

[119] Y. R. Nowicki-Bringuier. *Nouvelles géométries de confinement optique pour le contrôle de l'émission spontanée des Boîtes Quantiques semiconductrices.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2008.

[120] Y.-R. Nowicki-Bringuier, J. Claudon, C. Böckler, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Morand, A. Forchel, and J. M. Gérard. High q whispering gallery modes in GaAs/AlAs pillar microcavities. *Opt. Express*, 15(25) :17291–17304, 2007.

[121] H. Ohno, R. Katsumi, and H. Hasegawa. Reflection electron diffraction intensity oscillation during molecular beam epitaxial growth of (GaAs)n/(InAs)n superlattice semiconductor. *Surface Science*, 174(1-3) :598 – 599, 1986.

[122] E. Parker. *The Technology and Physics Of Molecular Beam Epitaxy.* Plenium Press, 1985.

[123] E. Peter. *Couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique de GaAs en microdisque.* PhD thesis, Université de Paris XI, 2006.

[124] E. Peter, I. Sagnes, G. Guirleo, S. Varoutsis, J. Bloch, A. Lemaitre, and P. Senellart. High-q whispering-gallery modes in GaAs/AlOx microdisks. *Applied Physics Letters*, 86(2) :021103, 2005.

[125] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, and J. Bloch. Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 95(6) :067401, 2005.

[126] E. M. Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. *Phys. Rev.*, 69(681), 1946.

[127] L. Rayleigh. The problem of the whispering gallery. *Scientific Paper*, 5 :617, 1912.

[128] J. P. Reithmaier, M. Röhner, H. Zull, F. Schäfer, A. Forchel, P. A. Knipp, and T. L. Reinecke. Size dependence of confined optical modes in photonic quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 78(2) :378–381, 1997.

[129] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, S. Hofmann, C.and Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system. *Nature*, 432 :197–200, 2004.

[130] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauss, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Loffler, S. Hofling, M. Kamp, and A. Forchel. AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000. *Applied Physics Letters*, 90(25) :251109, 2007.

[131] H. Rigneault, J. Broudic, B. Gayral, and J. M. Gérard. Far-field radiation from quantum boxes located in pillar microcavities. *Opt. Lett.*, 26(20) :1595–1597, 2001.

[132] H. Rigneault, J. Lourtioz, C. Dalalande, and A. Levenson. *La nanophotonique*. Hermes Science, 2005.

[133] T. Rivera, J. P. Debray, J. M. Gérard, B. Legrand, and L. Manin-Ferlazzo. Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 74 :911, 1999.

[134] K. Sanaka, A. Pawlis, T. D. Ladd, K. Lischka, and Y. Yamamoto. Indistinguishable photons from Independent semiconductor nanostructures. *Phys. Rev. Lett.*, 103(5) :053601, Jul 2009.

[135] V. Sandoghdar, F. Treussart, J. Hare, V. Lefèvre-Seguin, J. M. Raimond, and S. Haroche. Very low threshold whispering-gallery-mode microsphere laser. *Phys. Rev. A*, 54(3) :R1777–R1780, 1996.

[136] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot. *Phys. Rev. B*, 66(4) :045308, 2002.

[137] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature*, 419 :594–597, 2002.

[138] W. J. Schaffer, M. D. Lind, S. P. Kowalczyk, and R. W. Grant. Nucleation and strain relaxation at the InAs/GaAs(100) heterojunction. *Journal of Vacuum Science and Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 1(3) :688–695, 1983.

[139] A. L. Schawlow and C. H. Townes. Infrared and optical masers. *Phys. Rev.*, 112(6) :1940–1949, 1958.

[140] W. G. Schmidt. (4×2) and (2×4) reconstructions of GaAs and InP(001) surfaces. *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, 65(6) :581–586, 1997.

[141] K. Sebald, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, and A. Forchel. Single-photon emission of CdSe quantum dots at temperatures up to 200 K. *Applied Physics Letters*, 81(16) :2920–2922, 2002.

[142] R. E. Slusher. Optical processes in microcavities. *Semicondonductor Science and Technology*, 9(11S) :2025–2030, 1994.

[143] R. E. Slusher, A. F. J. Levi, U. Mohideen, S. L. McCall, S. J. Pearton, and R. A. Logan. Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 63(10) :1310–1312, 1993.

[144] G. S. Solomon, M. Pelton, and Y. Yamamoto. Single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 86(17) :3903–3906, 2001.

[145] B. Song, S. Noda, T. Asano, and Y. Akahane. Ultra-high-Q photonic double-heterostructure nanocavity. *Nature Materials*, 4 :207–210, 2005.

[146] A. J. SpringThorpe, S. J. Ingrey, B. Emmerstorfer, P. Mandeville, and W. T. Moore. Measurement of GaAs surface oxide desorption temperatures. *Applied Physics Letters*, 50(2) :77–79, 1987.

[147] K. Srinivasan, P. E. Barclay, M. Borselli, and O. Painter. Optical-fiber-based measurement of an ultrasmall volume high- Q photonic crystal microcavity. *Phys. Rev. B*, 70(8) :081306, 2004.

[148] K. Srinivasan, M. Borselli, O. Painter, A. Stintz, and S. Krishna. Cavity Q, mode volume, and lasing threshold in small diameter AlGaAs microdisks with embedded quantum dots. *Opt. Express*, 14(3) :1094–1105, 2006.

[149] S. Strauf, N. G. Stoltz, M. T. Rakher, L. A. Coldren, P. M. Petroff, and D. Bouwmeester. High-frequency single-photon source with polarization control. *Nature Photonics*, 1 :704–708, 2007.

[150] S. Thiyagarajan, D. Cohen, A. Levi, S. Ryu, R. Li, and P. Dapkus. Continuous room-temperature operation of microdisk laser diodes. *Electronics Letters*, 35(15) :1252–1254, 1999.

[151] R. J. Thompson, G. Rempe, and H. J. Kimble. Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 68(8) :1132–1135, 1992.

[152] R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater, and M. Pepper. Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots. *Phys. Rev. B*, 64(20) :201302, 2001.

[153] A. Tribu, G. Sallen, T. Aichele, R. André, J.-P. Poizat, C. Bougerol, S. Tatarenko, and K. Kheng. A high-temperature single-photon source from nanowire quantum dots. *Nano Lett.*, 8(12) :4326–4329, 2008.

[154] Q. A. Turchette, C. J. Hood, W. Lange, H. Mabuchi, and H. J. Kimble. Measurement of conditional phase shifts for quantum logic. *Phys. Rev. Lett.*, 75(25) :4710–4713, 1995.

[155] K. J. Vahala. Optical microcavities. *Nature*, 424 :839–846, 2003.

[156] L. J. Van der Pauw. A method of measuring the resistivity and the hall coefficient on lamellae of arbitrary shape. *Philips technical review*, 20(8) :220, 1958.

[157] S. Varoutsis. *Génération de photons uniques indiscernables par une boîte quantique semi-conductrice dans un microcavité optique.* PhD thesis, Université de Paris 11, 2005.

[158] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip, and I. Abram. Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. B*, 72(4) :041303, 2005.

[159] D. W. Vernooy, V. S. Ilchenko, H. Mabuchi, E. W. Streed, and H. J. Kimble. High-Q measurements of fused-silica microspheres in the near infrared. *Opt. Lett.*, 23(4) :247–249, 1998.

[160] A. M. Vredenberg, N. E. J. Hunt, E. F. Schubert, D. C. Jacobson, J. M. Poate, and G. J. Zydzik. Controlled atomic spontaneous emission from Er^{3+} in a transparent Si/SiO_2 microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 71(4) :517–520, 1993.

[161] J. Vuckovic, D. Fattal, C. Santori, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Enhanced single-photon emission from a quantum dot in a micropost microcavity. *Applied Physics Letters*, 82(21) :3596–3598, 2003.

[162] E. Yablonovitch. Photonic band-gap crystals. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 5(16) :2443, 1993.

[163] E. Yablonovitch. Photonic band-gap structures. *J. Opt. Soc. Am. B*, 10(2) :283–295, 1993.

[164] Y. Yamamoto and R. E. Slusher. Optical processes in microcavities. *Physics Today*, 46(6) :66–73, 1993.

[165] H. Yokoyama. Physics and Device Applications of Optical Microcavities. *Science*, 256(5053) :66–70, 1992.

[166] H. Yokoyama and S. D. Brorson. Rate equation analysis of microcavity lasers. *Journal of Applied Physics*, 66(10) :4801–4805, 1989.

[167] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. Shchekin, and D. Deppe. Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. *Nature*, 432(7014) :200–203, 2004.

[168] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, and M. Pepper. Electrically Driven Single-Photon Source. *Science*, 295 :102–105, 2002.

[169] J. P. Zhang, D. Y. Chu, S. L. Wu, S. T. Ho, W. G. Bi, C. W. Tu, and R. C. Tiberio. Photonic-wire laser. *Phys. Rev. Lett.*, 75(14) :2678–2681, 1995.

[170] V. Zwiller and G. Bjork. Improved light extraction from emitters in high refractive index materials using solid immersion lenses. *Journal of Applied Physics*, 92(2) :660–665, 2002.

Glossaire

c : Célérité
$\vec{E}$: Champ électrique
k : Constante de Boltzmann
$\hbar$: Constante de Planck
$\rho(\omega)$: Densité de modes
$\vec{d}$: Dipôle
ϵ : Efficacité de la source
F_P : Facteur de Purcell
Q : Facteur de qualité
g^2 : Fonction de corrélation
β : Fraction d' émission spontanée émis dans le mode fondamental
ϕ : Flux de photons
$\mathrm{n}_{\mathrm{eff}}$: Indice effectif
λ : Longueur d'onde
a_0 : Paramètre de maille
ϵ_0 : Permitivitté du vide
P : Polarisation de l'émission spontanée
ω : Pulsation
r_m : Réflexion modale
$\mathrm{S}_{\mathrm{eff}}$: Surface effectif
Γ : Taux d'émission spontanée
T_A : Température d'activation
τ : Temps de vie
T_α : Transmission du taper
k : Vecteur d'ondes
$\mathrm{V}_{\mathrm{eff}}$: Volume effectif

Table des figures

1.1 Emetteur dans l'espace libre . . . 4
1.2 Volume effectif . . . 6
1.3 Facteur de qualité . . . 8
1.4 Image MEB d'une cavité microdisque . . . 9
1.5 Image MEB d'une cavité micropilier . . . 9
1.6 Confinement du mode optique dans un résonateur cylindrique . . . 10
1.7 Image MEB d'une cavité cristal photonique . . . 10
1.8 Cavité planaire . . . 11
1.9 Modes dans une cavité planaire . . . 13
1.10 Modes dans une cavité unidimensionnelle . . . 13
1.11 Surface et indice effectifs dans un fil photonique . . . 15
1.12 Taux d'émission spontanée dans le mode fondamental pour un fil photonique . . . 15
1.13 Taux d'émission spontanée global pour un fil photonique . . . 16
1.14 Couplages . . . 17
1.15 Couplage faible . . . 17
1.16 Densité de modes dans une cavité 0D . . . 19
1.17 Principe de la mesure de Haroche et al . . . 20
1.18 Taux d'émission spontanée dans des cavités planaires (Bourdon et al) . . . 21
1.19 Démonstration expérimentale de l'exaltation de l'émission spontanée en cavités . . . 22
1.20 Expérience Laucht et al . . . 23
1.21 Accord spatial dans des cristaux photoniques . . . 24
1.22 Accord spatial dans des micropiliers . . . 24
1.23 Inhibition dans un cristal photonique tridimensionnel (Lodahl et al) . . . 25
1.24 Inhibition dans un cristal photonique bidimensionnel (Noda et al) . . . 26
1.25 Séparation de Rabi . . . 27
1.26 Illustration du couplage fort . . . 28
1.27 Couplage fort dans un cristal photonique (Yoshie et al) . . . 29
1.28 Couplage fort dans un micropilier (Reithmaier et al) . . . 29
1.29 Couplage fort dans un microdisque (Peter et al) . . . 30

2.1 Epitaxie par jets moléculaires . . . 32
2.2 Modes de croissances . . . 33
2.3 Principe de la diffraction RHEED . . . 34
2.4 Désoxydation du GaAs . . . 35
2.5 Reconstructions de surface GaAs stabilisée arsenic . . . 36
2.6 Oscillations de RHEED . . . 38
2.7 Oscillations RHEED GaAs . . . 39

2.8 Oscillations RHEED AlAs 40
2.9 Principe de la mesure de diffraction X 41
2.10 Spectre de rayons X 42
2.11 Configuration Van per Pauw 43
2.12 Contact ohmique métal/semiconducteur 44
2.13 Mesure d'effet Hall 45
2.14 Contacts GaAs/métal 46
2.15 Calibration du dopage n 47
2.16 Images AFM et TEM d'un plan de BQs 48
2.17 Relaxation élastique 48
2.18 Formation d'îlots InAs 49
2.19 Oscillations RHEED InAs 49
2.20 Evolution de la densité et photoluminescence de BQs 51
2.21 Evolution de la photoluminescence sur une zone frontière 51
2.22 Photoluminescence de BQs 52
2.23 FTIR d'une cavité symétrique à 1.3μm 54
2.24 FTIR d'une cavité symétrique à 940nm et photoluminescence de son plan de BQs 55
2.25 Principe de la photoluminescence 56
2.26 Banc d'optique de micro-photoluminescence 57
2.27 Banc d'optique de micro-photoluminescence résolue en temps 58

3.1 Métrologie 61
3.2 Cryptographie quantique 62
3.3 Calculs quantiques 62
3.4 Cascade radiative atomique 63
3.5 Auto-corrélation d'un nanocristal (Michler et al) 65
3.6 Cascade radiative dans une BQ 66
3.7 Auto-corrélation d'une boîte quantique (Moreau et al) 67
3.8 Auto-corrélation sous pompage électrique 67
3.9 Lentilles solides (Barnes et al) 68
3.10 Méthode de fabrication des "mésas sur or" 69
3.11 Mesure de corrélation de boîte unique (Moreau et al) 70
3.12 Mesure de corrélation (Strauf et al) 70
3.13 Mesure d'indiscernabilité (Santori et al) 71
3.14 Modélisation du facteur de qualité (Rivera et al) 72
3.15 Cartes de champs dans un pilier de GaAs 74
3.16 Cartes de champs dans des piliers de GaAs de plusieurs diamètres 75
3.17 Taux d'émission spontanée du mode HE_{11} calculé par plusieurs diamètres normalisés 76
3.18 Taux d'émission spontanée calculé par plusieurs diamètres (Friedler et al) 77
3.19 Position de la boîte et les composantes de son dipôle dans un fil et les composantes des modes HE_{11}^{x} et HE_{11}^{y} 77
3.20 Taux d'émission spontanée en fonction de la position de l'émetteur 78
3.21 Taux d'émission spontanée total en fonction de la position de l'émetteur 79
3.22 Facteur de couplage en fonction de la position de l'émetteur 79
3.23 Polarisation en fonction de la position de l'émetteur 80
3.24 Récapitulatif 81
3.25 Réfléctivité des miroirs de Bragg AlGaAs/GaAs suivant le nombre de paires (Lecamp et al) 82

3.26 Fil à miroir de Bragg (Gregersen et al) . . . 82
3.27 Miroir métallique (Friedler et al) . . . 83
3.28 Positionnement de l'émetteur par rapport au miroir (Lalanne et al) . . . 84
3.29 Calcul taper de sortie (Gregersen et al) . . . 84
3.30 Profil de champs en sortie du nanofil (Gregersen et al) . . . 85
3.31 Design complet du nanofil final (Friedler et al) . . . 86
3.32 Echantillon planaire . . . 86
3.33 Méthode de report du miroir métallique . . . 87
3.34 Méthode de gravure des fils . . . 87
3.35 Photo SEM de l'échantillon fils photoniques . . . 88
3.36 Micro-photoluminescence de boîte quantique unique . . . 89
3.37 Taux d'émission spontanée total pour un rayon de 100 nm . . . 90
3.38 Polarisation pour un rayon de 100 nm . . . 91
3.39 Mesures de corrélation sur l'exciton et le biexciton . . . 93
3.40 Schéma de la mesure d'efficacité . . . 95
3.41 Validation de la mesure d'efficacité . . . 96
3.42 Efficacité de la source . . . 97
3.43 Proposition d'un nanofil pompé électriquement . . . 98
3.44 Mesures de temps de vie . . . 100
3.45 Mesures d'inhibition dans les fils photoniques . . . 101

4.1 Quelques cavités à modes de galerie (Vahala et al) . . . 105
4.2 Image MEB d'un microdisque . . . 105
4.3 Expériences de Cao et al . . . 107
4.4 Expériences de Ide et al . . . 107
4.5 Expériences de Michler et al . . . 108
4.6 Expériences de Peter et al . . . 108
4.7 Expériences de Mohideen et al . . . 109
4.8 Expériences sous pompage électrique (Fujita et al) . . . 110
4.9 Profil d'intensité du champ électromagnétique . . . 111
4.10 Echantillon planaire à modes de galerie . . . 111
4.11 Courbe de gain . . . 112
4.12 Spectre de micro-photoluminescence avant et après retrait du masque de Ni . . . 113
4.13 Schéma du montage d'excitation . . . 114
4.14 Séries de mesures en puissance sur trois piliers de diamètres différents . . . 115
4.15 Spectres de mesures en puissance pour un pilier de 4 μm . . . 116
4.16 Seuil laser, caractéristiques P_{in}/P_{out} . . . 117
4.17 Evolution en puissance des facteurs de qualité . . . 118
4.18 Décalage spectral des modes en fonction de la puissance . . . 120
4.19 Décalage spectral en fonction de la température . . . 121
4.20 Expériences de Bordas et al . . . 122
4.21 Spectres en puissance pour un pilier de 4 μm à 100K . . . 122
4.22 Processus élémentaires du modèle à deux niveaux . . . 124
4.23 Caractéristiques calculées pour plusieurs valeurs de β . . . 126
4.24 Ajustement de la caractéristique P_{in}-P_{out} . . . 128
4.25 Ajustement des largeurs de raies . . . 128
4.26 Emission spontanée dans un modèle à 4 niveaux . . . 129
4.27 Caractéristiques calculées pour plusieurs valeurs de β avec les deux modèles . . . 132

4.28 Ajustement de la caractéristique P_{in}-P_{out} 133
4.29 Echantillons à modes de galerie envisagés pour l'avenir sans Bragg 134
4.30 Echantillons à modes de galerie envisagés pour l'avenir avec Bragg 134
4.31 Schéma du montage d'excitation possible 135

A.1 Guide d'ondes métallisé 139
A.2 Relation de dispersion 140
A.3 Nombre des modes contrôlés 141
A.4 Miroir de Bragg métallisé 142
A.5 Proportion des modes contrôlés 143

Résumé

Ce travail de thèse aborde le contrôle de l'émission spontanée d'émetteurs, ici des boîtes quantiques d'InAs, confinées via des microstructures originales : des fils photoniques GaAs et des micropiliers à miroirs de Bragg GaAs/AlAs.

Ainsi, nous présentons une source de photons uniques de très haute efficacité à fil photonique. Les mesures de corrélation réalisées sur une boîte quantique unique insérée dans un fil photonique a permis de montrer la génération très propre et large bande de photons uniques. C'est l'optimisation de cette géométrie incluant un miroir original au pied du fil et la présence d'une pointe de forme conique à son extrémité, qui a permis d'obtenir une efficacité record de 70%. De plus, l'étude systématique de temps de vie de boîtes quantiques uniques montre la possibilité d'observer avec cette géométrie une forte inhibition de l'émission dans les modes non-guidés.

La dernière partie de ce manuscrit met en évidence l'effet laser dans des micropiliers à modes de galerie. Ces modes de galerie présentent un comportement relativement stable en longueurs d'ondes ainsi qu'un affinement spectral se maintenant jusqu'à sept fois le seuil laser. Ce résultat confirme une meilleure stabilité thermique des micropiliers par rapport à la géométrie habituellement utilisée pour observer les modes de galerie : les microdisques.

Mots-clés: contrôle de l'émission spontanée, épitaxie par jets moléculaires III-As, boîtes quantiques, fils photoniques, micropiliers, sources de photons uniques, modes de galerie, effet laser.

Abstract

This study deals with the control of spontaneous emission, InAs quantum dot emitters, confined via original microstructures : GaAs photonic wires and micropillars with GaAs/AlAs Bragg mirrors.

We present a higly efficient single-photon source based on a photonic wire. Correlation mesurements performed on a single quantum dot inserted in a photonic wire led to a pure and high broadband single-photon generation. The optimization of this geometry including an original mirror at the wire bottom and a taper at its top demonstrated a record efficiency of 70%. In addition, the systematic lifetime study of single quantum dots underlined the ability to observe a high inhibition of spontaneous emission in the leaky modes with this geometry.

In the last part of this PhD Thesis, we show the laser effect in whispering gallery mode micropillars. Those modes have an almost stable behaviour in terms of wavelengh and a spectral narrowing maintained up to power corresponding to 7 times the laser threshold. This result confirms a better thermal stability of micropillars compared to microdisks, a geometry usually used to observe the whispering gallery modes.

Keywords: control of spontaneous emission, molecular beam epitaxy III-As, quantum dots, photonics wires, micropillars, single photons sources, whispering galery modes, laser effect.