



HAL
open science

Sources à boîtes quantiques semiconductrices pour la nanophotonique et l'information quantique aux longueurs d'onde des télécommunications

David Elvira Antunez

► **To cite this version:**

David Elvira Antunez. Sources à boîtes quantiques semiconductrices pour la nanophotonique et l'information quantique aux longueurs d'onde des télécommunications. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112150 . tel-00750816

HAL Id: tel-00750816

<https://theses.hal.science/tel-00750816>

Submitted on 26 Nov 2014

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

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



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

Discipline : Physique.

Spécialité : Ondes et matière - École Doctorale 288

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

présentée et soutenue publiquement par :

David ELVIRA

le 17 Septembre 2012

**Sources à boîtes quantiques semiconductrices pour
la nanophotonique et l'information quantique aux
longueurs d'onde des télécommunications**

devant le jury composé de :

| | |
|--------------------------|--------------------|
| Philippe Boucaud | Président du jury |
| Valia Voliotis | Rapporteur |
| Elyahou Kapon | Rapporteur |
| Alexia Auffeves | Examineur |
| Alexios Beveratos | Encadrant (Invité) |
| Isabelle Sagnes | Directeur de thèse |

A mon oncle Manu

Une théorie nouvelle ne triomphe jamais. Ce sont ses adversaires qui finissent par mourir.

Max PLANCK

Remerciement

Je voudrais en premier lieu remercier Valia VOLIOTIS et Eli KAPON pour m'avoir fait l'honneur de rapporter ce travail de thèse. Je tiens également à remercier Alexia AUF-FEVES et Philippe BOUCAUD d'avoir accepté de faire partie de mon jury. Je remercie également Isabelle Sagnes, ma directrice de thèse, pour avoir supervisé ce travail.

Ce travail a été effectué au laboratoire de photonique et de nanostructure à Marcoussis, je tiens donc à remercier Jean-Yves MARZIN de m'y avoir accueilli. Je remercie finalement l'université Paris Sud 11 d'avoir financé mon travail de thèse.

Lors de l'écriture du manuscrit de thèse, on se dit qu'on aimerait bien être au moment d'écrire les remerciements, que c'est le plus facile et le plus court. Puis ce jour arrive enfin et là on se rend compte que la tâche s'avère être bien plus difficile qu'il n'y paraît. On se retrouve devant son ordinateur, et puis.....rien....et là on repense aux trois ans de thèse passés un peu mélancoliquement et on se rend compte des merveilleux moments passés et des personnes qui y ont contribué, alors on se met à écrire et on obtient quelque chose comme ca....

Tout a commencé lors de mon premier cours de détecteur lors de mon master 2, le professeur, ou plutôt la professeur, commence à nous parler de jonction PID et là un petit débat entre nous commence. Environ 45 minutes plus tard et après avoir largué la totalité de la promotion on décide de revenir au cours et de continuer ce débat à la fin du cours. A ce moment là je ne savais pas trop ce que je ferai après mon M2, mais ce débat puis la petite discussion d'après cours avait attisé ma curiosité pour ce petit laboratoire, que je ne connaissais pas, reclut dans la campagne lointaine de MARCOUSSIS....Cette prof qui m'a donné l'envie de faire cette thèse et sans qui je n'aurais jamais pu faire ce travail c'est Isabelle ROBERT, il est donc tout naturel pour moi qu'elle figure en premier lieu sur ces remerciements ; Sa gentillesse et sa passion pour les semi-conducteurs m'ont fait craquer. Je tiens à la remercier pour tout ce qu'elle a fait pour moi, entre démarches administratives pour l'obtention de ma bourse, combat au quotidien pour que je puisse faire mes manipulations dans les meilleures conditions et son aide précieuse pour la rédaction des articles et de ce manuscrit. Plus qu'une responsable durant ces trois ans je veux ici lui rendre un hommage tout particulier....Merci Isa pour tout je n'oublierai rien....

Pour en revenir à mon histoire, une fois ma décision prise de faire ma thèse au LPN avec Isabelle Robert, elle m'apprend que mon professeur de laser que j'aurais dans quelques semaines me coencadrera avec elle...c'est là que je fis la connaissance d'Alexios BEVERATOS, au départ de contact plus réservé et plus discret. Un petit moment d'angoisse m'avait envahi, puis mon stage débute, et il sera majoritairement là avec moi sur tous les aspects

manips....Au fur et à mesure que le temps passait, et que j'apprenais à le découvrir je me rendis compte que derrière ce personnage se cache en réalité une personne d'une rare intelligence avec plus d'idées à la seconde que le super calculateur d'IBM...Difficile à suivre, il a été un moteur pour moi durant ces trois ans, là dans mes grands moments de stress et d'angoisse de la deuxième année ainsi qu'un excellent encadrant pour canaliser mes idées et m'aider à ne pas faire fausse route... Il a su trouver les bons mots à chaque moment pour me permettre de donner le meilleur de moi-même à chaque instant... Je ne me voyais pas non plus faire ces remerciements sans mettre une note toute spéciale pour lui. Alexios, je tiens à te remercier pour tout ce que tu as fait pour moi, tu sais bien que comme toi je ne suis pas très expressif sur mes sentiments, mais c'est le moment où jamais pour te dire tout le bien que je pense de toi et à quel point tu es un homme génial, ne change rien reste comme tu es et bonne chance pour la suite, et je te dis à très bientôt car maintenant je suis fier de pouvoir te compter parmi mes amis....

Une fois arrivé au labo, je fis la connaissance d'un thésard stressé qui devait rédiger mais qui résistait encore et toujours à l'écriture et qui ne voulait pas laisser la manip, j'ai nommé Richard HOSTEIN. Mon sujet de thèse, en parfaite continuité avec la sienne, devait donc débiter par un stage dans lequel Richard tel maître YODA devait transmettre au jeune padawan que j'étais le maximum de ses connaissances. Ma curiosité et sa maîtrise du sujet ont permis de tisser entre nous une relation qui est rapidement passée de maître/disciple à ami. Je tiens donc à te remercier tout particulièrement Richard pour tout ce que tu m'as appris, grâce à toi j'ai pu débuter ma thèse dans les meilleures conditions. Je tiens à te remercier également pour ton amitié qui m'est chère et pour tout ce que tu m'as apporté...

Très vite durant mon stage je me suis vu submergé d'échantillons, étant arrivé à un moment où le bâti de croissance venait de redémarrer il fallait redéfinir les nouveaux paramètres optimaux pour la croissance. A l'origine de ces échantillons, une femme un peu hors du commun au premier abord et qui plus est serait ma directrice de thèse : Isabelle SAGNES. Jamais auparavant je n'avais vu une personne capable de mener simultanément autant de dossiers, elle arrive à gérer des dizaines de dossier, de projets en même temps et quand tu vas la voir pour en parler en quelques seconde elle parvient à tout te résumer... Durant ma thèse elle a suivi tous mes travaux avec grand intérêt même si l'optique ne faisait pas partie de ses spécialités (quoique j'ai connu des opticiens bien moins calés qu'elle sur bien des sujets durant cette thèse...). Toujours prête à faire des échantillons, de la techno...ou tout ce dont j'avais besoin quelque soit l'heure... Je tiens donc ISA a te remercier pour tout cela, pour ton grand coeur, pour ta générosité et pour tout ce que tu m'as apporté durant ces 3ans. Tu as souvent fait le travail de l'ombre qui n'est pas mis en valeur dans ce manuscrit, mais je sais à quel point tu as été indispensable sur bien des points. Tu as tout fait pour que je puisse obtenir mon financement, pour que ma thèse se déroule au mieux et je t'en remercie grandement...

Après quelques semaines au laboratoire, j'apprends qu'un thésard polytechnicien devait arriver pour faire une thèse parallèle à la mienne, même objectif (ok plus ou moins !!) sauf qu'il ferait tous les aspects structuraux.... Une fois arrivé je rencontre un drôle de bonhomme nommé Bruno FAIN, assez timide, très curieux, peu bavard et QUI N'A PAS DE M2 (désolé je devais le mettre i ... Petit moment d'angoisse, en effet comment travailler 3ans avec un type comme ça?...Puis le temps passant, sa réelle nature a pu voir le jour. Avec Bruno nous avons pu développé une amitié qui avec le temps s'est renforcée jusqu'à

atteindre un niveau fraternel. Mon petit lapin, (et oui j'ose :D) je tiens à te remercier pour tout ce que tu m'as apporté, ces heures de discussion importantes dans le bureau, chez nous ou à Nançay. Merci pour ton amitié et j'espère franchement qu'elle durera longtemps, en tout cas tu as pour toujours une place particulière dans mon coeur!!

Pour terminer cette histoire, durant ma thèse, deux personnes sont arrivées et on vraiment permis à ce travail de prendre une autre dimension. En premier lieu il s'agit d'Izo ABRAM, dont la sagesse et la grande connaissance de la physique m'ont permis d'enrichir ce travail. De plus, sa maîtrise des concepts théoriques de la physique a permis l'élaboration d'un modèle permettant d'expliquer la dynamique d'émission de l'exciton. Je tiens donc à te remercier Izo pour l'apport théorique important que tu m'as apporté, pour les nombreuses discussions scientifiques qui m'ont grandement éclairé sur bien des points et surtout pour la patience dont tu as dû faire preuve avec moi. Merci également pour ta gentillesse, ta bonne humeur et ton sourire perpétuel qui de manière inconsciente m'ont toujours remotivé. La deuxième personne est Xavier HACHAIR, dont l'histoire a été particulièrement difficile...Mais dans mon cas ta grande connaissance des lasers ainsi que ton aide précieuse sur les manips de cohérence d'ordre 3 et 4 réalisées aux états unis m'ont permis de comprendre la physique de ces nanolasers, et le chapitre 4 de ce manuscrit n'aurait pas été aussi riche sans les nombreuses discussions que nous avons mené et surtout sans ton aide. Je te remercie également pour ces bons moments amicaux passés à faire des photos et à se détendre. Ces moments sont des bonnes bouffées d'air qui permettent vraiment de mieux s'y remettre par la suite. Merci pour tout ce que tu m'as apporté.

Mais durant cette thèse de nombreuses personnes sont à remercier, et si je fais aussi long pour chacune, les remerciements risquent d'être plus longs que le manuscrit je vais donc faire plus court.

Je tiens à remercier Jean-Yves MARZIN, directeur du LPN de m'avoir accueilli au laboratoire et de m'avoir permis d'y faire ce travail de thèse.

Je remercie également Rémy BRAIVE pour tout ce qu'il a apporté à ce travail. Je te remercie pour tous ces échantillons que tu as pu me faire et ces longues heures d'étapes technos que tu as faites pour moi, et parfois pour rien...

Je remercie aussi les thésards du bureau de la mezzanine et tout particulièrement Maia BRUNSTEIN et Armand LEBRETON pour les riches conversations et les moments de détente appréciables dans les moments de pression.

Je remercie également Jean Marie MOISSON d'avoir partagé avec moi son bureau le temps de mon stage, mais aussi pour tous les bons moments passés à la cantine. Je remercie aussi le groupe PEQ pour tous les bons moments, Robert, Sylvain et Nadia.

Je remercie l'ensemble du groupe PHOTONIQ et en particulier Rama, Fabrice, Alejandro, Ariel, Patricio et Alexandre pour les discussions intéressantes concernant le dépannage de matériel optique et pour tout le reste...

Je remercie également l'ensemble des acteurs de la salle blanche qui ont contribué à ce travail et en particulier Grégoire BEAUDOIN, sans qui je pense la plupart des échantillons n'auraient pas été faits! (tant en croissance qu'en or électrolytique!) Merci à toi! Je

remercie également Luc LE GRATIET pour toute sa contribution en techno, et tout ceux qui ont contribué en salle blanche à ce travail.

Je tiens à remercier particulièrement Gilles PATRIARCHE pour l'ensemble de ces clichés STEM pour les riches discussions scientifiques et sur la fin de la thèse pour ces encouragements et d'avoir su trouver les mots qu'il fallait la veille de mon oral pour me déstresser....MERCI à toi...Je remercie aussi Ludovic LARGEAU pour sa contribution à ce travail et surtout pour ses bonnes blagues à la machine à café :D.

Je remercie également Jean Christophe GERARD pour les études STM menées avec Bruno qui ont permis de confirmer la présence d'un grand nombre d'états dans ces boîtes !

Je remercie également Paul MONNIER pour ces nombreuses interventions sur les lasers, qui m'ont permis à chaque fois de ne pas perdre un temps précieux!!

Je remercie aussi le service administratif du laboratoire et en particulier, Marina, Dorothé et Agnes. Patrick HISOPE pour les commandes d'hélium, le service informatique et particulièrement Mehdi pour les nombreuses interventions.

Petit moment d'angoisse, la peur d'oublier quelqu'un...si jamais j'ai oublié quelqu'un du labo je m'en excuse d'avance c'est un oubli purement fortuit....

A l'extérieur du LPN je tiens à remercier tout particulièrement Philippe LALANNE et Jean Paul HUGONIN de l'institut d'optique, je vous remercie pour les discussions qui m'ont permis de comprendre les cavités plasmoniques, pour vos simulations qui ont permis de rendre compte des effets induits par le métal sur mes nanopilliers. Merci d'avoir passé toutes ces heures pour ces calculs.

Je tiens également à remercier chaudement Marty STEVENS et toute l'équipe du NIST qui m'ont accueillis durant 15 jours à Boulder (Colorado, USA), les résultats obtenus ont permis de faire avancer la compréhension des nanolasers et ont grandement enrichi ce travail je vous en remercie.

D'un point de vue plus personnel je tiens à remercier mes amis du basket et plus particulièrement deux d'entre eux. Je te remercie Léonard pour ton amitié, ton stage au LPN, ta gentillesse et ces longueurs sur skype à m'écouter me plaindre de mon travail. Tu as été là quand il fallait je t'en remercie ! Je te remercie également pour ces longues heures passés sur SC2 qui m'ont permis de bien faire le vide le soir après ces longues journées de travail. Je remercie également Pierre pour ton amitié, tu es mon meilleur pote tu as été là, tu sais de quoi je parle voila ;).

Je tiens à remercier également Dora pour tout ce qu'elle a fait pour moi/nous durant toute ma scolarité, même si la vie a été dure pour toi tu as su toujours tout faire pour nous alors que nous sommes juste amis. Je te remercie également pour ce magnifique gâteau que tu m'as fait, il était merveilleux et délicieux...Merci pour tout et je te souhaite vraiment beaucoup de bonheur!!!

Je tiens à remercier également très chaleureusement ma famille, et surtout mes pa-

rents qui m'ont permis de faire cette thèse dans les meilleures conditions. Durant ces trois ans ils ont tout fait pour que je n'ai à penser qu'à ma thèse, ils se sont occupés de tous les petits tracas de la vie pour moi. Ils m'ont supporté dans mes moments casse pied, m'ont réconforté dans mes moments déprimés. Je vous remercie pour tout ça, malheureusement aucun mot n'est assez fort pour vous remercier pour tout ça...Je tiens également à vous remercier pour mon pot de thèse que ce soit au labo avec l'énorme plateau de fromage ou à la maison avec les spécialités portugaises...Merci pour tout je vous aime...Un remerciement tout particulier également à ma petite soeur Lydie, courage ma grande et merci pour tout !!

Pour conclure ces remerciements, je tiens à remercier mon amie Lucia. En effet, c'est elle qui chaque jour devait supporter mes problèmes de manips, elle a toujours été au premier rang et a tout encaissé durant trois ans. Quand on est dedans on ne s'en rend pas compte mais un thésard c'est vraiment pas facile à vivre et moi tout particulièrement ! Je te remercie donc pour tout ce que tu m'as apporté, ce que tu m'apportes et je le sais m'apportera. Je mesure à quel point j'ai de la chance de t'avoir dans ma vie, et je ne pourrais jamais assez te remercier pour ce que tu as fait pour moi. Merci à toi pour tout ça...

Voilà ce que ça donne des remerciements quand on se lâche un peu, et qu'on se fait plaisir... Je te remercie aussi toi lecteur qui va passer j'espère un bon moment à la lecture de ce manuscrit...

Table des matières

| | |
|---|-----------|
| Remerciement | 4 |
| Introduction | 13 |
| 1 Principes et contexte généraux | 17 |
| 1.1 Source de photons uniques : définitions et systèmes émetteurs | 17 |
| 1.1.1 Caractéristique des sources de photons uniques aux longueurs d’onde des télécommunications | 17 |
| 1.1.2 Inventaire des sources de photons uniques existantes | 18 |
| 1.1.3 Hétérostructures semiconductrices | 21 |
| 1.1.4 Les propriétés optiques de boîtes quantiques | 25 |
| 1.2 Effets d’électrodynamique quantique en cavité en régime de couplage faible | 27 |
| 1.2.1 Approche quantique de l’émission spontanée en espace libre | 28 |
| 1.2.2 Émission spontanée en cavité | 29 |
| 1.2.3 Taux de couplage de l’émission spontanée au mode de la cavité | 30 |
| 1.2.4 Confinement de la lumière | 31 |
| 1.3 Quelles cavités ? | 36 |
| 1.3.1 Micropiliers | 36 |
| 1.3.2 Microdisques | 37 |
| 1.3.3 Cavités à cristaux photoniques sur membrane | 37 |
| 1.3.4 Cavités métalliques et plasmoniques | 38 |
| 1.4 Conclusion | 40 |
| 2 Croissance et caractérisation d’ensembles de boîtes quantiques | 41 |
| 2.1 Croissance par EPVOM et analyse structurale | 41 |
| 2.1.1 Principe de l’EJM : Limite pour la formation des boîtes quantiques sur InP | 41 |
| 2.1.2 Principe de l’EPVOM | 42 |
| 2.1.3 Formations des boîtes quantiques | 43 |
| 2.1.4 Analyse structurale | 45 |
| 2.2 Techniques d’analyses optique | 46 |
| 2.2.1 Interféromètre par transformée de Fourier : le FTIR | 46 |
| 2.2.2 Banc de microphotoluminescence | 46 |
| 2.2.3 Transformation du banc optique vers le $2\mu\text{m}$ | 52 |
| 2.3 Analyse optique des échantillons jusqu’à $2.3\mu\text{m}$ | 52 |
| 2.3.1 Étude préalable par FTIR | 52 |
| 2.3.2 Étude en μPL : Analyse spectrale et durée de vie | 53 |
| 2.4 Conclusion | 59 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 3 | Étude sur boîte quantique unique : Vers une source de photons uniques | 61 |
| 3.1 | Du choix de l'échantillon à l'isolation d'une boîte unique | 61 |
| 3.1.1 | Choix de l'échantillon | 61 |
| 3.1.2 | Comment isoler quelques boîtes : la gravure de mesas | 62 |
| 3.1.3 | Étude de l'échantillon : de l'optique au structural | 65 |
| 3.1.4 | Deux comportements d'émission distincts : la frontière à 1400nm. | 67 |
| 3.1.5 | Choix des raies à étudier | 68 |
| 3.2 | Étude à 4K en fonction de la puissance d'excitation | 68 |
| 3.2.1 | Étude en excitation pulsée | 68 |
| 3.2.2 | Étude en régime d'excitation continue | 73 |
| 3.2.3 | Étude résolue en temps | 76 |
| 3.2.4 | Conclusion | 84 |
| 3.3 | Étude en fonction de la température | 84 |
| 3.3.1 | Étude spectrale | 84 |
| 3.3.2 | Étude de la durée de vie. | 89 |
| 3.3.3 | Conclusion | 91 |
| 3.4 | Mesure d'autocorrélation sur boîte unique | 91 |
| 3.4.1 | Mesure de corrélation de photons | 91 |
| 3.4.2 | Dispositif expérimental de type Hanbury-Brown et Twiss | 92 |
| 3.4.3 | Vers une source de photons uniques | 93 |
| 3.5 | Conclusions | 95 |
| 4 | Les cavités à cristaux photoniques comme outil pour sonder l'émission des boîtes quantiques. | 97 |
| 4.1 | La cavité optique : Vers une mise en œuvre d'effets d'électrodynamique quantique en cavité | 97 |
| 4.1.1 | Cavités à défauts ponctuels | 97 |
| 4.1.2 | Descriptif de fabrication | 98 |
| 4.1.3 | Les cavités étudiées | 101 |
| 4.1.4 | Influence du rayon et du pas des trous sur la longueur d'onde d'émission : De la simulation à l'expérience | 103 |
| 4.2 | Courbe caractéristique du laser | 105 |
| 4.2.1 | Rappel sur les lasers : milieu à gain homogène ou inhomogène? | 105 |
| 4.2.2 | Mise en évidence de l'effet laser à 300K | 106 |
| 4.2.3 | Largeur de raie : Rappel théorique et mise en place expérimental | 111 |
| 4.3 | Mesures expérimentales | 113 |
| 4.3.1 | Étude des cavités à 300K | 113 |
| 4.3.2 | Étude des cavités en fonction de la température | 118 |
| 4.4 | Étude de la statistique de photons des nanolasers | 124 |
| 4.4.1 | Rappels théoriques | 124 |
| 4.4.2 | Mesures expérimentales | 126 |
| 4.5 | Conclusion | 128 |
| 5 | Les boîtes quantiques en cavités comme sources d'états quantiques. | 129 |
| 5.1 | Cavités plasmoniques contre cavités à cristal photonique | 129 |
| 5.1.1 | Atteindre un confinement à large spectre | 129 |
| 5.1.2 | Dessin de la cavité plasmonique | 130 |
| 5.1.3 | Comparaison entre les deux types de cavités : quel défi à relever? | 131 |
| 5.1.4 | Fabrication | 131 |

| | |
|--|------------|
| <i>Remerciement</i> | 13 |
| 5.1.5 Création du premier échantillon | 133 |
| 5.2 Caractérisation spectrale des cavités | 135 |
| 5.2.1 Étude spectrale des piliers | 135 |
| 5.2.2 Étude spectrale des cavités plasmoniques | 137 |
| 5.3 Étude à 4K : Un effet Purcell ? | 139 |
| 5.3.1 Dynamique des boîtes sans cavités | 139 |
| 5.3.2 Dynamique des boîtes en cavités plasmoniques | 140 |
| 5.3.3 Premières simulations | 142 |
| 5.4 Conclusion et perspective | 146 |
| Conclusion | 146 |
| A La microscopie électronique en transmission | 149 |
| B Présentation des modèles | 153 |
| B.1 Évolution de l'intensité en fonction du nombre de charge dans la boîte : développement du modèle. | 153 |
| B.1.1 Construction du modèle | 153 |
| B.1.2 Évolution de l'intensité en fonction du temps. | 154 |
| B.2 Évolution de la capture des porteurs dans la boîte quantique. | 156 |
| C Communications | 159 |
| C.1 Publications régulières | 159 |
| C.2 Publications de <i>proceedings</i> | 160 |
| C.3 Présentations orales | 160 |
| Bibliographie | 162 |

Introduction

Les boîtes quantiques sont des nanocristaux d'un semiconducteur inclus dans un deuxième semiconducteur de bande interdite plus large. La différence des deux bandes interdites crée des puits de potentiel qui peuvent confiner les porteurs de charge (électrons et trous) dans les boîtes. Les boîtes quantiques sont souvent formées par croissance auto-assemblées [1-6] mais peuvent aussi être fabriquées dans certains cas par gravure et lithographie. La réalisation et l'étude optique de boîtes quantiques individuelles, a permis l'observation des premiers effets du confinement tridimensionnel des porteurs tels que que la séparation nette des niveaux d'énergie [7, 8], l'émission quasi-monochromatique à basse température [2] et des effets coulombiens marqués [9] : les niveaux électroniques des boîtes quantiques seraient ainsi comparables à ceux des atomes. Les boîtes ouvrent donc la voie, en matière condensée [5, 10, 11], à des applications habituellement réservées aux systèmes atomiques [12-16] tout en offrant une plus grande facilité de miniaturisation ainsi qu'une intégration plus aisée. Parmi les applications envisageables, on peut citer l'obtention de sources de photons uniques [11, 17-21], de photons indiscernables, de photons intriqués [17, 18] ou la manipulation de bits quantiques [22, 23].

Concernant à la manipulation de bits quantiques, l'idée est de créer des ordinateurs basés non plus sur la manipulation de "bits" classiques (0 ou 1) mais sur des états quantiques en superposition (0 et 1). Ces "bits" quantiques ont, comme les bits classiques, deux états accessibles, mais, ils peuvent, de plus, exister dans n'importe quelle superposition de ces deux états. Cette superposition pourrait ensuite être exploitée pour réduire considérablement le temps de calcul nécessaire à la résolution de certains problèmes en utilisant des algorithmes spécifiques (par exemple, l'algorithme de Shor pour la factorisation de grands nombres entiers, problème crucial pour la cryptographie) [25].

Dans les boîtes quantiques, deux possibilités sont ouvertes pour constituer les "bits" quantiques élémentaires : on pourrait soit manipuler le spin d'un électron [22] résidant dans la boîte soit manipuler une paire électron-trou photocréée dans la boîte. La limite physique de ces dispositifs est alors imposée par le temps de relaxation de la cohérence du spin dans le premier cas et de la paire électron-trou dans le deuxième cas. Le temps est noté T_2 . La manipulation cohérente des états, nécessaire au calcul quantique n'est plus possible au delà du temps T_2 . Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes plutôt intéressés aux boîtes en tant que sources d'états quantiques de la lumière pour des applications en cryptographie quantique.

Les sources de photons uniques fondées sur les propriétés d'émission d'un seul dipôle isolé sont très recherchées dans ce domaine. Une communication sûre serait en effet obtenue grâce à l'utilisation d'une telle source optique émettant un train d'impulsions ne

contenant chacune qu'un et un seul photon [24]. Un espion ne pourrait alors obtenir l'information transmise sans être repéré puisqu'une mesure sur un système quantique unique modifie obligatoirement son état. Ces sources seraient ainsi une avancée considérable par rapport aux sources classiques atténuées dont l'émission est constituée statistiquement de zéro, un, deux ou plusieurs photons.

Dans ce contexte, la fabrication d'une source de lumière quantique qui pourrait utiliser le système des télécommunications fibrés est un objectif majeur. Pour cela il est indispensable de créer une source de photons uniques émettant à $1.55\mu\text{m}$, longueur d'onde correspondant au minimum d'absorption des fibres optiques utilisées dans les télécommunications. Dans cette perspective, plusieurs équipes se sont mis à étudier les boîtes quantiques épitaxiées en InAs ou InAsP sur des substrats d'InP. Ce système prometteur peut atteindre des longueurs d'onde des télécommunications et même des longueurs d'ondes supérieures à $2\mu\text{m}$.

Ce travail de thèse illustre les développements les plus récents sur les boîtes quantiques InAsP/InP, avec comme objectif de démontrer clairement que ce système permet d'émettre des photons uniques. Le but de cette thèse est la réalisation de sources de photons uniques aux longueurs d'onde des télécommunications. Ces sources consistent de boîtes quantiques placées dans des cavités optiques adaptées afin d'exploiter des effets d'électrodynamique quantique qui permettent d'exalter l'émission de photons par les boîtes.

Dans un premier chapitre nous poserons le contexte général dans lequel s'inscrit ce travail de thèse. Nous introduirons la physique des boîtes quantiques et les notions fondamentales d'électrodynamique quantique en cavité. Ces notions seront utiles pour la compréhension du reste du manuscrit.

Dans le second chapitre, nous présenterons la croissance des boîtes quantiques. Ce chapitre permettra de poser les bases des protocoles expérimentaux et il se conclura par une étude spectrale et dynamique de boîtes quantiques émettant à des longueurs d'onde allant jusqu'à $2.3\mu\text{m}$.

Le troisième chapitre comportera une étude spectroscopique sur des boîtes uniques. Nous démontrerons la présence d'excitons et de biexcitons dans le système InAs/InP. L'étude résolue en temps nous permettra de démontrer de manière indirecte la cascade radiative grâce au décalage temporel de l'émission. Ensuite une étude en fonction de la température permettra de démontrer le bon maintien du comportement radiatif du système jusqu'à des températures de 80K. Le chapitre se conclura par une expérience de dégroupement de photons, preuve de l'émission de photons uniques.

Le quatrième chapitre utilisera des cavités à cristaux photoniques pour sonder la nature de l'émission des boîtes quantiques en régime d'émission stimulée (laser) et à température ambiante. Il aura pour but de répondre à la question de la nature homogène ou inhomogène de l'émission des boîtes. La question de la cohérence de l'émission laser sera également posée.

Le cinquième chapitre présentera les études préliminaires menées sur des cavités plasmoniques. Ces cavités induisent une accélération de l'émission spontanée large bande, ce qui permet de s'affranchir de l'accord spectral. Ces cavités disposent également d'une forte extraction verticale. Ainsi elles présentent des avantages pour l'étude fine des raies d'émission des boîtes uniques.

Chapitre 1

Principes et contexte généraux

L'étude de l'émission de photons uniques fut tout d'abord motivée par l'observation de processus fondamentaux en mécanique quantique. C'est à partir des années 1990 que s'est véritablement développée l'idée d'utiliser des sources de photons uniques en vue d'applications technologiques. L'utilisation de telles sources dans le domaine des télécommunications quantiques sécurisées a permis de motiver les recherches grâce notamment à la validation des protocoles de cryptographie quantique [27,28]. Aujourd'hui, c'est un sujet qui motive de nombreux groupes dans le monde avec des systèmes matériels très différents : centres colorés du diamant [29,30], molécules [31-33], boîtes quantiques [18,20,34]...

Dans la première partie de ce chapitre, nous reviendrons sur la définition d'une source de photons uniques ainsi que sur les caractéristiques nécessaires afin de l'utiliser dans les télécommunications quantiques. Dans la seconde partie, il sera discuté du choix du système émetteur, car il constitue un des enjeux majeurs pour l'obtention d'une telle source. La troisième partie introduira les effets d'électrodynamique quantique en cavité en général indispensables pour accroître les performances des sources développées à partir de centres émetteurs individuels.

1.1 Source de photons uniques : définitions et systèmes émetteurs

Une source de photons uniques est capable d'émettre à la demande une impulsion contenant un et un seul photon. C'est à dire que la probabilité P_1 d'émettre un photon par impulsion vaut 1 et que la probabilité $P_{\geq 2}$ d'émettre plus de deux photons est nulle. Un des enjeux aujourd'hui est le développement de telles sources aux longueurs d'onde des télécommunications, afin de pouvoir déployer des dispositifs de cryptographie quantique via le réseau fibré.

1.1.1 Caractéristique des sources de photons uniques aux longueurs d'onde des télécommunications

La première contrainte à laquelle est soumise une source de photons uniques pour les télécommunications est celle des bandes de longueurs d'onde utilisées dans les réseaux des télécommunications à fibres optiques, qui sont :

- La bande-C de 1.530 μm à 1.565 μm

- La bande-E de $1.36 \mu\text{m}$ à $1.46 \mu\text{m}$
- La bande-O de $1.26 \mu\text{m}$ à $1.36 \mu\text{m}$

Une telle source devra idéalement délivrer des photons uniques à la demande en opérant si possible sous pompage électrique et à la plus haute température possible à minima 77K . Enfin, le dernier point est le débit de la source. En effet, afin de transférer des informations, il est indispensable qu'une telle source ait une cadence GHz ce qui implique d'avoir une durée de vie radiative inférieure à la nanoseconde. Ces caractéristiques sont résumées dans le tableau 1.1.

| Longueur d'onde | Statistique d'émission | Débit | Température | Type de Pompage |
|---------------------------------------|---|-------|-------------------|---------------------------|
| $1.3\mu\text{m}$ $1.55\mu\text{m}$ | $P_1 \simeq 1$ et $P_{\geq 2} \simeq 0$ | GHz | $\geq 77\text{K}$ | Électrique si possible |

Tableau 1.1 – *Caractéristiques idéales d'une source de photons uniques pour les télécommunications quantiques sur fibre.*

Pour réaliser une source de photons uniques, la solution la plus simple est l'utilisation d'un système émetteur à deux niveaux [26]. Porté dans son état excité (par pompage optique ou électrique), il relaxe ensuite dans son état fondamental en émettant un photon unique. Il restera dans son état fondamental jusqu'à ce qu'il soit à nouveau promu dans son état excité. La figure 1.1 illustre ce processus d'émission.

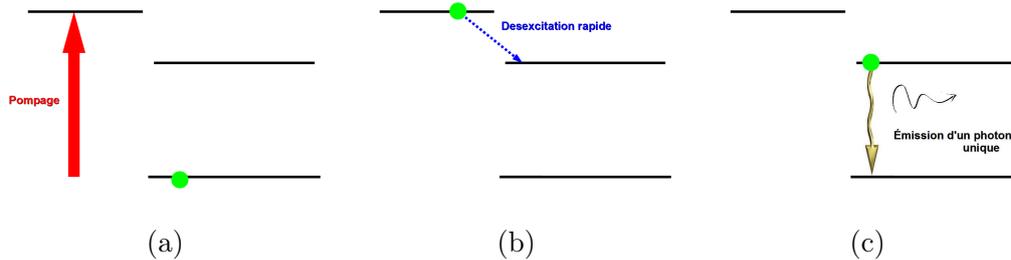


FIGURE 1.1 – *Principe de l'émission de photon unique par un système à deux niveaux avec un troisième niveau de pompe. (a) Pompage : le dipôle est porté à un niveau excité. (b) Désexcitation rapide du niveau excité vers le premier niveau excité (c) Le dipôle retourne sur le niveau fondamental en émettant un seul photon.*

L'enjeu pour créer une telle source est donc d'isoler un tel dipôle. Différentes solutions peuvent être envisagées.

1.1.2 Inventaire des sources de photons uniques existantes

Pour parvenir à isoler un dipôle unique, plusieurs approches sont poursuivies. On peut mentionner le recours à :

- Des ions ou molécules [31-33]
- Des défauts dans les cristaux de diamant [29, 30]
- Des boîtes quantiques [18, 20, 34]

Atomes et ions

Les atomes sont à l'origine des premières mesures de photons uniques. En 1977, Kimble a été le premier à observer le phénomène de dégroupement de photons (démon-

tration qu'un photon unique arrivant sur une lame semi-réfléchissante ne peut être à la fois transmis et réfléchi) en utilisant un jet atomique d'atomes de Sodium [12]. Cependant, la statistique des atomes restait poissonnienne à cause de leur mouvement. L'expérience a été reprise en 1983, toujours avec un jet d'atomes de sodium, cette fois sous-poissonnien [35]. En 1987, l'expérience a été menée avec un ion unique piégé [36]. Cette fois, un seul émetteur est isolé, mais ces expériences nécessitent un important dispositif expérimental, difficile à mettre en œuvre en pratique.

Molécules

À partir des années 90, les molécules suscitent un intérêt croissant pour la génération de photons uniques. En effet, leurs caractéristiques chimiques sont généralement bien connues et l'isolation d'un faible nombre de molécules dans des matrices solides est facilement réalisable. De plus, la génération de photons uniques à température ambiante avec les molécules semble être possible. Les premières expériences de dégroupement de photons ont été faites en 1992 sur des molécules de pentacène dans une matrice de para-terphényl, refroidies à 1.5 K sous excitation continue [31]. Par la suite, ce système est utilisé en 1999 pour réaliser cette fois-ci une source de photons à la demande [37]. En parallèle de ces expériences, en 1996, la molécule d'Oxazine 720 a également été utilisée [38] pour mener la première expérience de photons uniques sous excitation impulsionnelle à 10K. Enfin, plus récemment, des travaux font état de sources de photons uniques à la demande à température ambiante [32].

Cependant, le défaut majeur des molécules à température ambiante est leur manque de photostabilité. Toutes ces molécules subissent sous excitation optique une transformation chimique irréversible et ce après avoir émis un nombre fini de photons (de l'ordre de 10^6). Ce phénomène est connu sous le nom de photoblanchiment, et intervient généralement après quelques millisecondes d'excitation à saturation. Cependant, à basse température, les molécules deviennent plus stables. L'autre problème avec ce système est la longueur d'onde d'émission. La majorité des molécules ont des longueurs d'ondes comprises entre 400 et 600nm, ce qui ne convient pas pour l'utilisation dans les télécommunications fibrées.

Sources solides

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

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

Les centres colorés du diamant

Le diamant est naturellement riche en centres colorés. On en dénombre plusieurs milliers optiquement actifs, répartis principalement dans le visible et proche infra-rouge. Ces centres colorés sont produits par la présence d'un défaut dans la maille cristalline, comme par exemple la substitution d'un atome de carbone par un atome d'azote (N) et d'un site vacant (V) pour le centre "NV". Son avantage est sa photostabilité intrinsèque à température ambiante. Sa durée de vie de l'ordre de 11 ns permet un taux de répétition jusqu'à 10 MHz, et son efficacité quantique est proche de un [29, 39]. L'existence de centres NV individuels dans le diamant massif a été mise en évidence expérimentalement en 1997 [40] et 1999 [41], mais sans observer de signature de dégroupement. Depuis, de nombreux travaux [42, 43] ont démontré expérimentalement des protocoles de cryptographie quantique en utilisant ces centres actifs. Néanmoins, l'inconvénient majeur de ce dispositif réside dans la longueur d'onde d'émission (637 nm) et le débit d'information inférieur à 10 MHz. Enfin, ces centres présentent une largeur homogène relativement grande (environ 50 nm), ce qui pose un problème d'étalement spectral si on envisage une transmission fibrée.

Les nanocristaux colloïdaux

Il existe une famille de centres émetteurs semiconducteurs, que l'on peut manipuler à température ambiante, comme par exemple les nanocristaux de CdSe. Ces cristaux de CdSe, d'environ 3 nm de diamètre, sont entourés d'une "coquille" de ZnS. Ces objets se comportent comme des boîtes quantiques et sont assimilables à des atomes artificiels (voir paragraphe suivant). La lumière émise présente la signature de dégroupement de photons [20, 44]. Cependant, l'émission d'un nanocristal de CdSe présente un clignotement [45] de grande période (de quelques minutes à plusieurs heures) attribué à des mécanismes complexes d'ionisation et d'effets Auger [46, 47]. Tant que ces clignotements ne seront pas compris et éliminés, ils constitueront un obstacle à l'utilisation des nanocristaux de CdSe en tant que source de photons uniques. Soulignons que l'augmentation de l'épaisseur de la coquille peut résoudre ce problème [48]. De plus, les nanocristaux émettent généralement dans le visible (du visible au proche Infra Rouge (IR) suivant leur taille). Si le positionnement de ces nanocristaux à la surface d'un cristal photonique permet d'augmenter la collection du signal [49], la mise en œuvre de ce type de source dans des réseaux de télécommunications reste tout de même limitée.

Les boîtes quantiques auto-assemblées

Les travaux précurseurs de J.Y. Marzin [1] en 1985 ont permis la découverte des boîtes quantiques auto-assemblées. Le terme auto-assemblée provient de la formation spontanée des boîtes quantiques à la surface du substrat semi-conducteur. La formation des boîtes quantiques consiste en l'insertion d'un nanocristal d'un semi-conducteur de faible bande interdite dans un deuxième semi conducteur de plus grande bande interdite. Le mécanisme de croissance d'une telle structure sera décrit dans le chapitre 2. La quantification des niveaux électroniques au sein de la

boîte permet en première approximation de l'assimiler à un dipôle à 2 niveaux ou un atome artificiel. Les boîtes quantiques présentent de bonnes caractéristiques à basse température (4K) et certaines même jusqu'à 130K, et contrairement aux molécules, elles sont photostables. La durée de vie du niveau excité est de l'ordre de la nanoseconde. Il a été démontré la possibilité d'insérer une boîte au sein d'une microcavité et d'observer un régime de couplage fort [34, 50] ou couplage faible [51].

Le système InAs/GaAs épitaxié par EJM (pour Épitaxie par Jet Moléculaire) est étudié depuis des années. Le système InAs/GaAs a permis au cours de ces 20 dernières années d'étudier et de comprendre les mécanismes d'émission des boîtes quantiques ainsi que de nombreux effets quantiques comme le dégroupement de photons pour la réalisation de sources de photons uniques [18, 20], sources de photons indiscernables [59], etc. Toutefois, le système InAs/GaAs ne permet pas d'accéder aisément à la plage spectrale des télécommunications sur fibre. C'est pourquoi, récemment au sein du laboratoire, il a été décidé de développer la croissance de boîtes InAs/InP par EPVOM (pour Épitaxie en Phase Vapeur aux OrganoMétalliques) [57, 58]. Ces boîtes, de plus grande dimension, émettent naturellement dans la plage de longueurs d'onde visée. Le système InAs/InP étant encore un système récent, la physique qui gouverne ses propriétés radiatives soulève de nombreuses questions, tant sur leur processus de croissance que sur leurs propriétés optiques [52, 54, 55]. C'est pourquoi l'objectif de ce travail de thèse est d'établir les propriétés optiques de ces boîtes à l'échelle de la boîte unique. Il est intéressant de résumer les caractéristiques de ce système.

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

Longueur d'onde : 1.2 μm à 2.3 μm . \rightarrow Possibilité d'atteindre les fenêtres des télécommunications.

Matériaux : Croissance sur substrat InP orienté [001] \rightarrow Possibilité d'intégration dans un circuit optique ou optoélectronique.

Technique de croissance : EPVOM \rightarrow Système industrialisable.

Durée de vie des émetteurs : De l'ordre de la nanoseconde \rightarrow Possibilité de débit GHz.

Température d'utilisation : Bon fonctionnement à 4K. Possibilité d'obtenir un effet de dégroupement de photons jusqu'à 130K (voir chapitre 4).

Compacité : Possibilité de graver des cavités à cristaux photoniques et de les insérer dans des systèmes d'optique intégrés.

Excitation : Possibilité d'effectuer un pompage électrique.

1.1.3 Hétérostructures semiconductrices

Avant de rentrer dans le détail du processus d'émission des boîtes quantiques, il est important de décrire les différentes hétérostructures semiconductrices en fonction de la dimensionalité du confinement. Nous nous limiterons à 4 d'entre elles : les puits quantiques, les boîtes à fluctuations d'interfaces, les bâtonnets quantiques et les boîtes quantiques.

Puits quantiques

Un puits quantique est une hétérostructure semiconductrice qui s'obtient par l'insertion d'une couche mince d'un matériau de faible gap dans un matériau de gap plus élevé (voir figure 1.2(a)). L'épaisseur de la couche est de l'ordre de la dizaine de nanomètres de sorte que le mouvement des électrons et des trous dans le puits est quantifié avec des niveaux d'énergie discrets dans la direction perpendiculaire de la couche. Il s'agit d'un confinement à une seule direction (1D), (voir figure 1.2(b)). L'injection de porteurs dans une telle structure donne lieu à des recombinaisons radiatives donnant un spectre centré sur la longueur d'onde correspondant à l'énergie de l'état le plus bas du puits et d'une largeur qui dépend de la température, de l'ordre de la dizaine de nanomètres à 4K (voir figure 1.2(b)).

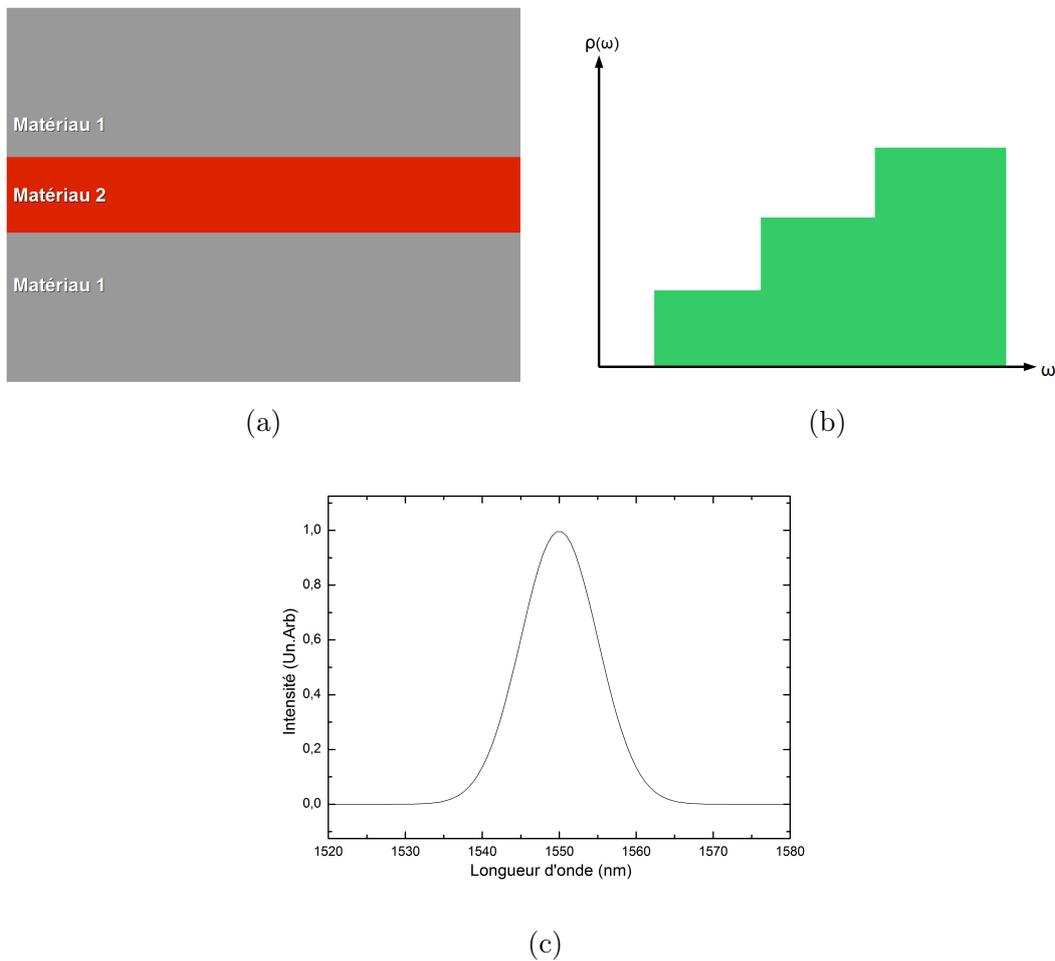


FIGURE 1.2 – (a) Structure (b) Densité des états électroniques (c) Spectre de photoluminescence d'un puits quantique à 4K en InGaAs sur substrat de GaAs

boîtes à fluctuations d'interfaces

Lors d'une croissance idéale d'un puits quantique, les interfaces sont parfaitement lisses à l'échelle atomique. Dans certaines conditions de croissance, ces

interfaces peuvent présenter des rugosités (voir figure 1.3 (a)). Dans ce type de structure, les fluctuations d'interfaces peuvent réaliser un confinement des porteurs dans les deux dimensions latérales parallèles au plan du puits. On parle alors de boîtes quantiques naturelles ou boîtes quantiques à fluctuations d'interfaces. Dans la direction de croissance, le confinement est celui du puits quantique alors que dans le plan, les variations d'épaisseur du puits localisent le centre de masse des porteurs. L'émission de ce type de structure est une émission fine (voir figure (1.3) (b) flèche rouge) sur un spectre de puits (voir figure (1.3) (b) flèche bleue) [60, 61].

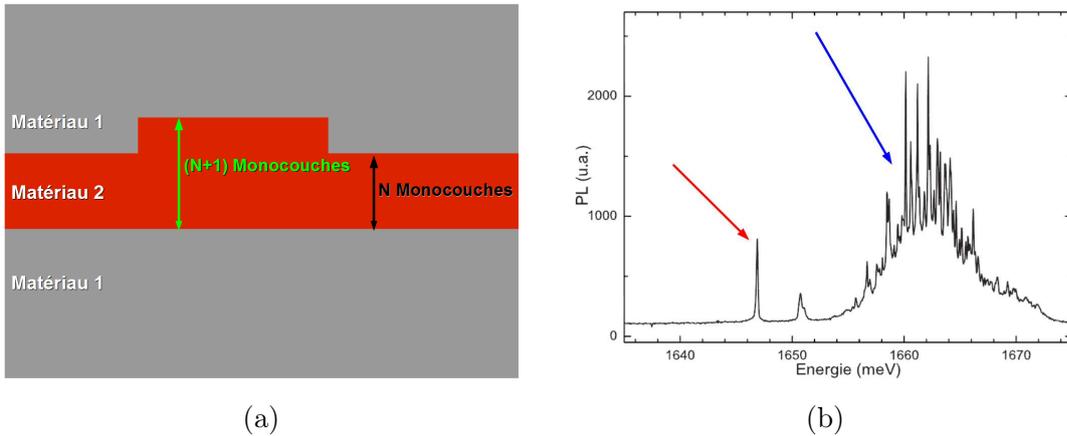


FIGURE 1.3 – (a) Structure (b) Spectre de photoluminescence d'un puits à fluctuation d'interface à 4K en AlGaAs sur GaAs [60, 61].

Bâtonnets quantiques

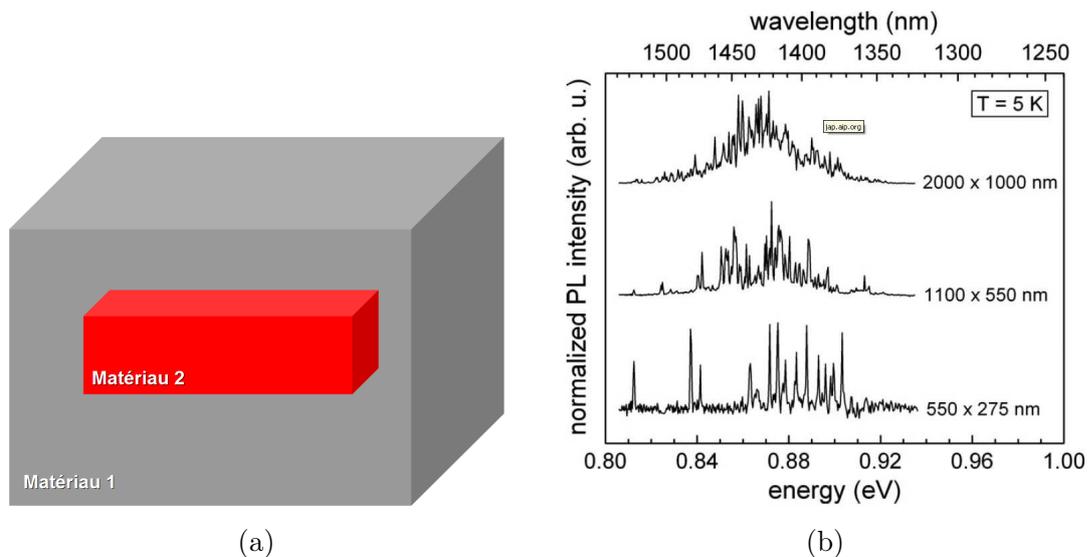


FIGURE 1.4 – (a) Structure (b) Spectre d'un bâtonnet quantique en InAs/InP à 5K [56].

Lorsque le confinement spatial se fait sur trois directions de l'espace dont une est grande devant la longueur d'onde de Broglie (voir figure 1.4 (a)), un objet quantique, bâtonnet quantique, est créé. Il n'existe pas de définition rigoureuse pour ce type d'objet. Généralement, le confinement à l'intérieur de celui-ci est hybride entre une boîte et un puits (voir figure 1.4 (b)). Les spectres typiques montrent des raies d'émission de largeur spectrale de l'ordre de quelques centaines de μeV à 4 K.

Boîtes quantiques

Lorsque le confinement spatial s'effectue dans les trois directions de l'espace (voir figure 1.5 (a)), la boîte quantique présente une discrétisation de ses états d'énergie (voir figure 1.4 (b)). Par conséquent, le spectre d'une telle structure sera constitué de raies fines (voir figure 1.4 (c)) que l'on peut comparer à celui d'un atome.

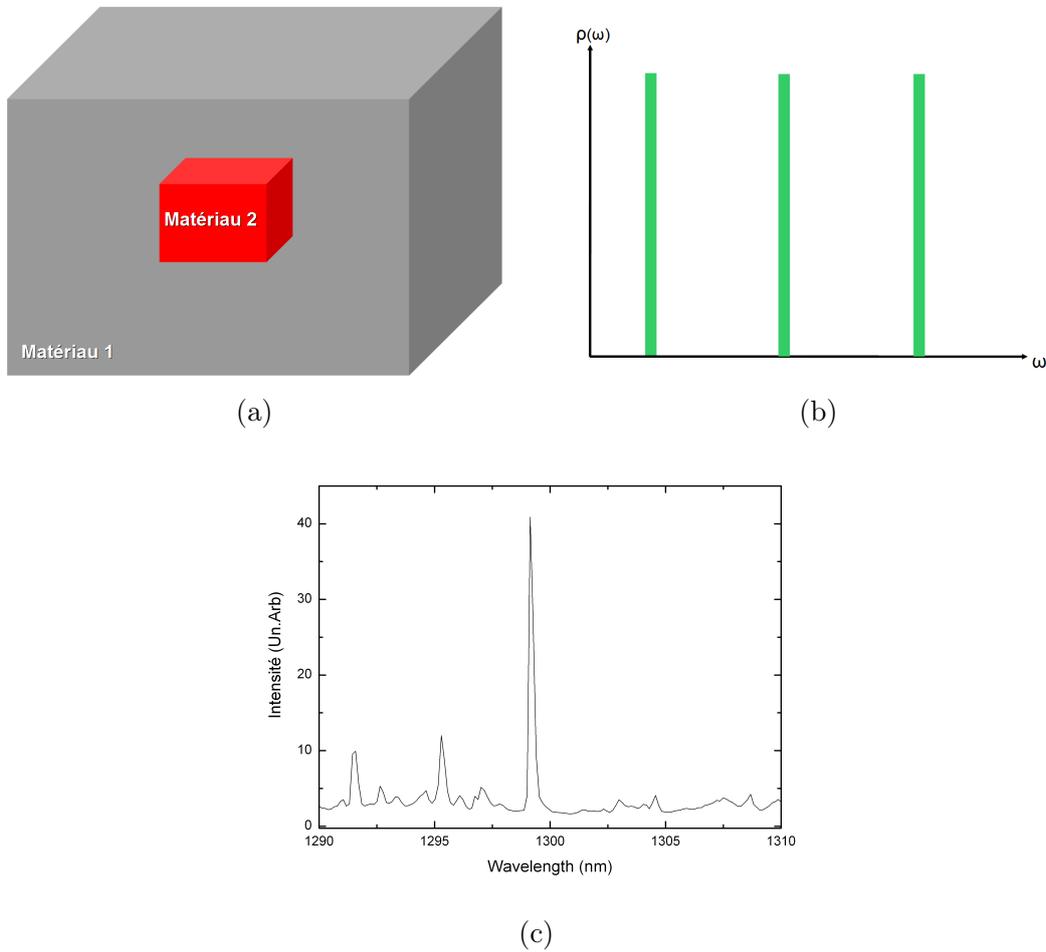


FIGURE 1.5 – (a) Structure (b) Densité des états électroniques (c) Spectre d'une boîte quantique InAs/InP à 4K.

Afin de pouvoir émettre des photons uniques, la structure des boîtes quantiques paraît être l'un des meilleurs choix.

1.1.4 Les propriétés optiques de boîtes quantiques

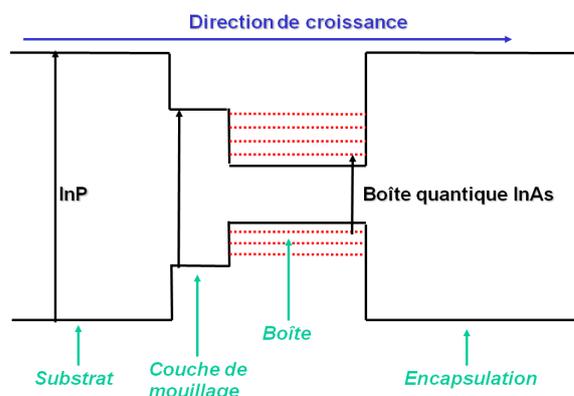


FIGURE 1.6 – Diagramme énergétique d'une boîte quantique.

La figure 1.6 présente le diagramme énergétique d'une boîte quantique InAs sur un substrat d'InP. Lors de la croissance, un puits d'InAs est formé tout d'abord. Ce puits est appelé couche de mouillage. En poursuivant la croissance du matériau InAs, une boîte tridimensionnelle se forme sur la couche de mouillage. Cette boîte est ensuite encapsulée dans une couche d'InP. La couche de mouillage peut participer dans les propriétés optiques de la boîte car elle peut constituer un réservoir de porteurs qui peuvent alimenter la boîte.

Il est intéressant d'étudier les processus d'émission d'une boîte quantique. Lorsqu'on promeut des électrons depuis la bande de valence vers la bande de conduction, on crée des paires électron-trou. Lorsque ces paires sont créées, il faut tenir compte, pour décrire les états électroniques, des effets de l'interaction coulombienne entre l'électron et le trou et des effets du confinement quantique. L'intensité de ces deux effets n'évolue pas de la même façon avec la taille du système : l'énergie d'interaction coulombienne varie typiquement en $1/a$ (avec a proportionnel à la dimension de la boîte), alors que l'énergie de confinement quantique varie en $1/a^2$. Pour un système macroscopique ($a \rightarrow \infty$), l'interaction coulombienne est donc dominante, et lie l'électron et le trou pour former un exciton. Dans des boîtes quantiques, l'énergie de confinement des porteurs est de quelques centaines de meV et l'interaction coulombienne entre un électron et un trou, de l'ordre de quelques à la dizaine de meV, n'intervient qu'en perturbation dans le calcul de leurs niveaux d'énergie. C'est donc en première approximation la localisation des électrons et des trous dans la boîte qui forme l'état d'une paire électron-trou et non l'interaction Coulombienne. Le terme coulombien dépend du nombre de paires électron-trou piégés, ainsi l'énergie de recombinaison de chaque paire électron-trou dépend du nombre de paires présentes dans la boîte quantique (voir figure (1.7)).

Pour produire des photons uniques, on peut employer le protocole proposé en 1999 [62] et mis en œuvre dès 2001, aussi bien sous pompage optique [18, 34] que sous pompage électrique [63] sur des systèmes InAs/GaAs. Ce protocole reste

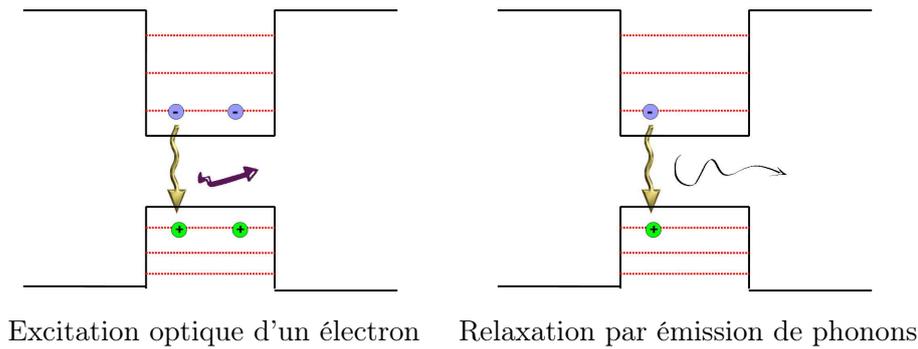


FIGURE 1.7 – *Principe d'émission en cascade dans les boîtes quantiques. L'interaction coulombienne lève la dégénérescence de l'émission entre l'émission d'une paire électron-trou seule et celle avec une paire déjà présente dans la boîte.*

applicable pour les boîtes InAsP/InP. Dans ce protocole, la boîte est pompée optiquement de manière non-résonante (voir figure 1.8) par une impulsion courte, de durée inférieure à la durée de vie de la transition excitonique. Ainsi, la probabilité que l'exciton, créé au début de l'impulsion, relaxe en émettant un photon avant la fin de l'excitation, est négligeable. Les porteurs injectés se répartissent alors sur les différents niveaux d'énergie de la boîte. Lors de leur relaxation, les paires électron-trou émettront chacune un photon dont l'énergie dépend de l'état de charge de la boîte. La relaxation radiative en cascade des différentes paires électron-trou créées, conduit à l'émission successive de photons d'énergies toutes distinctes et aboutit à la configuration dans laquelle la boîte ne contient qu'une seule paire électron-trou. En filtrant spectralement la luminescence de la boîte à l'énergie E_X de la dernière transition à une paire électron-trou, on obtient un et un seul photon, car seule cette transition a lieu à cette énergie. Soulignons que ce protocole n'aboutit à l'émission de photons uniques que dans la mesure où la durée de vie de l'état à une paire électron-trou est bien plus longue que la durée de l'impulsion optique d'excitation ainsi que de la durée de vie de la couche de mouillage et de la matrice d'InP.

Les boîtes quantiques InAs/InP représentent donc un système permettant de faire une bonne source de photons uniques aux longueurs d'onde des télécommunications fibrés. Cependant, pour augmenter le débit d'émission ou contrôler les propriétés de cohérence des photons produits, il est indispensable de mettre ces boîtes au cœur d'une cavité afin d'utiliser les effets d'électrodynamique quantique pour accélérer l'émission spontanée des boîtes quantiques.

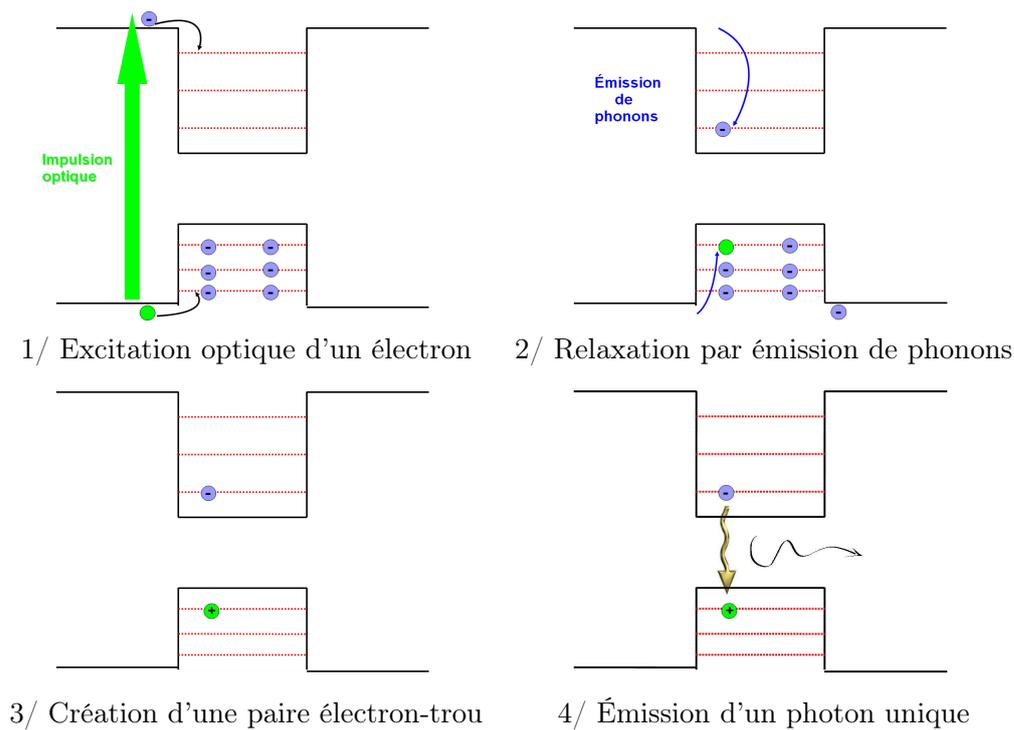


FIGURE 1.8 – Principe d'émission de photons uniques dans une boîte quantique.

1.2 Effets d'électrodynamique quantique en cavité en régime de couplage faible

Lors du couplage d'un dipôle avec les modes d'une cavité optique, deux régimes de couplage sont possibles :

- Couplage fort : Lorsque l'énergie de couplage est plus grande que la largeur de raie d'émission du dipôle et de la largeur du mode on est alors dans le régime de couplage fort. Un phénomène d'échange périodique d'énergie entre l'émetteur et le mode de cavité est alors observable, il s'agit des oscillations de Rabi [64]. Les états propres du système dipôle-cavité sont alors des superpositions d'états "lumière-matière" appelés polaritons en physique des semiconducteurs.
- Couplage faible : Lorsque l'énergie de couplage est plus faible que les différentes largeurs de raie on est dans le régime de couplage faible. L'émission spontanée est irréversible comme pour le rayonnement dans l'espace libre. Toutefois, le taux d'émission peut être modifié par la présence de la cavité.

Dans le cadre de ce travail, seul le régime de couplage faible sera étudié, car c'est ce type de couplage qui correspond à notre système.

1.2.1 Approche quantique de l'émission spontanée en espace libre

L'émetteur peut être considéré comme un système à deux niveaux. L'état excité initial d'énergie $\hbar\omega_i$ sera noté $|i\rangle$ et l'état fondamental final d'énergie $\hbar\omega_f$ sera quant à lui noté $|f\rangle$. Afin de simplifier les calculs, il est supposé que le dipôle se situe dans une cavité de volume V_0 suffisamment grand pour ne pas le perturber. Il est alors possible de décrire l'émission spontanée de ce dipôle comme étant la transition de l'état initial $|i, 0_\mu\rangle$ (émetteur dans son état excité et zéro photon dans le mode μ de la cavité) vers l'état final $|f, 1_\mu\rangle$ (émetteur dans son état fondamental et un photon dans le mode μ de la cavité). L'hamiltonien d'interaction dipolaire du système à 2 niveaux est :

$$H = -e\hat{D}_{if}\hat{E}(r) \quad (1.1)$$

où e est la charge de l'électron, \hat{D}_{if} est l'élément de matrice de transition dipolaire à deux niveaux, $\hat{E}(r)$ est l'amplitude du champ sur le site du dipôle (\vec{r}). Le taux d'émission spontanée Γ est alors donné par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_{\mu} |\langle f, 1_\mu | H | i, 0_\mu \rangle|^2 \delta(\omega_{if} - \omega_\mu) \quad (1.2)$$

qui peut aussi être écrite comme :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2} (eD_{if})^2 \Theta^2 E_0^2 g(\omega) \quad (1.3)$$

où :

$$\Theta = \frac{|D_{if} \cdot \hat{E}(r)|}{|D_{if}| |E|} \quad (1.4)$$

prend en compte l'orientation du dipôle par rapport au champ E , $E_0 = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V_0}}$ est le champ électromagnétique du vide avec ϵ_0 la permittivité du vide et V_0 le volume de quantification et $g(\omega)$ est la densité d'états de photons à la fréquence ω . Pour calculer Γ dans l'espace libre, on note que :

$$\langle \Theta^2 \rangle_{3D} = \langle \cos^2 \theta \rangle_{3D} = \frac{1}{3} \quad (1.5)$$

et que

$$g(\omega) = \frac{2g(k)}{d\omega/dk} = \frac{2}{c} g(k) \quad (1.6)$$

où le facteur 2 vient des états de polarisation. Le nombre d'états de photons inclus dans une coquille sphérique de l'espace des phases entre k et $k + dk$ est :

$$g(k)dk = \frac{4\pi k^2 dk}{(2\pi)^3/V_0} = \frac{V_0 k^2}{2\pi^2} dk \quad (1.7)$$

Le taux d'émission spontanée dans l'espace libre peut donc s'écrire :

$$\Gamma^{vide} = \frac{1}{\tau} = \frac{\omega^3 (e\hat{D}_{i,f})^2}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3} \quad (1.8)$$

avec τ la durée de vie radiative dans l'espace libre.

1.2.2 Émission spontanée en cavité

Lorsque l'émetteur n'est pas dans l'espace libre mais dans une cavité optique, le calcul du taux d'émission spontanée doit tenir compte de l'environnement électromagnétique particulier dans la cavité.

C'est en 1946 que ce problème a été mis en évidence pour la première fois par E.M. Purcell [66]. Il prévoyait une modification du taux d'émission spontanée lorsque l'émetteur est placé en résonance spectrale et spatiale avec le mode d'une cavité. Depuis, le régime d'accélération ou plus abusivement, de décélération du processus d'émission spontanée dans une cavité est appelé effet Purcell.

Soit V_0 le volume modal de la cavité, en supposant cette cavité monomode, c'est à dire qu'un mode unique peut résonner dans la cavité à une longueur d'onde proche de celle du dipôle émetteur. Par conséquent, tous les modes situés loin de la résonance sont négligés. La pulsation de résonance du mode et sa largeur à mi-hauteur notées respectivement ω_c et $\Delta\omega_c$. Il est alors possible d'introduire le facteur de qualité de la cavité Q , donné par $Q = \omega_c/\Delta\omega_c$. En supposant que la densité d'état $g(\omega)$ est de forme lorentzienne, alors :

$$g(\omega) = \frac{\Delta\omega_c}{2\pi(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (1.9)$$

La condition monomode s'écrit :

$$\int_0^\infty g(\omega) d\omega = 1 \quad (1.10)$$

En effectuant un calcul similaire au cas de l'émission dans l'espace libre, on obtient [65] en utilisant la règle d'or de Fermi, l'expression du taux d'émission spontanée Γ^{cav} en cavité :

$$\Gamma^{cav} = \frac{2Q(e\hat{D}_{i,f})^2}{\hbar\epsilon_0 V_0} \Theta^2 \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (1.11)$$

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

$$F = \frac{\Gamma^{cav}}{\Gamma^{vide}} \quad (1.12)$$

en utilisant l'expression (1.8), il est possible d'introduire le facteur F de modification de la dynamique d'émission spontanée par la présence de la cavité, exprimé ainsi :

$$F = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2 V_0} \Theta^2 \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega_0 - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (1.13)$$

On peut alors faire apparaître le terme $F_p = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2V_0}$ qui sera nommé facteur de Purcell. Dans l'expression 1.13, nous remarquons que la modification de la dynamique d'émission spontanée apparaît comme le produit de trois termes. Le premier facteur, F_p est caractéristique de la cavité et ne dépend pas du dipôle émetteur. Il représente l'amplitude maximale d'accélération de la dynamique d'émission spontanée observable dans la cavité. En quelque sorte, il constitue un facteur de mérite de la cavité. Pour exalter ce facteur, il conviendra de maximiser le rapport Q/V , ce qui suppose le recours à des cavités de faibles pertes et fort confinement spatial. Le deuxième terme, Θ , prend en compte l'orientation du dipôle et sa position par rapport au champ dans la cavité. Enfin, le dernier terme décrit l'accord spectral entre l'émetteur et la fréquence de résonance de la cavité.

Il est important de retenir les trois conditions pour obtenir une accélération de l'émission spontanée, sans pour autant qu'elles aient besoin d'être remplies simultanément et strictement :

- Maximiser le rapport Q/V
- Avoir un dipôle situé sur un ventre du champ intra-cavité et colinéaire au champ électrique (accord spatial et colinéarité)
- Avoir un dipôle spectralement en résonance avec le mode de la cavité (accord spectral)

Dans la perspective d'introduire des boîtes quantiques dans une cavité, les deux derniers points peuvent être difficiles à satisfaire. En effet, lors de la croissance des boîtes quantiques (que nous développerons dans le chapitre 2), une dispersion de la taille des boîtes entraînant une variation de la longueur d'onde d'émission ne permet pas de satisfaire la condition d'accord spectral de manière déterministe. De plus, le mode de croissance, qui crée les boîtes aléatoirement réparties spatialement ne permet pas de satisfaire la condition d'accord spatial de manière déterministe. Il est donc indispensable d'apporter des solutions à ces problèmes.

1.2.3 Taux de couplage de l'émission spontanée au mode de la cavité

Jusqu'à présent, il a été considéré le cas d'une cavité monomode. Cependant, une cavité est rarement monomode, et l'émetteur peut se coupler à d'autres modes du champ que le mode d'intérêt de la cavité. Dans ce cas, il est possible de montrer que la modification de l'émission spontanée est alors égale à $F + \gamma$, où F et γ sont respectivement la modification de l'émission spontanée dans le mode de la cavité et dans les autres modes appelés "modes de fuite". Outre une modification de la dynamique d'émission spontanée, l'effet Purcell s'accompagne d'une redistribution spatiale intra-cavité du rayonnement. Cette redistribution spatiale peut être quantifiée par un facteur usuellement noté β , qui n'est autre que la fraction d'émission spontanée qui sera effectivement couplée dans le mode de cavité. En effet, le dipôle peut émettre dans le mode de la cavité avec un taux d'émission Γ^{cav} , ou bien dans les modes de fuite avec un taux Γ^{fuite} . Il est dès lors facile d'exprimer le taux de couplage de l'émission spontanée dans le mode de la cavité ainsi :

$$\beta = \frac{\text{Emission dans le mode}}{\text{Emission totale}} = \frac{\Gamma^{cav}}{\Gamma^{cav} + \Gamma^{fuite}} = \frac{F}{\gamma + F} \quad (1.14)$$

avec $\gamma = \frac{\Gamma^{fuite}}{\Gamma^{vide}}$. Ainsi dans la perspective d'obtenir une cavité à fort taux de couplage,

il sera indispensable de chercher à maximiser le facteur F et réduire le facteur γ .

Il paraît évident que pour réaliser une source de photons uniques efficace, il est nécessaire d'optimiser le facteur β , ainsi le couplage de l'émetteur avec le mode de cavité sera important. Cependant, le problème de la collection se pose. Il est donc indispensable de collecter de manière efficace la lumière émise par ce mode.

1.2.4 Confinement de la lumière

Le confinement de la lumière, dans une cavité, permet de mettre en œuvre des effets d'Electrodynamique Quantique en Cavité et de réaliser une source pratique de photons uniques à partir de boîtes quantiques semiconductrices. L'amplitude de l'accélération de l'émission spontanée est reliée au facteur de Purcell F_p . Différentes stratégies existent pour réaliser des cavités de faible volume modal et de fort facteur de qualité à partir de matériaux semiconducteurs.

Le confinement optique fait principalement appel à deux mécanismes : la réflexion totale interne et le processus interférentiel provoqué par la propagation de l'onde lumineuse dans un milieu périodique.

Réflexion totale interne

Une manière simple de confiner la lumière dans un matériau semiconducteur est d'utiliser la différence d'indice de réfraction entre deux diélectriques d'indice de réfraction différents. Considérons un empilement de deux matériaux, l'un d'indice n_1 et l'autre d'indice n_2 tels que $n_2 < n_1$. Si le rayon lumineux se propage dans le matériau d'indice n_1 , il y aura réflexion totale au niveau de l'interface entre les deux matériaux pour des angles d'incidence par rapport à la normale supérieurs à $\theta_{lim} = \arcsin(n_2/n_1)$. Dans ce cas, le milieu d'indice n_2 sera l'air d'indice 1 et le milieu d'indice n_1 sera composé d'InP d'indice de réfraction égal à 3,17 à 300 K. Tout rayon avec un angle d'incidence supérieur à 18° sera réfléchi. Les cavités microdisques ou microsphères sont des exemples de réalisation qui reposent exclusivement sur ce mode de confinement. Dans le cas des cristaux photoniques bidimensionnels sur membrane, ce type de confinement n'est que partiel et intervient sur une seule dimension : la direction perpendiculaire à la membrane. Le confinement dans les autres dimensions est alors obtenu par des processus d'interférences.

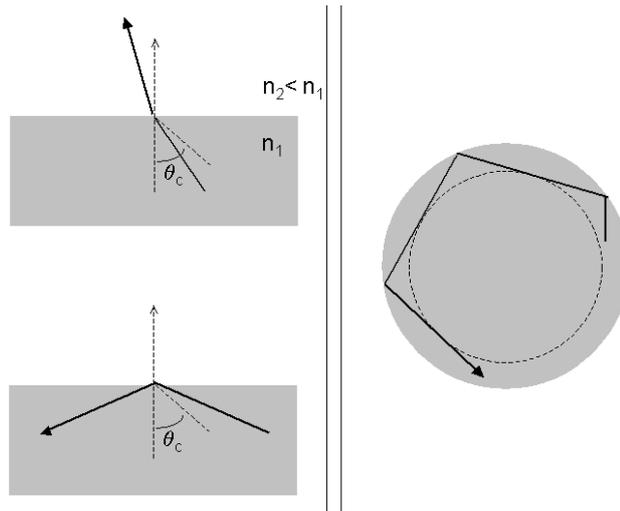


FIGURE 1.9 – *A gauche : principe du confinement par réflexion interne totale dans un milieu d'indice de réfraction n_1 entouré d'un milieu d'indice $n_2 < n_1$ (en haut, le rayon d'angle d'incidence inférieur à l'angle critique θ_{lim} est transmis ; en bas, le rayon d'angle d'incidence supérieur à l'angle critique est réfléchi). A droite : principe du confinement des modes de galerie suivant la théorie des rayons dans une cavité de type microdisque ou microsphère.*

Processus interférentiel : les cristaux photoniques

Une autre stratégie pour confiner la lumière consiste à utiliser le phénomène d'interférence constructive lorsqu'une onde se propage dans un milieu structuré périodiquement, tel qu'un cristal photonique. Un cristal photonique est un arrangement périodique de deux diélectriques d'indices de réfraction différents.

Dans un premier temps, il est intéressant de considérer le problème unidimensionnel d'un empilement de Bragg classique (voir figure 1.10). Il s'agit d'un empilement périodique formé de l'alternance d'une couche plane d'un diélectrique 1 d'une épaisseur e_1 et d'indice de réfraction n_1 et d'une couche plane d'un diélectrique 2 d'épaisseur e_2 et d'indice de réfraction n_2 . Pour, une onde de longueur d'onde λ_v telle que :

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

un phénomène d'interférences destructives est obtenu, dans la direction de propagation de l'onde entre les ondes transmises et réfléchies sur les différentes interfaces et un phénomène d'interférences constructives apparaît dans la direction opposée. Par conséquent, la structure se comporte comme un miroir à la longueur d'onde λ_v confinant ainsi la lumière dans un demi-espace.

En périodisant l'indice du matériau dans deux (ou trois) directions de l'espace, il est possible de réaliser un confinement 2-D (ou 3-D respectivement) (voir figure 1.11). De telles structures sont nommés cristaux photoniques 2-D ou 3-D.

Pour mieux décrire et dessiner des structures périodiques 2-D et 3-D, il est

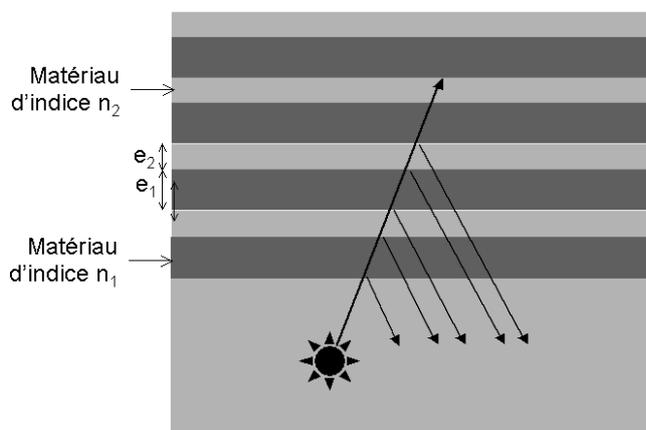


FIGURE 1.10 – Schéma des réflexions multiples successives aux interfaces d'un empilement périodique de deux diélectriques d'indice de réfraction n_1 et n_2 .

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

FIGURE 1.11 – Cristal photonique 1D, 2D et 3D avec indiquées les directions interdites de propagation (Schémas issus de [70]). Chaque type de réseau est illustré par un exemple de réalisation ; les cristaux photoniques 1D et 2D sont des réalisations du CNRS-LPN et le cristal photonique 3D a été fabriqué à l'ICM-CSIC [71].

possible de faire appel au concept de bande interdite photonique, qui délimite une plage de fréquence pour laquelle la propagation est impossible dans le cristal. Ce concept de bande interdite photonique a été introduit en 1987 par E. Yablonovitch [68] et S. John [69]. L'analogie peut être faite avec la théorie des bandes interdites des semiconducteurs.

Structure de bande interdite dans un cristal photonique

Commençons par utiliser les équations de Maxwell dans un milieu diélectrique. Soit \vec{D} le vecteur déplacement électrique, \vec{B} le champ magnétique et \vec{E} le champ électrique. Dans le cas d'un milieu non magnétique, isotrope à l'échelle microscopique et linéaire, les relations constitutives des différents champs pris dans le cas de milieux diélectriques s'écrivent donc :

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \epsilon(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}, t)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{H}(\vec{r}, t)$$

Pour des modes électromagnétiques de pulsation ω les équations de Maxwell donnent :

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

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

En posant :

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

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

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

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

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

Le diagramme de bandes donne la synthèse de l'ensemble des diagrammes de dispersion $\omega(\vec{k})$ du cristal photonique, et peut être calculé par le modèle des ondes planes. Pour être complet, il faudrait considérer toutes les directions de propagation et ce pour tous les cristaux. Moyennant certaines symétries, comme en physique du solide, il est possible de réduire l'étude aux vecteurs \vec{k} situés à l'intérieur d'une zone restreinte appelée première zone de Brillouin. Pour chaque vecteur \vec{k} de la première zone de Brillouin, le diagramme de bandes donne les pulsations ω des modes. Pour certains arrangements périodiques du cristal, le diagramme de bandes fait apparaître une gamme de fréquence pour laquelle aucun mode ne peut exister dans la structure. De nombreux arrangements périodiques sont envisageables dans le cas des cristaux

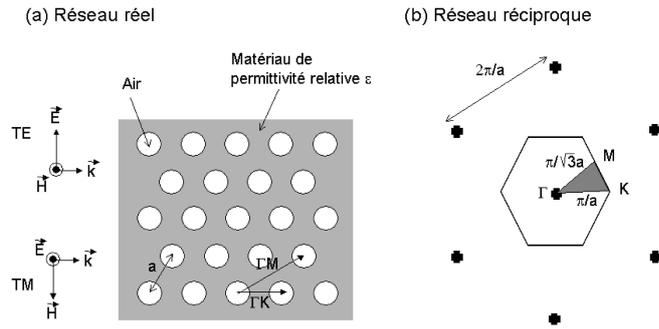


FIGURE 1.12 – Réseau triangulaire de trous d'air cylindriques. (a) : Plan de périodicité de la structure triangulaire de trous d'air de période a . Le champ électromagnétique est polarisé *TM* lorsque le champ électrique \vec{E} est dans la direction parallèle à l'axe des trous et polarisé *TE* lorsque le champ magnétique est parallèle à l'axe des trous. (b) : Réseau réciproque du réseau triangulaire. Ce réseau, indiqué par les croix, forme aussi un réseau triangulaire avec une période $b = 2\pi/a$. La zone de Brillouin est hexagonale. Les points de haute symétrie sont notés Γ (vecteur d'onde nul dans le plan), K (ΓK correspond à la direction entre trous plus proches voisins) et M (ΓM correspond à la direction entre trous les plus éloignés).

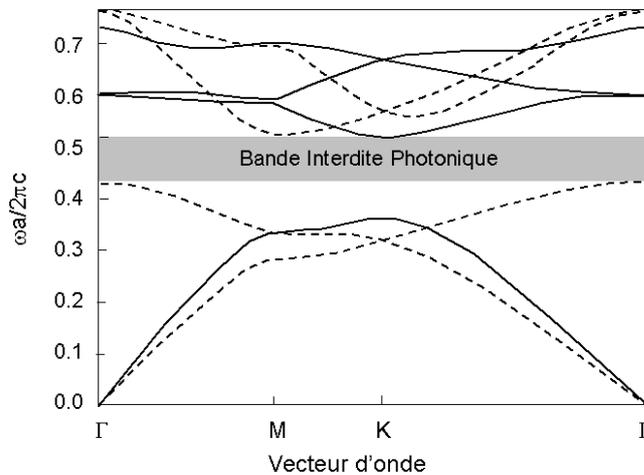


FIGURE 1.13 – Exemple de diagramme de bandes calculé pour la polarisation *TE* (traits pleins) et *TM* (traits pointillés) pour un réseau triangulaire bidimensionnel de trous d'air dans un diélectrique de permittivité relative $\epsilon = 13$; le rayon des trous est égal à $0,48a$ [72].

photoniques bi-dimensionnels. Nous prendrons l'exemple d'un cristal photonique bi-dimensionnel formé d'un arrangement triangulaire de trous d'air dans un diélectrique de permittivité ϵ puisque c'est celui que nous étudierons par la suite (voir Figure 1.12). Un réseau réciproque peut y être associé dans l'espace des vecteurs d'ondes.

Celui-ci est un hexagone et présente trois points de haute symétrie : Γ , M et K . La caractérisation complète de la structure modale peut être obtenue à partir des propriétés du cristal pour une onde se propageant dans les deux directions de hautes symétries (ΓM et ΓK). Le diagramme présenté sur la figure 1.13 est alors obtenu. Cette figure représente la pulsation ω des modes en fonction du vecteur d'onde, suivant les directions de haute symétrie dans la zone de Brillouin. Ce diagramme révèle l'existence d'une bande photonique interdite pour les deux polarisations TE et TM, correspondant respectivement aux modes de champ électrique et magnétique. Une onde incidente de vecteur d'onde contenu dans le plan de périodicité du réseau de trous sera entièrement réfléchi si sa pulsation se situe à l'intérieur de la bande photonique interdite. La figure (1.13) présente la courbe de dispersion d'un cristal photonique de maille triangulaire de pas $a=0.43\lambda$.

Confinement mixte

La réalisation d'un réseau tridimensionnel de diélectriques présentant une bande interdite omnidirectionnelle dans le visible ou le proche infrarouge est d'une grande difficulté technologique. C'est principalement pour cette raison que la majorité des cristaux photoniques réalisés aujourd'hui sont des structures hybrides : le confinement est assuré par un milieu diélectrique qui n'est périodique que dans une ou deux directions de l'espace. Dans ce type de géométrie, le confinement dans les directions périodiques est interférentiel et celui dans les directions restantes est obtenu par réflexion totale interne. Dans la suite du manuscrit, nous nous intéresserons essentiellement à une classe de structures hybrides : les cristaux photoniques bidimensionnels gravés sur membrane suspendue. Dans ces structures, le confinement latéral est assuré par le cristal photonique bidimensionnel, alors que la lumière est confinée par effet de guidage dans le plan de la membrane. Il est alors possible, par des ajustements judicieux et adéquats de l'arrangement périodique des trous, de former des cavités confinant la lumière sur des volumes ultimes et des temps très longs. Plusieurs approches sont possibles. Des cavités peuvent ainsi être réalisées par l'insertion de défauts ponctuels dans le cristal ou par une ingénierie judicieuse des courbes de dispersion de la lumière dans le cristal.

1.3 Quelles cavités ?

Dans cette partie, nous donnons un aperçu des principales cavités à semiconducteur et leurs performances en terme de facteur de qualité Q et de volume modal V .

1.3.1 Micropiliers

Les micropiliers sont essentiellement des guides d'onde cylindriques délimités à chaque extrémité par un miroir de Bragg. Fabriqués par gravure d'une microcavité planaire, ils combinent le guidage par l'axe du pilier et la réflexion par les miroirs de Bragg pour obtenir un confinement tridimensionnel de la lumière [78]. La principale limite des micropiliers est la forte réduction du facteur de qualité avec la

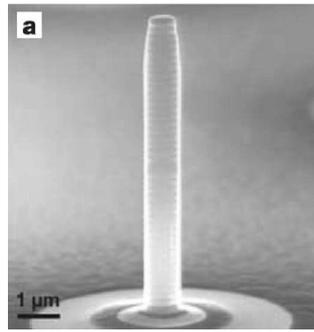


FIGURE 1.14 – Image obtenue au microscope électronique à balayage d’un micropilier de $0.8\mu\text{m}$ de diamètre [77].

diminution de leur diamètre. Le champ électromagnétique devient sensible aux défauts de gravure des flancs [79]. Pour des piliers de diamètre submicronique, l’état de l’art correspond à $Q=2000$ pour $V_{eff} = 5 \left(\frac{\lambda^3}{n}\right)$ [80]. Quant au facteur d’extraction vertical, il peut atteindre les 70%

1.3.2 Microdisques

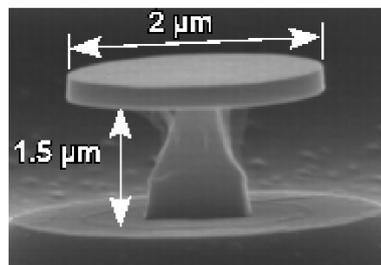


FIGURE 1.15 – Image obtenue au microscope électronique à balayage d’un microdisque de $2\mu\text{m}$ de diamètre [81].

Les microdisques sont des cavités dans lesquelles les modes dits de galerie s’établissent par réflexion totale interne sur les flancs du disque. Un avantage des microdisques par rapport aux micropiliers est d’offrir un confinement de la lumière plus grand, avec de meilleurs facteurs de qualité; un microdisque de $2\mu\text{m}$ de diamètre confine le champ électromagnétique dans un volume effectif comparable à un micropilier de $1\mu\text{m}$ de diamètre ($V = 6 \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$). Les facteurs de qualité des modes de galerie sont 6 fois plus grands ($Q=12000$) [82] que ceux des modes des micropiliers.

1.3.3 Cavités à cristaux photoniques sur membrane

Les cavités à cristaux photoniques sont des structures périodiques de trous gravés dans le semi-conducteur qui présentent des bandes interdites pour la propagation de la lumière. La période de ces structures est de l’ordre de la longueur

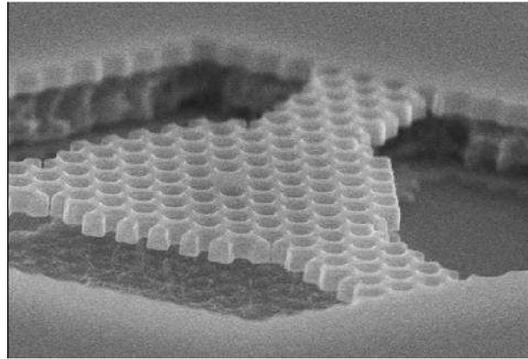


FIGURE 1.16 – *Cavité à cristaux photoniques formée d'un trou manquant (au centre de l'image) dans un cristal photonique parfait. Le cristal est gravé dans une membrane GaAs de 180nm d'épaisseur [59].*

d'onde du photon. En rompant la périodicité (par exemple en omettant un ou plusieurs trous), le champ est confiné sur les défauts de périodicité, et donc sur un faible volume.

Les cristaux photoniques allient le guidage dans le semi-conducteur et le confinement latéral par le cristal photonique [85]. Des cristaux bidimensionnels sur membrane semi-conductrice suspendue dans l'air ou sur une couche d'oxyde ont permis la démonstration de modes ayant un volume effectif $V_{eff} = 0.4(\lambda/n)^3$, avec un facteur de qualité de plusieurs milliers [86]. Ce qui est important de noter c'est que le facteur de qualité est limité non pas intrinsèquement mais à la fois par le dessin de la structure et par l'état de l'art de la technologie.

Les cavités à cristaux photoniques feront le sujet du chapitre 4.

1.3.4 Cavités métalliques et plasmoniques

Lorsque des objets métalliques sont éclairés par une onde de longueur d'onde grande devant leur taille, leur réponse optique est très différente de celle du solide macroscopique du fait du confinement électronique qui donne lieu à l'existence d'excitations collectives du gaz d'électrons de conduction, excitations entretenues par le champ incident. Ces excitations collectives sont appelés plasmons de surface localisés. A ces effets classiques de confinement vont s'ajouter des effets quantiques de taille finie dus à la quantification des niveaux électroniques. Ces résonances géantes concentrent pratiquement toute la force d'oscillateur de l'interaction avec le champ électromagnétique, en général dans le domaine visible et proche UV (énergie de l'ordre de quelques eV).

Ainsi, en fonction de la géométrie et du métal utilisé, il est possible d'utiliser la résonance plasmon de différentes façons [87, 88].

Nanoantennes et cavité TMM

Lorsqu'un émetteur unique est approché d'une tige métallique un couplage intervient entre le champ du dipôle émetteur et le métal [89-92]. Il s'agit du prin-

cipe de l'antenne à l'échelle atomique. Récemment une équipe espagnole a réussi à effectuer le couplage entre une boîte quantique et une antenne [93].

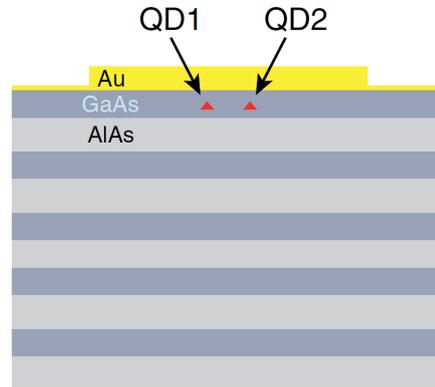


FIGURE 1.17 – Schéma d'une cavité plasmonique de type "Tamm", combinant un disque métallique et un réseau de Bragg. [94].

Il est également possible de combiner un effet du miroir de Bragg et d'un disque métallique de 2 à $20\mu\text{m}$ de diamètre pour créer la cavité plasmonique (voir figure 1.17) [94]. En plaçant ainsi le disque métallique à la bonne distance des émetteurs et en ajustant le diamètre, il est possible d'obtenir une extraction de plus de 10% et une accélération de l'émission spontanée d'un facteur 3. Une telle cavité dispose d'un facteur de qualité d'environ 490 ce qui correspond à une largeur spectrale de résonance d'environ 3nm.

Cavité métallique (cylindrique)

Une autre géométrie consiste à métalliser un plot semiconducteur contenant en son sommet le dipôle émetteur (voir figure (1.18)). Après optimisation du rayon de la structure ainsi que des distances entre le dipôle émetteur et le métal, il est possible d'observer une extraction de l'ordre de 70% et une accélération de l'émission spontanée d'un facteur 10. Dans le cadre de boîtes quantique InGaAs/GaAs les dimensions sont : $r = 95\text{nm}$, $h_1 = 70\text{nm}$ et $h_2 = 9\text{nm}$. De plus, une telle structure disposant d'un très faible facteur de qualité (d'environ 30) permet ainsi d'accélérer les dipôles émettant sur une gamme spectrale d'environ 60nm. Ceci permet de s'affranchir de l'accord spectral si important.

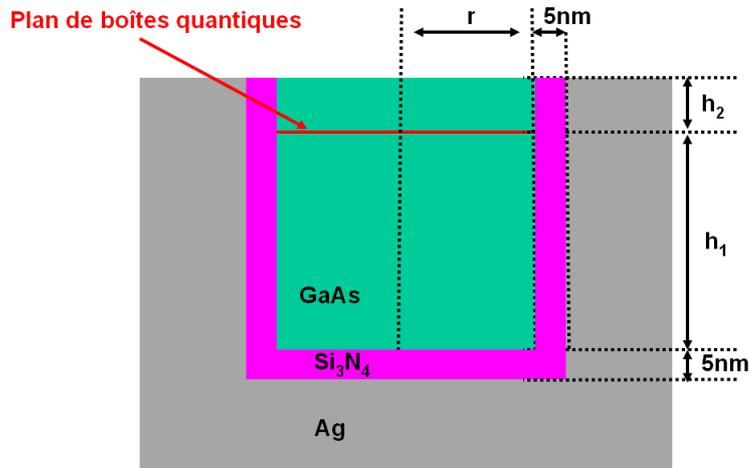


FIGURE 1.18 – Schéma d'une cavité plasmonique de type "cylindrique". La résonance est à la fois liée à la réflexion des miroirs et au couplage au plasmons de surface. Les dimensions sont $r = 95\text{nm}$, $h_1 = 70\text{nm}$ et $h_2 = 9\text{nm}$ [95].

1.4 Conclusion

Dans le cadre de ce chapitre, nous avons introduit les motivations et les deux briques de base de ce travail de thèse : les boîtes quantiques et les microcavités. Au début de ce travail, les boîtes quantiques InAsP/InP constituent des systèmes émetteurs peu compris. C'est pourquoi nous nous sommes attachés à mieux comprendre leurs propriétés optiques, en corrélation aux conditions de croissance (chapitre 2) et en tant qu'objets individuels (chapitre 3). Enfin, la modification de leurs propriétés émissives par la présence d'une cavité sera présentée dans les deux derniers chapitres.

Chapitre 2

Croissance et caractérisation d'ensembles de boîtes quantiques

L'étude des boîtes quantiques nécessite au préalable de comprendre leur processus de formation et l'impact des principaux paramètres de croissance sur la morphologie et l'émission des boîtes. La croissance de boîtes quantiques auto-assemblées peut se faire de deux manières différentes soit par EPVOM (Épitaxie en Phase Vapeur aux Organométalliques) ou par EJM (Épitaxie par Jet Moléculaire). Cependant l'épitaxie de boîte InAsP s'avère difficile par EJM. Afin d'étudier optiquement ces structures, un banc de microphotoluminescence a été développé pour analyser le comportement spectral et dynamique de ces émetteurs. Dans la première partie de ce chapitre l'objectif sera d'expliquer le processus de formation des boîtes par EPVOM et pourquoi l'épitaxie par EJM ne parvient pas à créer des boîtes de manière simple. Il sera également fait une analyse structurale des échantillons créés afin de comprendre les impacts des paramètres de croissance sur les caractéristiques structurales des boîtes. Dans la seconde partie de ce chapitre, les techniques d'analyse optique seront décrites, avec un point d'attention tout particulier pour le banc de microphotoluminescence. Quant à la dernière partie de ce chapitre, elle sera consacrée aux études spectrales d'ensemble de boîtes quantiques et permettra de confirmer que le système InAsP est un bon candidat pour l'émission aux longueurs d'onde des télécommunications.

2.1 Croissance par EPVOM et analyse structurale

2.1.1 Principe de l'EJM : Limite pour la formation des boîtes quantiques sur InP

La technique de l'épitaxie par jet moléculaire a été développée pour la croissance cristalline des semi-conducteurs. Il s'agit d'une technologie en ultra-vide ($P < 10^{-6}$ mbar) basée sur l'évaporation séquentielle des constituants élémentaires placés dans des cellules à effusion. Un des avantages de cette méthode repose sur le contrôle de la croissance en temps réel grâce à l'utilisation in situ de la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante ou RHEED (pour plus de détails sur le fonctionnement d'un tel bâti se référer à [96]). La fabrication de boîtes quantiques d'InAs/InP par EJM est assez délicate. En effet l'épitaxie d'InAs sur une couche

tampon d'InP ne donne pas toujours lieu à une transition de Stranski-Krastanov (l'explication de ce phénomène sera faite à la section suivante) immédiate, un arrêt de croissance est souvent nécessaire. La transition est généralement observé par RHEED pendant cet arrêt de croissance. Dès les premières études de croissance d'InAs/InP (001) par EJM [97], il apparaît que la transition de Stranski-Krastanov donne lieu à la formation de structures allongées. Ces structures sont appelées bâtonnets quantiques.

Certaines équipes ont choisi d'optimiser la croissance EJM de bâtonnets quantiques sur substrat d'InP qui dans certain cas ont des propriétés optiques proches de celles de boîtes quantiques [98]. D'autres équipes ont tenté de trouver des solutions pour épitaxier effectivement des boîtes quantiques. Voici certains exemple :

- Épitaxie à l'aide d'un quaternaire [99]
- Épitaxie sur des gouttes d'élément III [100]
- Modification de la pression partielle d'arsenic [101]
- Changement de l'orientation du substrat (311) [102]

Cette liste non-exhaustive permet de conclure que la croissance de boîtes quantiques par EJM s'avère difficile et constitue un premier enjeu de recherche avant même la phase d'étude des boîtes quantiques comme source de photons uniques. Au contraire la croissance de boîtes InP par EPVOM s'avère être plus aisée [103]. Par conséquent c'est le mode de croissance sélectionné pour ce travail de thèse.

2.1.2 Principe de l'EPVOM

Les processus physiques et chimiques de la croissance par EPVOM sont particulièrement complexes et ont fait l'objet de nombreuses études. Nous allons résumer ici les mécanismes les plus importants [104] pour la suite de l'étude.

Le gaz vecteur chargé de précurseurs est injecté au sommet de la chambre de réaction et évacué à sa base. La géométrie de la chambre et de l'injection des gaz est optimisée pour obtenir un flux laminaire à la surface du substrat. Les processus permettant la croissance ont lieu à la surface du substrat et à proximité de celui-ci dans une zone appelée couche limite. Près de la surface du substrat chauffé, plusieurs réactions successives permettent la pyrolyse (ou "craquage") des précurseurs. Les produits des réactions de pyrolyse sont d'une part des radicaux méthyls ou hydrogène se recombinaient en gaz (principalement du méthane avec nos précurseurs), et d'autre part les éléments à épitaxier (adatoms), le plus souvent sous forme atomique. Les adatoms sont adsorbés sur la surface du substrat ; ils occupent alors un site cristallographique à la surface de celui-ci. Ils restent cependant mobiles sur la surface de croissance : ils peuvent sauter d'un site cristallographique à un autre. Ce mécanisme de saut de site en site étant thermiquement activé, la mobilité des adatoms à la surface du substrat augmente avec la température de croissance. Les adatoms migrent sur la surface de croissance jusqu'à leur incorporation, préférentiellement sur un bord de marche atomique du substrat. Des concentrations d'adatoms peuvent également s'incorporer spontanément sur une surface plane. Dans les deux cas, l'incorporation peut être favorisée par la présence de défauts ou de contraintes locales.

Ce schéma de croissance est obtenu pour des conditions bien précises. Le

choix de la température est de première importance puisque celle-ci intervient dans les réactions de pyrolyse ainsi que dans les processus de migration et de nucléation. Les adatoms adsorbés et mobiles sur le substrat, notamment les éléments V, peuvent désorber dans le cas de températures de croissance trop élevées. Pour cette raison, la température de croissance est choisie inférieure à 700°C . A basse température, la croissance est limitée par la chute du rendement des réactions de craquage des précurseurs, et plus particulièrement des hydrures. Les basses températures de croissance peuvent de plus favoriser l'incorporation de carbone provenant des radicaux méthyles dans les couches, ce qui peut altérer les propriétés du matériau épitaxié (dopage non intentionnel par exemple). Les températures de croissance idéales sont en général comprises entre 600 et 700°C [105].

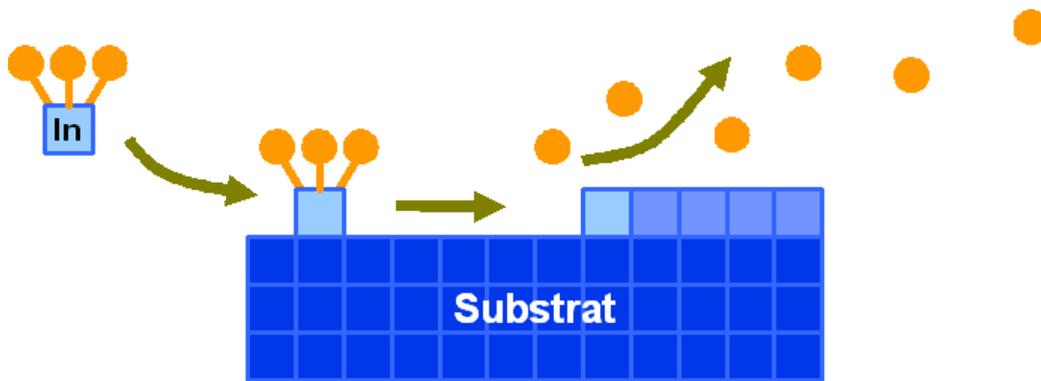


FIGURE 2.1 – Schéma représentant le dépôt des atomes sur le substrat grâce à des précurseurs H_2 (point orange).

Les adatoms d'éléments V en surface sont moins stables et désorbent plus facilement que les adatoms d'éléments III. Ces deux effets doivent être compensés par un fort excès de précurseurs des éléments V dans la phase vapeur. Pour un excès de précurseurs des éléments V suffisant, la croissance est limitée par le flux d'élément III ; la vitesse de croissance est alors proportionnelle au flux d'éléments III. L'excès d'éléments V est caractérisé par le rapport des flux incidents d'éléments V et d'éléments III, appelé rapport V/III ; celui-ci varie de 3 à 300.

2.1.3 Formations des boîtes quantiques

Régime de croissance Stranski-Krastanov

Le régime de croissance Stranski-Krastanov va être décrit de façon simplifiée¹.

Dans le régime de croissance Stranski-Krastanov (SK), la croissance est d'abord bidimensionnelle (voir figure (2.2) (a)). L'incorporation des espèces se fait sur des marches atomiques ou bien par nucléation entre adatoms, comme dans le régime de croissance classique 2D. A cause de la différence de paramètre de maille entre le substrat et le matériau épitaxié, de l'énergie élastique s'accumule (sous forme de contrainte) dans la couche quand l'épaisseur augmente, ce qui conduit à une relaxation par formation d'îlots dans le cas idéal (voir figure (2.2) (b)). De nombreux modèles montrent cependant qu'il existe une taille critique pour la formation

1. Pour plus de détails consulter la thèse d'Adrien Michon [106].

d'îlots [107] : la transition SK n'a pas lieu tant que l'épaisseur critique n'est pas atteinte et la formation des îlots dépend d'autres paramètres, notamment cinétiques. Pour de fortes vitesses de croissance, la surface est riche en adatoms et ceux-ci se rencontrent facilement pour former des îlots stables, ce qui permet d'obtenir de fortes densités de boîtes [108]. Au contraire, pour de faibles vitesses de croissance, la surface est pauvre en adatoms et ceux-ci doivent migrer sur de plus grandes distances pour se rencontrer. La nucléation plus lente peut diminuer la densité de boîtes nucléant spontanément et favorise la nucléation de boîtes sur des défauts ou sur des champs de contraintes résiduelles. Dans le cas d'une nucléation essentiellement spontanée, les îlots formés sont éloignés les uns des autres d'une distance de l'ordre de grandeur de la longueur sur laquelle les adatoms ont diffusé à la surface du substrat.

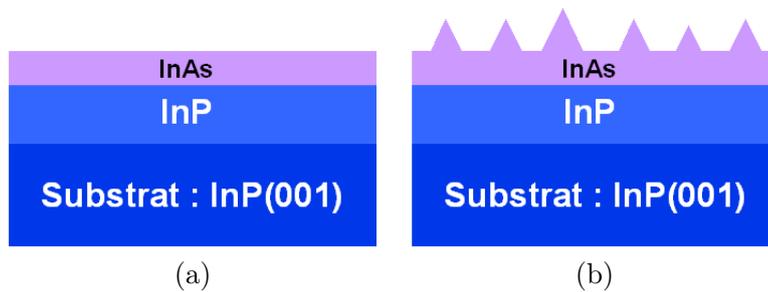


FIGURE 2.2 – (a) : Croissance bidimensionnelle. (b) : Formation d'îlots par relaxation de contrainte par le procédé SK.

Les îlots formés relaxent la contrainte en adoptant un paramètre de maille proche de celui du matériau massif. Ils constituent donc un site de nucléation favorable pour les adatoms arrivant sur le substrat. Après la nucléation des premières boîtes, le matériau apporté à la surface du substrat alimente la croissance des îlots et non plus celle de la couche de mouillage. La migration des adatoms sur le substrat étant plutôt aléatoire, les adatoms vont statistiquement nucléer sur la boîte quantique la plus proche. Par conséquent, plus une boîte est isolée, plus la quantité de matériau alimentant sa croissance sera importante et plus elle sera grosse. En continuant de déposer le matériau, les îlots continuent de croître ; la partie la plus relaxée au sommet de la boîte impose de plus fortes contraintes à sa base, encore à l'accord de maille avec le substrat. Après une taille critique, des dislocations se forment à la base de la boîte. Ces dislocations, constituant des pièges non radiatifs pour les porteurs, sont fortement préjudiciables pour les applications.

Ce procédé de fabrication va donc créer des boîtes de manière aléatoire sur la surface de l'échantillon, rendant impossible la localisation précise d'une boîte. De plus le principe même de la création des îlots va générer sur l'échantillon une dispersion en taille des boîtes. La différence de taille engendre une modification de la longueur d'onde d'émission et par conséquent le spectre attendu d'un tel échantillon sera étendu sur une grande gamme spectrale. Il est donc important de maîtriser la croissance afin d'obtenir des boîtes de nature et de formes qui les fera émettre aux longueurs d'onde souhaitées.

Une fois les îlots d'InAs formés, la croissance s'achève en encapsulant les boîtes quantiques par une couche d'InP de 130nm d'épaisseur. Pendant la phase

d'encapsulation l'InAs peut désorber. Ainsi plus l'encapsulation est lente plus la boîte a le temps de désorber et plus elle sera basse. A l'opposé plus la vitesse d'encapsulation sera élevée moins la boîte aura le temps de désorber et plus elle sera haute (voir figure (2.3)).

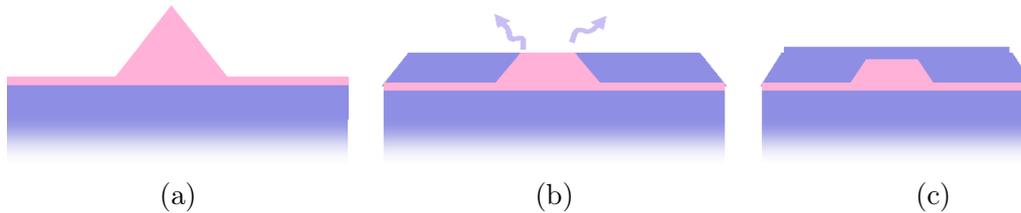


FIGURE 2.3 – De gauche à droite (de (a) vers (c)) étapes d'encapsulation des boîtes. Les boîtes sont "rabotées" par le haut sous l'effet de l'encapsulation.

Afin de mieux cerner les mécanismes de formation des boîtes en fonction des paramètres de croissance, il est donc nécessaire de développer un protocole permettant une analyse structurale des échantillons.

2.1.4 Analyse structurale

L'analyse structurale est effectuée par TEM (microscope électronique à transmission)(voir [109]). L'impact des paramètres de croissance sur la formation des boîtes quantiques a fait l'objet de la thèse de Bruno Fain au laboratoire. Pour plus de détails voir [109]. J'ai accompagné cette analyse par des mesures de luminescence sur les objets épitaxiés. Nous proposons donc un bref aperçu des résultats.

La première chose à déterminer est la température de croissance qui joue un rôle transverse sur tous les paramètres de croissance. Soit T_{opt} la température optimale de création des boîtes quantiques. L'effet de la température peut être expliqué ainsi :

- Lorsque $T < T_{opt}$: la longueur de diffusion de l'indium est très faible et par conséquent il n'y a pas de création d'îlots stables. Donc pas de formation 3D ; ne se forme qu'un puits 2D.
- Lorsque $T > T_{opt}$: La longueur de diffusion de l'indium augmente ce qui permet une grande mobilité des espèces et donc la création de grandes et grosses boîtes quantiques. De plus la vitesse de désorption des boîtes durant le processus d'encapsulation dépend fortement de la température. Lorsque la température augmente, la vitesse de désorption augmente. Par conséquent le processus d'encapsulation doit être fait plus rapidement pour conserver la hauteur de la boîte quantique.

Il est donc nécessaire de déterminer la température optimale de croissance. Dans notre cas elle a été établie à 505°C.

L'étude menée sur les paramètres de croissance a permis d'établir un lien entre les caractéristiques structurales de la boîte et les flux d'éléments V durant la croissance, ainsi que le temps de croissance et la vitesse d'encapsulation. Durant cette étude, lors de la variation d'un paramètre les autres sont restés fixes ce qui a

permis d'établir des lois de croissance autour d'un point d'utilisation précis, point de formation optimal des boîtes.

Si la variation du flux des gaz d'éléments V modifie la densité et la hauteur des boîtes quantiques, le temps de croissance a un impact global en modifiant la taille de la boîte dans les 3 directions de l'espace. Ainsi en modifiant les paramètres, il est possible d'épitaxier un échantillon avec des boîtes de taille et composition proche de la valeur souhaitée. Il est donc important d'étudier l'influence de ces modifications structurales sur la photoluminescence de ces boîtes, afin de déterminer si elles peuvent faire de bon candidats pour la fabrication de sources de photons uniques aux longueurs d'onde des télécommunications. Auparavant, nous allons décrire les protocoles expérimentaux employés pour les analyses optiques.

2.2 Techniques d'analyses optique

Pour obtenir une analyse spectrale des échantillons entre 1.2 et 2.5 μm il est possible d'utiliser la méthode d'analyse spectrale par transformée de Fourier dans l'Infra-rouge : le FTIR.

2.2.1 Interféromètre par transformée de Fourier : le FTIR

Un interféromètre FTIR (Transformée de Fourier dans l'Infra-Rouge) commercial ("Bruker", TENSOR) a été placé près du bâti de croissance d'EPVOM permettant ainsi d'effectuer des mesures sur les échantillons après croissance. Ce dispositif est composé d'un module permettant d'enregistrer l'interférogramme du signal émis par l'échantillon et d'en faire la transformée de Fourier. Il est équipé d'un détecteur en InSb afin de couvrir une gamme spectrale étendue de 1,1 μm à 2,5 μm . Afin d'effectuer des mesures à 77K, l'échantillon est placé au sein d'un cryostat à azote liquide. Le laser d'excitation est un Nd :Yag doublé en fréquence ("Spectra Physics", Millennia, 2W) émettant à 532nm. Le signal émis par l'échantillon est collecté par une lentille de 50mm de focale. Le signal est ensuite envoyé dans le FTIR. Pour ne pas éblouir la photodiode avec le laser d'excitation, un filtre de GaAs poli double face est placé à l'entrée de l'interféromètre. La transformée de Fourier de l'interférogramme permet d'obtenir le spectre de l'échantillon observé.

Si le FTIR, par la taille du spot d'excitation sur l'échantillon de 3cm de rayon, permet d'étudier la photoluminescence de l'échantillon massif il ne permet pas d'étudier à 4K l'émission d'un faible nombre de boîtes. La mise au point d'un banc de microphotoluminescence s'avère indispensable.

2.2.2 Banc de microphotoluminescence

Afin d'étudier un faible nombre de boîtes quantiques et dans la perspective d'en étudier qu'une, un banc de microphotoluminescence (μPL) a été développé. Ce banc permet grâce à un cryostat à flux continu d'hélium d'effectuer des mesures de 4K à 300K. Le cryostat est placé sur des platines Microcontrôle motorisées afin de permettre un pointé précis sur l'échantillon. Les platines sont contrôlables grâce à un contrôleur "ESP 300". Le schéma de la figure (2.4) présente le banc optique. Pour plus de clarté l'explication du montage sera décomposé en trois grandes parties :

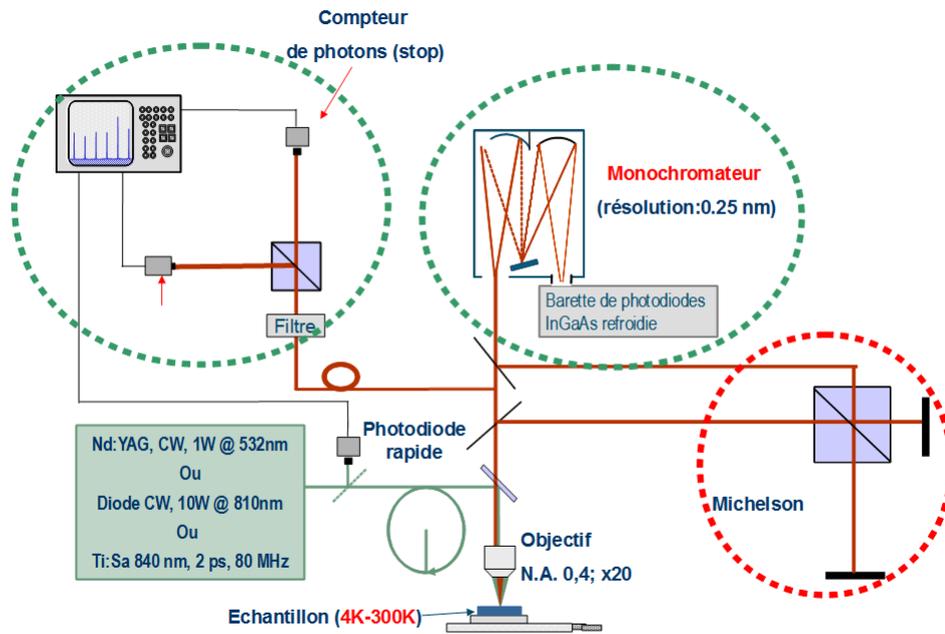


FIGURE 2.4 – Schéma du banc optique de microphotoluminescence.

- Le pompage optique.
- La collection du signal.
- La détection et l'analyse du signal.

Le pompage optique

Les sources laser excitatrices disponibles sont :

- Un laser Nd :Yag pompé par diode, continu et doublé en fréquence émettant à $\lambda=532\text{nm}$ ("Spectra Physics", MILLENIA II) de puissance disponible 50mW. Le faisceau est polarisé linéairement en sortie. Le contrôle de la puissance d'excitation envoyée sur l'échantillon se fait grâce à une lame $\frac{\lambda}{2}$ et un cube séparateur de polarisation.
- Un laser Ti :Sa ("Spectra Physics", Tsunami) pulsée à blocage de modes pompé par un laser Nd :Yag à 532nm. La puissance de sortie du laser est de 2W mais il est couplé dans une fibre pour atteindre le banc optique. Seulement 50mW sont disponibles à la sortie de la fibre. La longueur d'onde de l'impulsion peut être modifiée entre 700 et 900nm. Cependant dans le cadre de ce travail, la longueur a été fixée soit à $\lambda=790$ ou à $\lambda=840\text{nm}$ ². La largeur des impulsions est de $\delta t=5\text{ps}$ (à la sortie de la fibre optique) avec une impulsion toutes les 12,2ns, soit une cadence de 82MHz. Pour contrôler la puissance incidente sur l'échantillon, comme pour la ligne à 532nm, une lame $\frac{\lambda}{2}$ et un cube séparateur de polarisation sont utilisés.
- Une diode fibrée à 840nm, continue ayant une puissance de sortie de 250mW. Le réglage de la puissance de pompe se fait grâce à la lame $\frac{\lambda}{2}$ et le cube

2. Lors des études il sera précisé la longueur d'onde utilisée

polariseur.

La collection du signal.

Le laser d'excitation est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de microscope à grande distance de travail, traité anti-reflet pour le visible et le proche infrarouge ("Mitutoyo", M plan APO NIR, $\times 20$, $f=10\text{mm}$, O.N=0,4). Le signal émis par l'échantillon est collecté par le même objectif. Ensuite sur le chemin optique est placée une lame dichroïque qui transmet les longueurs d'onde supérieures à $1\mu\text{m}$ (avec un coefficient $T \simeq 80\%$) et qui réfléchit les longueurs d'onde inférieures à 900nm (avec un coefficient $R \simeq 80\%$). Au-delà de cette lame, le signal est acheminé sur le détecteur.

En parallèle de la voie d'excitation, un système d'imagerie a été placé dans le but de visualiser l'échantillon et pour exciter la zone d'intérêt. La visualisation de l'échantillon se fait par un moniteur vidéo qui affiche l'image obtenue sur la caméra CCD. Cette image est obtenue par la focalisation à l'aide d'une lentille de focale $f=150\text{mm}$ du signal sur la CCD.

Le choix de cette focale a été fait afin de permettre de visualiser sans modification de cette lentille des objets ayant des tailles variant de 200nm à quelques dizaine de microns.

La détection et l'analyse du signal.

Difficulté de la détection à 1550nm

A l'heure actuelle, très peu d'études ont été menées sur des boîtes quantiques uniques à $1.55\mu\text{m}$. En effet, la rareté de photodiodes à avalanche pour la détection de photons uniques à cette longueur d'onde est une barrière technologique. Ce problème est aussi important que la génération de photons uniques à cette longueur d'onde et peut expliquer en partie pourquoi moins de résultats de corrélation de photons sont disponible sur le système InAsP/InP (émettant à 1500nm), en comparaison au système InAs/GaAs (émettant à 900nm).

Le tableau 2.1 répertorie les principaux détecteurs disponibles pour le comptage de photons à $1,55\mu\text{m}$ dans le commerce.

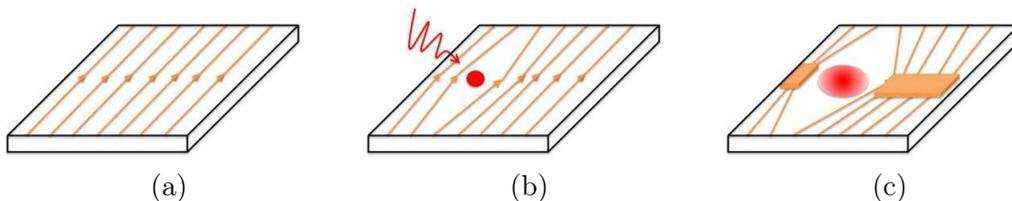


FIGURE 2.5 – *Principe de fonctionnement des SSPD.*

Il a été décidé d'utiliser des détecteurs supraconducteurs de la société russe SCONTEL. Ces détecteurs sont appelés SSPD pour Superconducting Single Photon Detector. Ce choix a été motivé pour leurs bonnes performances. En effet, le fabricant annonce une efficacité quantique de détection d'environ 10%, un temps

| Détection | 1,55 μm | | | visible |
|---------------------------|--------------------|----------------------------------|----------------------------------|-----------------------|
| | SSPD | APD | | |
| Fabriquant | Scontel | Princeton light wave | Id Quantique | Silicium |
| Fonctionnement | continu | trigger externe | trigger externe | continu |
| Taux de répétition | - | 1KHz-5MHz | 1KHz-10MHz | - |
| Taux de comptage | 100MHz | 100KHz | 100KHz | 20MHz |
| Efficacité quantique | 10% | 20% | 20% | 70% |
| Bruit | <50Hz | $3 \cdot 10^{-5} \text{ns}^{-1}$ | $3 \cdot 10^{-5} \text{ns}^{-1}$ | < 100Hz |
| Gigue | <50ps | 120ps | 300ps | 50-400ps |
| Réponse spectrale | <5 μm | 1,3-1,56 μm | 1,1-1,6 μm | 0,4-0,9 μm |
| Temps mort | 10ns | 10 μs | 10 μs | 50ns |
| Température d'utilisation | 2-4K | 50°C | 50°C | 50°C ou ambiante |

Tableau 2.1 – Comparaison des principaux détecteurs du commerce. Le gigue correspond à la résolution temporelle du détecteur.

mort d'environ 10ns, une utilisation en continu et une gigue de 60 ps. Un détecteur SSPD est constitué d'un circuit de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ d'un matériau supraconducteur : le nitrure de niobium (NbN). Ce matériau est déposé sur un substrat de saphir. A la température d'utilisation de 2K, le matériau est supraconducteur. Une fibre optique est fixée sur ce circuit et permet de guider les photons jusqu'au détecteur.

Il est possible de décrire le principe de détection des SSPD ainsi (voir figure (2.5)) :

- Une tension de polarisation est appliquée sur le supraconducteur. Le circuit est ainsi traversé par un courant électrique, inférieur au courant critique de transition supraconducteur (figure (2.5) (a))
- Lorsqu'un photon est absorbé, il y a, localement, création d'un point chaud. Dans cette zone, le détecteur n'est plus supraconducteur (figure 2.5 (b))
- Ce point chaud diffuse le long du circuit en contraignant les lignes de courant à se resserrer. Lorsque localement, la densité de courant dépasse la densité critique, alors le circuit devient résistif. Dans ce cas un saut de tension peut être détecté et être assimilé à l'arrivée d'un photon (figure (2.5) (c))

Le fonctionnement d'un tel détecteur est détaillé dans [110-112].

Analyse du signal

Le chemin optique a été conçu pour permettre l'insertion de différents éléments optiques. En effet, dans le cadre des études en polarisation du signal émis, il est aisé d'insérer dans le chemin optique une lame $\frac{\lambda}{2}$ et un cube polariseur traité anti-reflet à 1,55 μm . Il est également possible de faire passer le signal au sein d'un interféromètre de type Michelson afin d'obtenir à l'aide d'un bras motorisé l'interférogramme de la source. Cet interférogramme permet de remonter à la largeur spectrale de l'émetteur³ lorsque celle-ci est inférieure à la résolution du spectromètre

3. L'explication de l'exploitation des interférogramme sera faite à la section 4.2.3

(0.315nm).

Pour s'affranchir du résiduel du laser de pompe, un filtre Silicium traité anti-reflet à $1,55\mu\text{m}$ est placé dans le chemin optique. Le signal est ensuite envoyé dans le spectromètre de focale 500mm ("Princeton Instruments", SpectraPRO 2500i monté avec un réseau de 600 traits/mm blazé à $1,6\mu\text{m}$). Le signal ainsi dispersé peut être envoyé sur une barrette de photodiodes InGaAs ("Princeton Instruments", OMA V, gamme spectrale 1,1 à $1,6\mu\text{m}$) refroidie à l'azote liquide. Dans cette configuration, la résolution spectrale est de 0,315nm. Une autre possibilité est d'envoyer le signal filtré, correspondant à deux pixels de la caméra, sur les détecteurs SSPD. Pour cela, le signal passe par une fente de sortie latérale du spectromètre. Le signal qui en sort est immédiatement collecté par une fibre optique standard télécom (Monomode à $1,55\mu\text{m}$, diamètre de coeur $9\mu\text{m}$. Référence : SMF-28). Le signal peut ensuite soit être envoyé directement sur le détecteur SSPD soit passer dans un séparateur 50/50 fibré commercial disposant de deux entrées et deux sorties sur lesquelles sont les deux détecteurs SSPD.

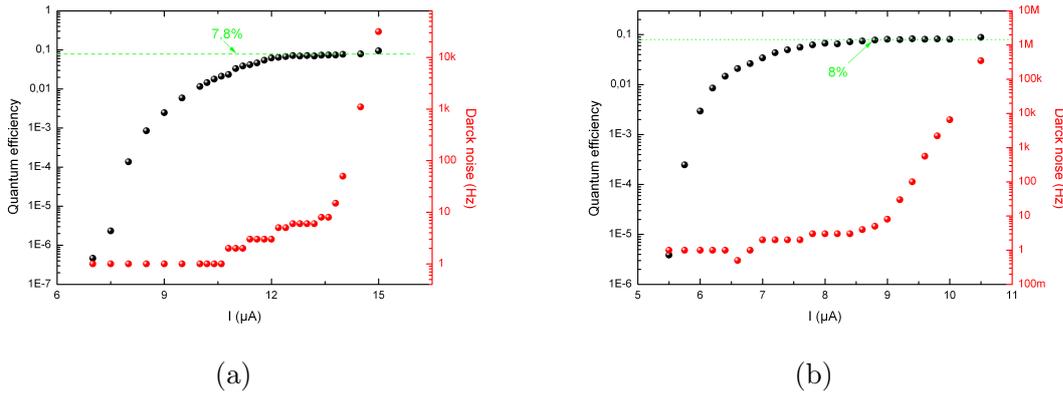


FIGURE 2.6 – Courbe d'efficacité quantique (point noir) et de courant d'obscurité (étoile rouge) des SSPDs (a) détecteur 1 (b) détecteur 2 à $1,55\mu\text{m}$ en fonction du courant de polarisation I des détecteurs.

Le système de détection SSPD présente deux détecteurs indépendants dont chacun dispose d'une efficacité quantique d'environ 10% à $1,5\mu\text{m}$ pour une cinquantaine de coups d'obscurité (voir la figure 2.10). Les signaux générés par les SSPD sont envoyés sur un module de comptage ("Stanford", SR400) et sur un oscilloscope numérique ("LeCroy", WavePro 735Zi, 2,5GHz de bande passante).

En pompage impulsionnel, on peut placer dans la voie d'excitation une photodiode rapide ("Menlosystem", 10-900MHz) qui permet de détecter les impulsions du laser de pompe. En branchant sur une voie de l'oscilloscope la photodiode rapide et sur l'autre un détecteur SSPD il est possible d'effectuer des mesures de durées de vie. Il est important de déclencher la mesure sur le photon de luminescence et de l'arrêter sur un photon du laser pour éviter de sur-échantillonner et de perdre du temps dans l'acquisition car $N_{photons} < N_{laser}$ (avec $N_{photons}$ le nombre de photons signal détectés et N_{laser} le nombre de photons du laser de pompe détectés). La figure

(2.7) schématise ce principe de mesure.

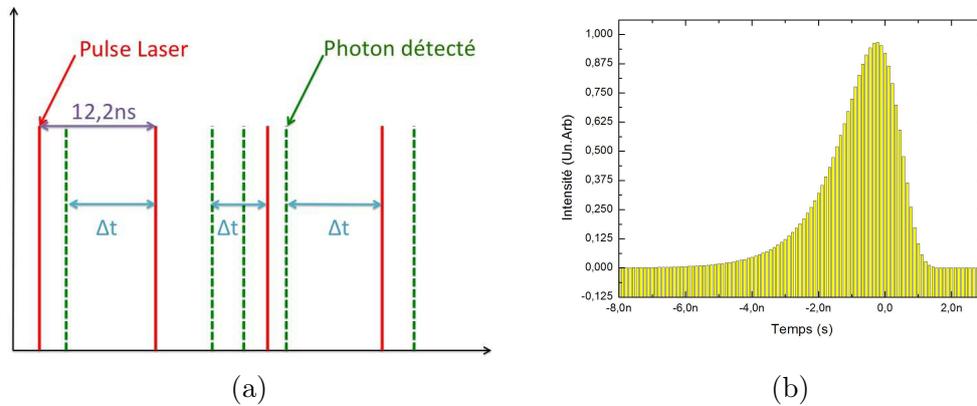


FIGURE 2.7 – *Principe de la mesure résolue en temps. En (a) principe du déclenchement de l'oscilloscope. Nous utilisons un photon de luminescence pour déclencher la voie "start" de l'oscilloscope et un photon du laser d'excitation pour déclencher la voie "stop". Ainsi, nous sommes sûrs que chaque évènement "start" sera suivi d'un signal "stop" qui sera le signal de l'impulsion laser détecté par la photodiode rapide. En (b) exemple d'histogramme des Δt obtenus.*

En branchant sur l'oscilloscope les deux détecteurs SSPD il est possible de faire des mesures de corrélation de photons (voir la section 3.4 pour plus d'explications sur ces mesures).

Il est possible de faire la synthèse des spécificités du banc de microphotoluminescence :

- Etude spectrale de $1,1\mu\text{m}$ à $1,6\mu\text{m}$ avec une résolution spectrale de $0,315\text{nm}$ à $1,55\mu\text{m}$.
- Etude en température de 4K à 300K.
- Mesure de largeur de raie par FTIR.
- Mesure résolue en temps avec une résolution de 80ps.
- Mesure de corrélation de photons.

Si les zones autour de 1.3 et $1.55 \mu\text{m}$ intéressent les télécommunications, la zone au delà de $2\mu\text{m}$ ouvre la perspective de la création de détecteurs de gaz. Dans cette gamme il existe des lasers basés sur des antimoinures, cependant ces lasers épitaxiés par EJM (épitaxie par jet moléculaire) sur des substrats de GaSb ont certes des puissances de sortie très élevés mais avec des puissances seuils très élevés [113-115]. La voie de croissance et le prix du substrat sont autant de facteurs limitants à la production en masse de tels lasers. Il existe également des lasers de InGaAsSbN épitaxiés par EJM ou encore des lasers à puits quantique de $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ sur des substrats d'InP(001). Mais dans ces gammes spectrales au delà de $2\mu\text{m}$ [116, 117], les puits quantiques souffrent d'effets non radiatifs à température ambiante en particulier des effets Auger et de l'absorption intra sous bande. Tout cela a pour inconvénient d'augmenter considérablement les seuils d'émission, de l'ordre de plusieurs kA/cm^2 . C'est pourquoi utiliser des boîtes quantiques comme

milieu à gain pourrait être intéressant. En effet le confinement dans les trois dimensions de l'espace des porteurs pourrait diminuer considérablement le seuil laser en améliorant la tenue en température. Cependant les boîtes quantiques d'InAs sur des substrats de $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ émettent uniquement jusqu'à des températures de 77K [118, 119] sur la gamme spectrale allant de 1.95 à 2.25 μm .

Il est donc important de vérifier le bon comportement optiques des boîtes InAsP/InP à haute température et à des longueurs d'onde supérieures à 2 μm .

2.2.3 Transformation du banc optique vers le 2 μm

Dans la perspective de démontrer que le système InAsP/InP permet d'émettre des photons uniques jusqu'à 2.3 μm , nous avons apporté des modifications au dispositif de détection afin d'atteindre des longueurs d'onde au delà des 2 μm . Si le FTIR commercial présenté à la section (2.2.1) permet de faire des spectres à des longueurs d'onde supérieures à 2.5 μm la caméra InGaAs ne détecte plus au delà de 1.6 μm . Mais les détecteurs SSPD détectent les photons jusqu'à 5 μm . Cependant la fibre optique qui guide la lumière jusqu'au détecteur a une longueur d'onde de coupure de 1.6 μm . Dans le but d'effectuer des mesures sur des échantillons ayant des longueurs d'onde supérieures à 2 μm , une collaboration avec la société Russe SCONTEL a été faite pour modifier cette fibre optique. La fibre SMF-28 a été remplacée par une fibre de "IR Photonics" guidant jusqu'à 3 μm . Il est à noter que sur la ligne d'acquisition les miroirs sont en or et par conséquent leur réflectivité est supérieure à 98% jusqu'à 10 μm environ. Sur le banc de μPL la lumière est envoyée dans la fibre optique grâce à un objectif de microscope. La lumière est récupérée devant le spectromètre.

Ainsi il est possible d'étudier le système InAsP/InP pour des applications au delà de 2 μm .

2.3 Analyse optique des échantillons jusqu'à 2.3 μm

2.3.1 Étude préalable par FTIR

Afin d'étudier le potentiel des boîtes InAsP/InP sur les grandes longueur d'onde, nous avons mesuré le spectre des boîtes quantiques en fonction de certains paramètres de croissance affectant la hauteur des boîtes : la vitesse d'encapsulation et les flux d'arsine et de phosphine. Il a été décidé d'épitaxier 6 échantillons en faisant varier ces 2 paramètres de croissance (voir le tableau (2.2)).

La mesure des spectres d'émission à 300K de ces échantillons a été faite avec le FTIR commercial.

Les spectres des échantillons sont disponibles sur la figure (2.8). On remarque qu'en variant les deux paramètres de croissance, toute la gamme spectrale entre 1.3 et 2.2 μm est couverte. Tous les échantillons présentent un spectre large à cause de la dispersion en hauteur des boîtes. De plus, l'analyse FTIR permet de valider la compréhension des mécanismes de croissance, notamment par l'étude de la longueur d'onde d'émission centrale.

| Echantillon | Ph_3/AsH_3 | InP encapsulation |
|-------------|--------------|-------------------|
| InP 241 | 50 | 50 |
| InP 220 | 30 | 50 |
| InP 233 | 30 | 100 |
| InP 231 | 15 | 50 |
| InP 232 | 6 | 50 |
| InP 165 | ★ | 150 |

Tableau 2.2 – Principaux paramètres de croissances des échantillons. Pour InP165 : (★) Durant la croissance des boîtes, seule la vanne d'arsine est ouverte.

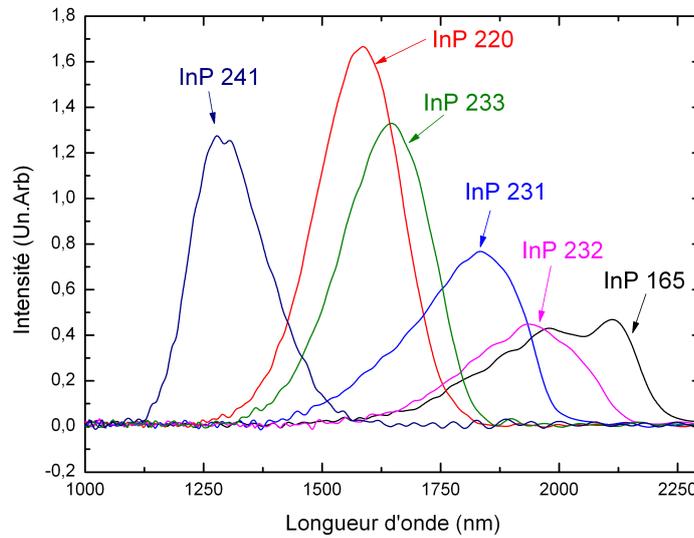


FIGURE 2.8 – Spectres obtenus par FTIR à 300K des échantillons d'étude.

Cependant, afin de vérifier que ces boîtes conservent un bon comportement radiatif malgré l'augmentation de leurs hauteurs, il est indispensable de mener une étude résolue en temps pour accéder aux durées de vie radiative, en fonction de la température et longueur d'onde centrale d'émission.

2.3.2 Étude en μ PL : Analyse spectrale et durée de vie

Mesure expérimentale

L'étude des histogrammes des temps d'arrivée des photons sur l'ensemble du spectre émis est présentée à la figure (2.9). On remarque des comportements différents entre 4 et 300K sous faible excitation ($2\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$).

Lors de ces mesures tout le spectre est collecté, permettant par conséquent de mesurer des photons issus de l'exciton fondamental de certaines boîtes quantiques ainsi que des photons provenant d'états multiexcités d'autres boîtes quantiques. Afin de comprendre ce phénomène revenons sur les niveaux électroniques des boîtes quantiques.

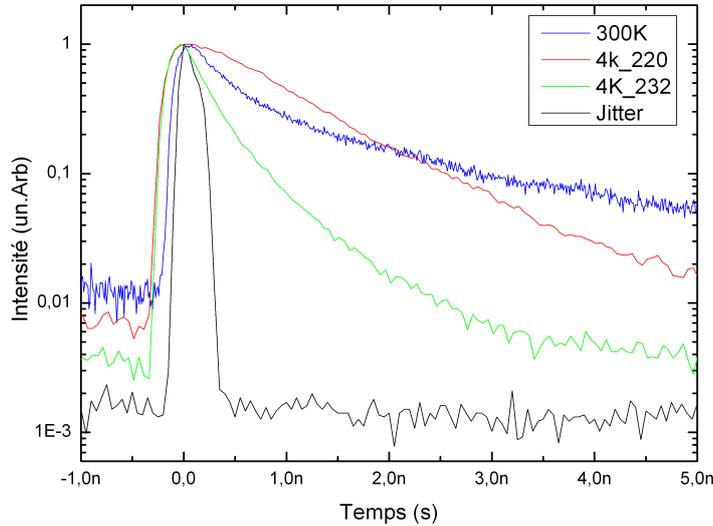


FIGURE 2.9 – Histogramme des durées de vie de l'InP 220 à 4K (bleu) et à 300K (rouge) et l'InP 232 à 4K (vert) pour une puissance de $200\text{mW}/\text{cm}^2$ et pour l'intégralité du spectre. En noir : histogramme du laser pulsé permettant de définir la résolution temporelle du montage. La décroissance de l'histogramme est bi-exponentielle aussi bien à 300K, qu'à 4K, à l'exception des échantillons InP220 et InP233 dont la décroissance est monoexponentielle à 4K.

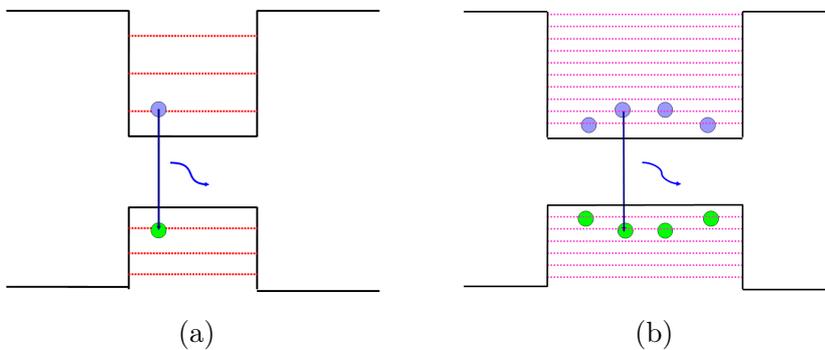


FIGURE 2.10 – (a) : Émission d'un photon à une paire électron trou d'une boîte. (b) : Émission d'un photon depuis une boîte multiexcitée (4fois chargée dans cet exemple) d'une autre boîte. La longueur d'onde d'émission de ces deux raies est à la même longueur d'onde mais la durée de l'état multiexcité sera plus rapide.

Le schéma de la figure (2.10) présente la structure des états discrets électroniques d'une boîte quantique. Lorsque la boîte quantique contient une seule paire électron-trou, sa recombinaison engendre l'émission d'un photon de durée de vie longue. En revanche, lorsque les états multiexcités sont peuplés ces transitions optiques viennent alimenter le spectre d'émission mais avec une durée de vie plus courte. Sur un ensemble de boîtes il est alors possible de collecter un photon à une

paire électron-trou d'une boîte quantique et des photons issus de niveaux multiexcités de boîtes quantiques différentes. Ainsi il est possible d'identifier la décroissance rapide à une émission depuis des états multiexcités et la décroissance lente à un photon issu des transitions optiques fondamentales [120].

Au vu de ces résultats il est indispensable de mener l'étude des durées de vie à 4 et 300K en fonction de la longueur d'onde.

Étude en fonction de la température

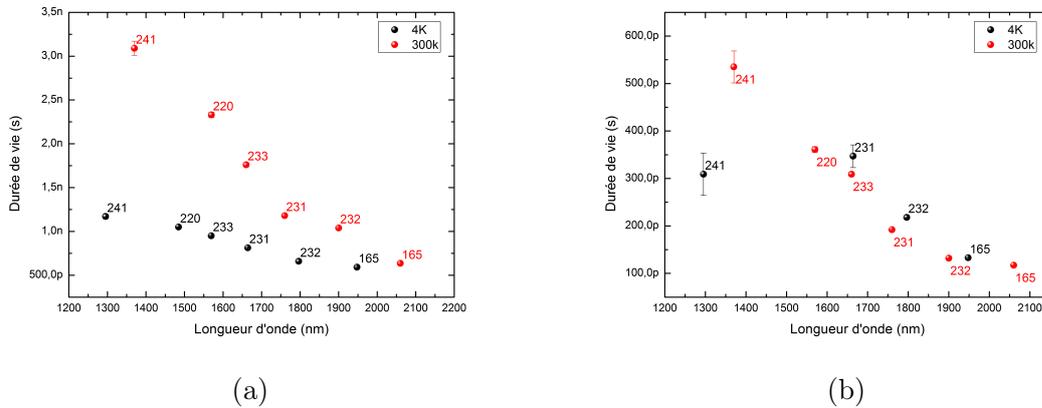


FIGURE 2.11 – Évolution des durées de vie en fonction de la longueur d'onde centrale d'émission des boîtes quantiques pour les 6 échantillons d'études. Rouge : Évolution à 300K. Noir : Évolution à 4K (a) Évolution des durées de vie longues. (b) Évolution des durées de vie courtes.

Les graphiques de la figure (2.11) rassemblent les mesures de durée de vie effectués sur l'ensemble du spectre des différents échantillons listés dans le tableau (2.2). A gauche, est présentée la dépendance des durées de vie "longues" associées à la transition fondamentale. A droite, est présentée la dépendance des durées de vie "courtes" associées à la transition des états multiexcités. Ces graphiques permettent d'observer une augmentation de la durée de vie entre 4 et 300K pour tous les échantillons, à part pour l'InP165 à $2.2\mu\text{m}$ (cet échantillon sera étudié par la suite). Pour comprendre cette augmentation de la durée de vie mesurée avec la température, il faut se rappeler qu'à basse température les paires électrons-trous injectées dans une boîte peuplent les états de plus basse énergie (qui sont radiants) alors qu'à haute température des états non radiants sont également peuplés. Les schémas des figures (2.12) et (2.13) illustrent ce phénomène. La mesure de la durée de vie de l'état excitonique est retardé par le temps de résidence des porteurs sur des états thermiquement activés de plus haute énergie ainsi la mesure effectuée est un temps de vie apparent qui prend en compte ce temps de résidence ainsi que la durée de vie de l'état. Par conséquent la durée de vie apparente à 300K doit être allongé par rapport à la valeur obtenue à 4K ; dans le cas contraire cela indiquerait la présence de voie de recombinaisons non radiatives des porteurs.

Il est à noter la différence avec les boîtes dans le système GaAs. En effet

pour ces boîtes, la durée de vie radiative croît jusqu'à une température seuil puis décroît fortement à cause de deux phénomènes. Le premier est l'apparition de voies de recombinaisons non-radiatives, la seconde est le faible confinement des trous dans la boîte qui peuvent thermiquement sortir de la boîte. L'absence de recombinaison non-radiatives et un confinement plus fort des trous dans notre cas permet l'utilisation des boîtes InAsP/InP à 300K.

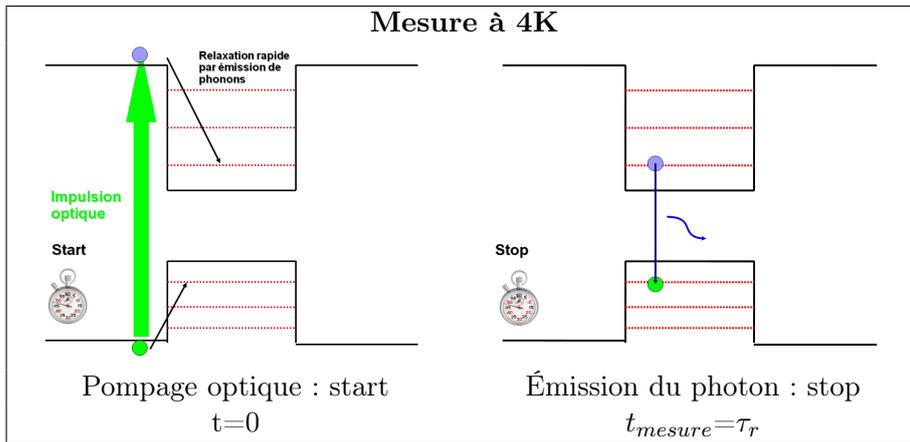


FIGURE 2.12 – Principe des mesures temporelles à 4K . τ_r temps de vie radiatif du niveau S.

D'autre part, l'échantillon InP165 a la même durée de vie à 4K et 300K, qui elle est plus courte par rapport à celle des autres échantillons. Nous pensons que ceci est la signature de chemins de recombinaisons non-radiatifs. Pour cet échantillon des images TEM ont été effectuées. Sur ces images il est possible d'observer un grand nombre de dislocations ($10^8/cm^2$), qui peut être expliqué par la grande dimension de la boîte. En effet pour émettre à cette longueur d'onde, la boîte mesure 5 nm de hauteur impliquant une forte accumulation de contraintes liée au désaccord de maille avec le substrat. Cette forte contrainte accumulée est à l'origine de ces dislocations. L'observation de ces dislocations démontre une limite quand à la longueur d'onde maximale pouvant être atteinte avec ce système. Il est donc intéressant d'étudier l'influence de la taille des boîtes (et par conséquent de la longueur d'onde) sur leur efficacité radiative.

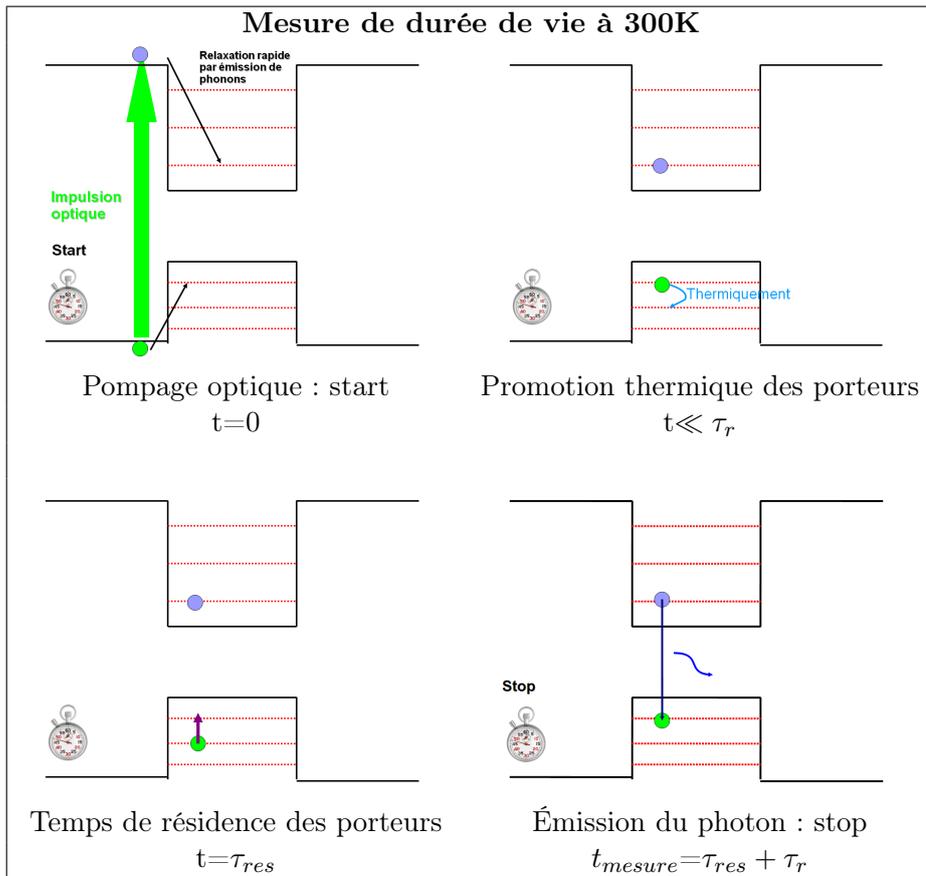


FIGURE 2.13 – Principe des mesures temporelles à 300K. L'agitation thermique promeut les porteurs du niveau excitonique au niveau supérieur qui est non-radiant. Après un temps de résidence τ_{res} les porteurs peuvent émettre un phonon et retombent sur l'état excitonique qui est radiant. Ainsi le temps mesuré est $\tau_{mesure} = \tau_{res} + \tau_r$.

Étude en fonction de la longueur d'onde

L'évolution de la longueur d'onde en fonction de la taille des boîtes se retrouve sur la force oscillateur qui croît avec la longueur d'onde [121]. La force oscillateur traduit l'interaction dipolaire lumière-matière et s'exprime ainsi :

$$f = \frac{\lambda^2}{\tau_l} \frac{\epsilon_0 m c}{2\pi n e^2} \quad (2.1)$$

avec n l'indice de réfraction du milieu ($n=3.17$ pour l'InP à 300K), τ_l la durée de vie radiative, m la masse effective de l'électron, e sa charge élémentaire et c la célérité de la lumière. Pour la masse effective des électrons, sont utilisées les valeurs mesurées dans [122], correspondant à une masse de $m=0.09m_0$, où m_0 est la masse de l'électron dans l'espace libre. Dans ces mêmes travaux il est mentionné que cette masse effective varie en fonction du confinement des électrons de la boîte, et donc en fonction de la taille de la boîte. Cette variation est suffisamment faible pour la négliger.

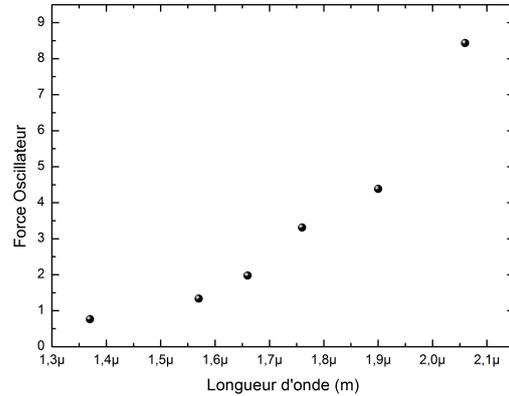


FIGURE 2.14 – Évolution de la force oscillateur à 4K des boîtes en fonction de leur longueur d'onde centrale d'émission. La taille des boîtes augmente avec la longueur d'onde.

D'après le graphique de la figure (2.14), la force d'oscillateur semble être quasi-constante pour des boîtes émettant entre 1.3 et 1.6 μm , en accord avec [120], puis elle augmente pour des boîtes de plus grande dimension. En rappelant que les boîtes les plus petites sont celles émettant aux plus basses longueurs d'onde alors le comportement est celui attendu [121] car dans les petites boîtes le nombre de cellules unitaires participant à l'émission collective (et contribuant à la force oscillateur) est plus faible. Une deuxième conséquence de la différence de taille des boîtes quantiques est la différence en nombre d'états multi-excités qu'elles peuvent avoir. Les boîtes émettant aux courtes longueurs d'onde (par exemple l'échantillon InP 231) sont plus petites et comportent peu d'états multi-excités, relativement proches de l'énergie de la couche de mouillage. Par contre les boîtes émettant aux grandes longueurs d'onde correspondent à des puits de potentiels plus larges et par conséquent leurs états multi-excités sont d'énergie plus basse et leur nombre en dessous de l'énergie de la couche de mouillage est plus grand. Ceci peut être constaté en étudiant le rapport des populations rapides sur lentes ($R_p = \frac{Pop_{pr}}{Pop_{pl}}$) en fonction de la longueur d'onde (voir figure (2.15)).

On note que R_p augmente avec la longueur d'onde et la température indiquant une augmentation de la contribution des états multi-excités. En effet les boîtes émettant aux plus grandes longueurs d'onde sont plus grandes et par conséquent présentent un plus grand nombre d'états multi-excités, dont la durée de vie est courte. Cette augmentation est aussi favorisée par une augmentation de la température car les plus grandes boîtes ont également un plus grand nombre d'états radiants et non-radiants multi-excités qui sont peuplés avec la température.

Le tableau (2.3) résume les informations importantes de cette étude.

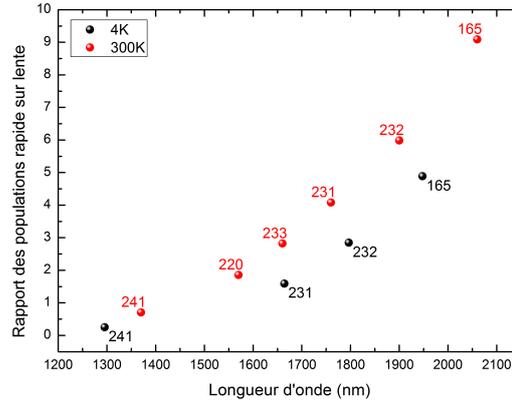


FIGURE 2.15 – Évolution du rapport des populations rapides sur la population lente (R_p) en fonction de la longueur d'onde et de la température.

| Nom de l'échantillon | 4K | | | | 300K | | | |
|----------------------|---------------|----------|----------|-------|---------------|----------|----------|-------|
| | λ | τ_l | τ_r | R_p | λ | τ_l | τ_r | R_p |
| / | μm | ns | | / | μm | ns | | / |
| InP 241 | 1.30 | 1.17 | 0.31 | 0.25 | 1.37 | 3.09 | 0.54 | 0.71 |
| InP 220 | 1.48 | 1.05 | - | - | 1.57 | 2.33 | 0.33 | 1.85 |
| InP 233 | 1.57 | 0.95 | - | - | 1.66 | 1.76 | 0.31 | 2.82 |
| InP 231 | 1.66 | 0.81 | 0.35 | 1.59 | 1.76 | 1.19 | 0.19 | 4.08 |
| InP 232 | 1.80 | 0.66 | 0.22 | 2.84 | 1.86 | 1.04 | 0.13 | 5.99 |
| InP 165 | 1.95 | 0.59 | 0.13 | 4.88 | 2.06 | 0.64 | 0.12 | 9.1 |

Tableau 2.3 – Valeurs d'études à 4K et 300K des échantillons.

2.4 Conclusion

Ce chapitre a permis de décrire la formation des boîtes quantiques par EP-VOM. L'étude de l'influence des principaux paramètres de croissance a permis d'établir l'influence des flux d'éléments V, du temps de croissance et de la vitesse d'encapsulation sur la formation des boîtes quantiques. Ce contrôle de l'épitaxie permet ainsi de créer des échantillons couvrant toute la gamme spectrale allant de 1.2 à 2.3 μm .

Afin d'étudier optiquement ces échantillons, il a été présenté les différents outils optiques utilisés au cours de ce travail de thèse. La difficulté de la détection à 1.55 μm constituait une barrière qui a pu être levée grâce aux détecteurs supraconducteurs SSPD permettant d'effectuer des mesures résolues en temps et en comptage de photons.

L'étude de la dynamique d'émission sur des ensembles de boîtes quantiques a permis de mettre en évidence la faible influence des effets non radiatifs à haute température de 1.3 à 1.86 μm . Ce système est par conséquent un très bon candidat pour la réalisation de sources de photons uniques ou de milieu à gain optique à température élevée.

Dans le chapitre suivant nous étudierons l'émission de boîtes uniques afin de comprendre les processus de recombinaison des états multi-excités et mono-excités.

Chapitre 3

Étude sur boîte quantique unique : Vers une source de photons uniques

L'étude sur ensemble de boîtes InAsP/InP menée précédemment a permis de confirmer un bon comportement radiatif de ces émetteurs. Dans le cadre de la réalisation d'une source de photons uniques, il est indispensable d'isoler un dipôle unique et donc une boîte quantique unique. Or, la croissance des boîtes quantiques ne permet qu'un contrôle partiel de leur densité et leurs sites de nucléation sont aléatoires. D'autre part, contrairement à un atome, une boîte quantique est constituée de 10^5 atomes et se situe au sein d'un réseau cristallin ce qui aura pour effet de créer des interactions entre la boîte et son environnement. Ces interactions peuvent modifier l'émission de la boîte quantique. De plus, les boîtes quantiques peuvent accommoder un grand nombre d'excitations excitoniques susceptibles de modifier leur spectre. Dans ce chapitre, nous présenterons une étude spectroscopique des boîtes quantiques InAsP/InP uniques, par des mesures spectrales en fonction de la température et de la puissance d'excitation. Nous démontrons quelques limites de l'analogie entre les boîtes quantiques et les atomes. Ces travaux démontrent l'impact des états multiexcitoniques sur les propriétés de luminescence de ces objets. Nous concluons ce chapitre par la démonstration de l'émission de photons uniques.

3.1 Du choix de l'échantillon à l'isolation d'une boîte unique

3.1.1 Choix de l'échantillon

Pour cerner les propriétés de luminescence des boîtes quantiques uniques, il convient d'en isoler une et une seule. Il est important de rappeler que la longueur d'onde d'émission des boîtes quantiques dépend de leur taille. Dans un échantillon épitaxié, les boîtes auto-assemblées ont des tailles réparties de manière aléatoire et par conséquent des longueurs d'onde variées résultant sur un spectre très large. Un exemple de spectre est donné sur la figure (3.1). Sur ce spectre on peut observer des raies fines, notamment aux courtes longueurs d'onde, ce qui est une des signatures de l'émission de boîtes individuelles. Pour mieux isoler un faible nombre de boîtes, une des solutions est la gravure de mésas¹.

1. Pour rappel, un échantillon est composé d'un substrat d'InP :Fe (001) sur lequel nous avons fait une couche tampon d'InP avant le plan de boîtes. Le plan de boîtes est protégé par une couche

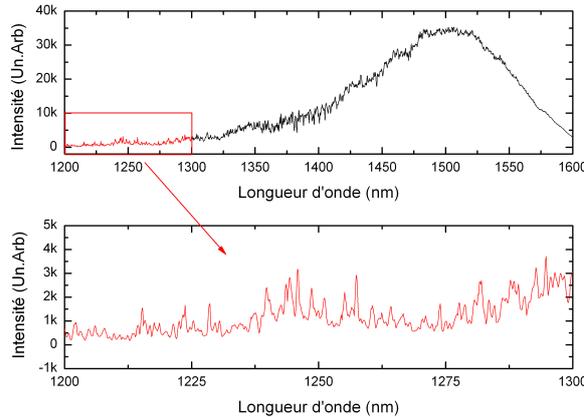


FIGURE 3.1 – *En haut* : Spectre d'un échantillon de boîtes quantiques $InAsP/InP$ à $4K$ sous excitation continue ($\lambda=532nm$) avec une puissance d'excitation de $6.37mW/cm^2$. *En bas* : zoom sur les courtes longueurs d'onde. Il est possible d'apercevoir des pics fins ($< 0.5nm$), signatures de l'émission de boîtes quantiques individuelles à ces longueurs d'onde.

3.1.2 Comment isoler quelques boîtes : la gravure de mesas

La première idée pour isoler un faible nombre de boîtes quantiques est l'installation d'un microscope confocal. Le principe d'un tel montage est de collecter la lumière émise par une zone réduite de l'échantillon. Cette zone est sélectionnée en faisant l'image d'un trou (ou "Pinhole") sur l'échantillon. Pour cela il suffit de mettre deux lentilles de même focale dans le chemin optique. L'alignement nécessite de confondre le foyer image de la première lentille avec le foyer objet de la seconde (voir la figure 3.2). Ainsi un faisceau parallèle arrivant sur ce montage ressortira de la même manière. Si à présent on place un trou au point focal image de la première lentille, alors on effectue un filtrage spatial sélectionnant ainsi une zone spatiale de notre échantillon.

Cette approche est limitée pour deux raisons :

- L'impossibilité de revenir d'un jour sur l'autre sur la même boîte. En effet ce montage permet simplement de sélectionner une zone de notre échantillon de manière arbitraire car aucune marque ne permet de revenir exactement au même endroit.
- La chute d'intensité liée au filtrage ne permet pas d'effectuer des mesures résolues en temps sur la boîte ainsi sélectionnée.

C'est pour ces raisons que nous avons décidé de graver des piliers sur l'échantillon, appelés mesas. Cette géométrie résout totalement les problèmes soulevés via le simple recours au microscope confocal. Lors de la création du masque de gravure il est possible d'y intégrer des marques permettant un repérage sur l'échantillon et donc de revenir exactement sur la même zone plusieurs fois. De plus le signal n'étant pas filtré, l'intensité lumineuse collectée est plus importante et permet de faire des mesures résolues temporellement.

La mise au point des mesas nécessite la création d'un masque grâce au logiciel

d'encapsulation d'InP. La structure de notre échantillon nous permet de le graver, isolant ainsi un faible nombre de boîtes.

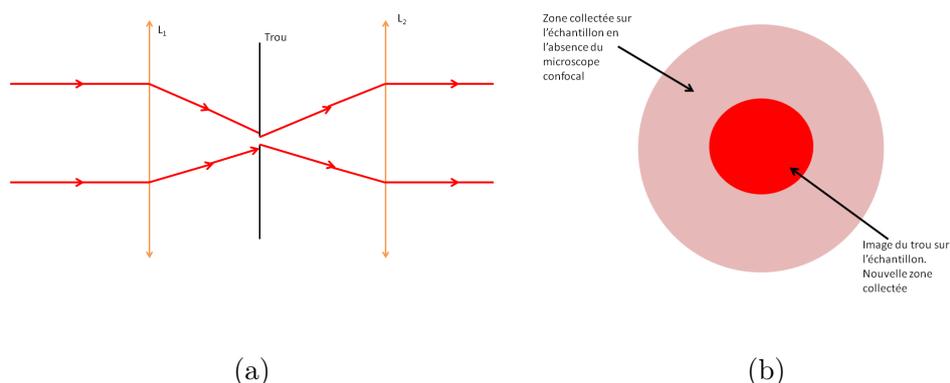


FIGURE 3.2 – Principe du microscope confocal. (a) Principe du montage expérimental. (b) représentation du filtrage spatial lié au microscope confocal. Le rayon de la zone collectée est proportionnel au rayon du trou mis dans le plan focal de la lentille.

L-Edit (logiciel du groupe Tanner). La mise au point de ce masque permet de définir sa structuration grâce à des marques que nous pouvons y placer (voir la l'image (b) de la figure (3.3)). Ainsi il sera aisé de revenir sur un même mesa à différents moments.

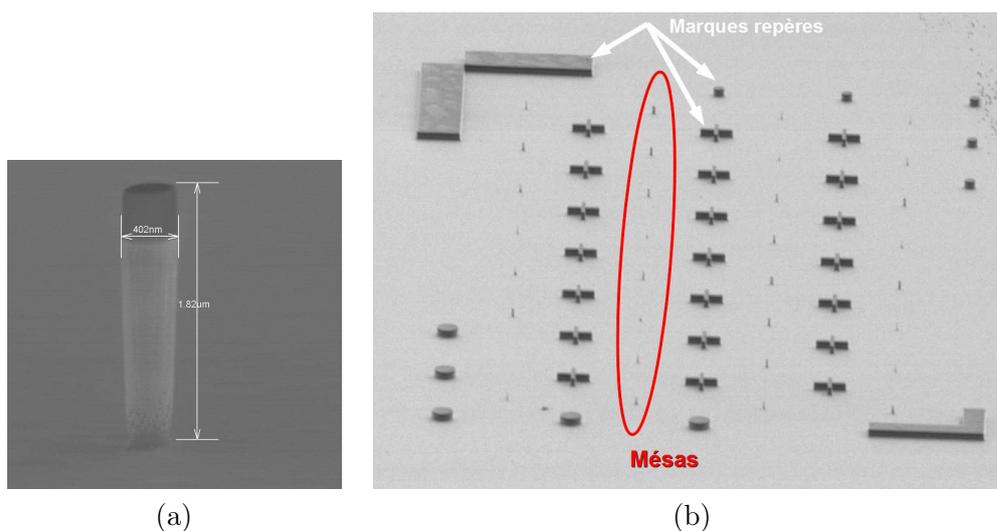


FIGURE 3.3 – (a) Image au Microscope Électronique à Balayage (MEB) d'un mesa de 400nm de diamètre. La partie noire en son sommet correspond au masque de nitrure résiduel. (b) Image MEB d'un champ de mesas. Nous pouvons y voir les marques repères en croix, et entre elles les mesas.

La fabrication des mesas décrite sur la figure (3.4) débute par le dépôt d'une couche de 300nm de nitrure de silicium Si_3N_4 (déposé à 300°C par PECVD pour Plasma Enhanced Chemical Vapour Deposition) sur laquelle on dépose une couche de 450nm de PMMA (Polyméthacrylate de méthyle). La résine est polymérisée pendant une phase de recuit de 15min à 150°C, qui la rend sensible à un faisceau d'électrons. Ainsi sous un faisceau d'électrons, les liaisons entre les molécules se brisent, permettant de retirer les zones insolées grâce au révélateur adapté. Le masque d'insolation utilisé correspond à celui préalablement dessiné sur L-Edit. Par lithographie

électronique (Leica EBPG 5000+), le masque est transféré sur la résine par le faisceau d'électron avec une résolution de 2.5nm.

Une fois la résine révélée, elle est le négatif du masque souhaité. Il est donc nécessaire de déposer une couche de métal de quelques centaines de nanomètre sur notre échantillon. Ainsi lors du retrait de la résine le masque métallique présent sur l'échantillon correspondra à celui souhaité. L'échantillon est ensuite placé sur la cathode du bâti de CCP-RIE (Capacitively Coupled plasma - Reactive Ion Etching) permettant une gravure directionnelle du nitrure grâce à l'action combinée du bombardement des ions positifs et de l'attaque chimique des espèces non ionisées dans l'enceinte. Le nitrure est ainsi intégralement gravé à l'exception des zones protégées par le métal. L'échantillon est ensuite placé au sein d'un bâti de ICP-RIE (Inductively Coupled Plasma - Reactive Ion Etching) afin de graver sur quelques microns le semi conducteur non protégé par le nitrure.

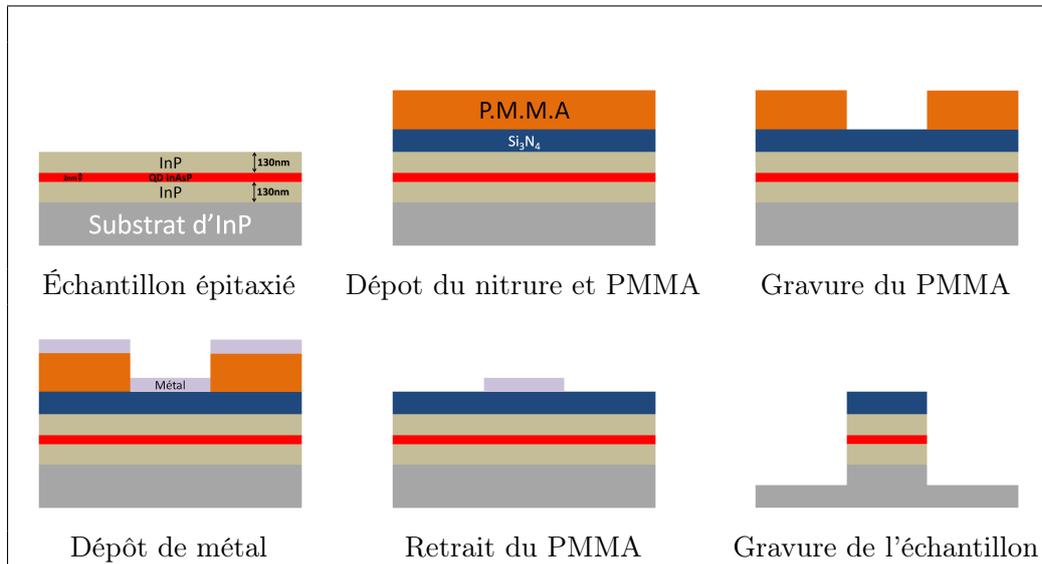


FIGURE 3.4 – Principe de réalisation des mesas.

Ainsi la structuration initialement souhaitée est retranscrite sur l'échantillon permettant une étude localisée. L'image MEB d'un tel mesa est présentée sur la figure (3.3).

L'étude optique des premiers mesas (présentée sur la figure (3.5)) permet d'observer des raies fines et intenses issues des boîtes quantiques. Cependant nous remarquons clairement que l'intensité des raies aux courtes longueurs d'onde est jusqu'à 10 fois supérieure à l'intensité émise sur l'échantillon massif. Cette observation indique que les mesas jouent un rôle de guide d'onde en redirigeant partiellement la lumière des boîtes quantiques. De plus, la présence de pics fins bien distincts sur le spectre des mesas confirme que la structuration permet bien d'isoler des boîtes quantiques individuelles.

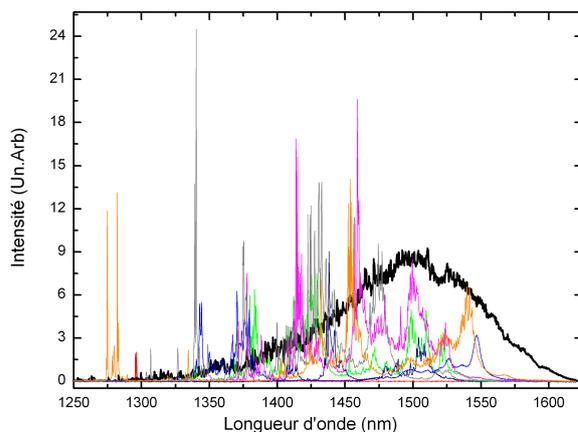


FIGURE 3.5 – Spectres obtenus sous excitation continue ($\lambda=532\text{nm}$) de puissance $6.37\text{mW}/\text{cm}^2$ à 4K . En noir : spectre de l'échantillon non-gravé. En couleur : différents spectres obtenus sur mesa. On remarque que l'intensité des raies fines aux courtes longueurs d'onde est plus grande sur mesa que sur l'échantillon non-gravé.

3.1.3 Étude de l'échantillon : de l'optique au structural

L'échantillon étudié a une densité moyenne de 100 boîtes quantiques par μm^2 . Ainsi il est possible d'estimer entre 20 et 320 le nombre de boîtes présentes sur des mesas de rayon de 250nm à $1\ \mu\text{m}$. L'étude structurale par imagerie TEM de l'échantillon a permis de déterminer que cette densité est en réalité une moyenne sur l'échantillon. Sur les images TEM, il est clair que des zones plus ou moins denses sont observables.

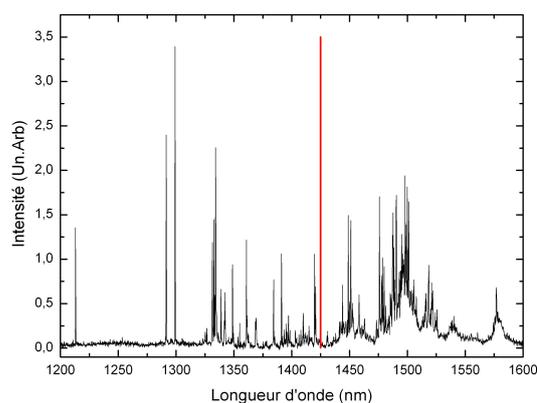


FIGURE 3.6 – Spectre obtenu sous excitation continue ($\lambda=532\text{nm}$) de puissance $6.37\text{mW}/\text{cm}^2$ à 4K d'un mesa de rayon $1\ \mu\text{m}$ à faible puissance d'excitation. Trait rouge vertical : frontière entre la zone caractérisée par des pics fins aux courtes longueurs d'onde et celle caractérisée par des pics larges aux hautes longueurs d'onde. On dénombre une centaine de raies.

A faible puissance d'excitation, moins d'une paire électron-trou est présent dans la boîte, et par conséquent chaque boîte ne pourra émettre qu'un et un seul photon au plus. Ainsi il est possible de comptabiliser le nombre de raies présentes sur le spectre du mesa et d'estimer le nombre de boîtes optiquement actives présentes en son sommet. Sur le spectre de la figure (3.6) quelques 140 raies peuvent être comptabilisées. Chacune de ces raies sous faible excitation peut être attribuée à une boîte quantique. Or, les mesures TEM permette d'estimer à 320 le nombre de boîtes sur ce mesa. L'écart entre ces deux valeurs (140 via l'optique et 320 par les mesures TEM), indique que sur le mesa certaines boîtes ne sont pas optiquement actives. En effet par effet de la gravure, certaines boîtes ont pu être gravées ou alors elles se situent trop près du flanc du mesa, ce qui a pour effet de rendre les effets non-radiatifs prédominants.

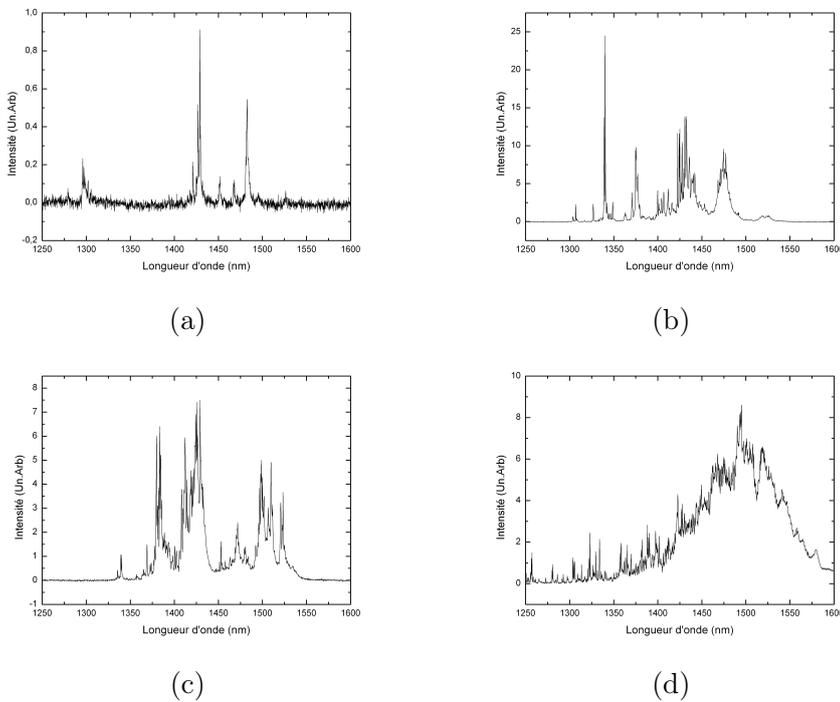


FIGURE 3.7 – Spectres obtenus sous excitation continue ($\lambda=532\text{nm}$) avec une puissance de $6.37\text{mW}/\text{cm}^2$ à 4K en fonction du rayon du mesa (a) 250nm (b) 500nm (c) 750nm (d) $2\mu\text{m}$. Ce dernier spectre est semblable à celui obtenu sur l'échantillon massif.

Dans un premier temps, on peut calculer une aire sur laquelle toutes les boîtes sont suffisamment éloignées du flanc du mesa pour ne pas être gravées ou être soumises à des effets non radiatifs forts. Au vu de la taille latérale des boîtes quantiques de 50nm , seul le disque interne du mesa situé à 75nm du bord sera pris en compte. L'étude a été faite sur une quinzaine de mesas de 3 rayons différents. Le tableau (3.1) résume les résultats obtenus.

L'utilisation d'une surface utile sur les mesas ne suffit pas pour expliquer l'écart entre le nombre de raies présentes sur le spectre et le nombre de boîtes présentes. Cet écart est d'un facteur 2, c'est à dire que la densité de boîtes actives est 2 fois plus faible que leur densité physique. Ceci est probablement dû à un couplage entre boîte proches qui les neutralise optiquement : seules les boîtes relativement

| Rayon mesa (μm) | Nombre de raies | Aire disque utile μm^2 | Nombre de BQs géométrique | Rapport |
|------------------------------|-----------------|-----------------------------------|---------------------------|---------|
| 0.25 | 5 | 0.0908 | 10 | 0.5 |
| 0.5 | 27 | 0.554 | 55 | 0.51 |
| 1 | 140 | 2.66 | 266 | 0.53 |

Tableau 3.1 – Nombre de boîtes quantiques présentes sur le mesa en fonction de son rayon. Sont également indiqués l’aire utile du mesa ainsi que le nombre de boîtes quantiques attendues par le calcul à l’aide de la densité mesurée par TEM. La comparaison du nombre de boîtes entre la géométrie et l’optique montre une différence d’un facteur 2.

isolées et éloignées des autres contribuent au spectre. Par conséquent la densité de boîtes optiquement actives sur l’échantillon est de l’ordre de 50 BQ par μm^2 .

3.1.4 Deux comportements d’émission distincts : la frontière à 1400nm.

Le spectre présenté sur la figure (3.6) permet de définir deux régions. Une première située à des longueurs d’onde inférieures à 1400nm, est constituée de raies fines spectralement (de largeur spectrale inférieure au nanomètre) et intenses. L’autre, située au delà de 1400nm, est composée de raies larges spectralement (de largeur spectrale supérieure au nanomètre) et peu intenses (voir figure (3.8)) [123].

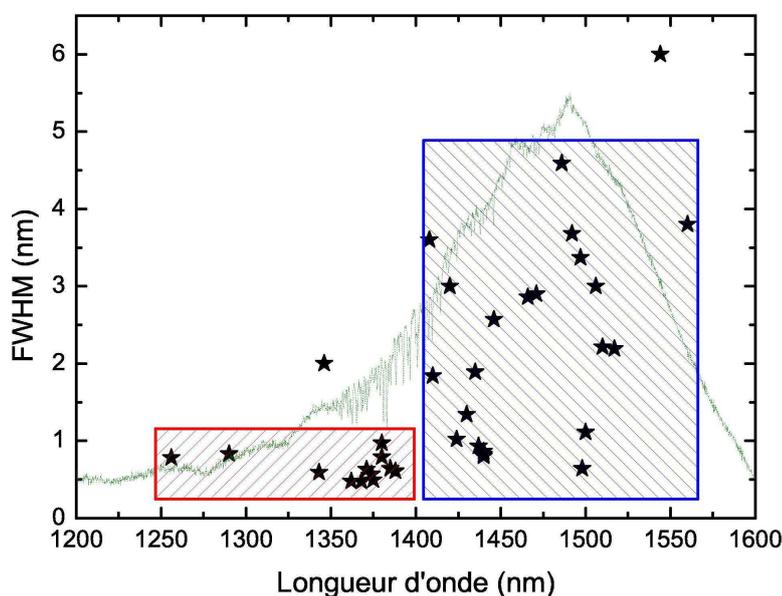


FIGURE 3.8 – Mesure des largeurs à mi-hauteur des raies d’émission des boîtes quantiques uniques en fonction de la longueur d’onde d’émission. Courbe obtenue par Richard Hostein [123].

Des possibles explications pour cette différence sont :

- Au cours du chapitre précédent, le lien entre la taille des boîtes quantiques et leur longueur d’onde d’émission a été établi. Ainsi les boîtes émettant à

$1.55\mu\text{m}$ présentent de grandes tailles. De plus une variation de la dimension latérale des boîtes quantiques est observable sur les images TEM. On peut supposer que le comportement des boîtes émettant à $1.55\mu\text{m}$ se rapproche de celui d'un puits quantique avec un grand nombre d'états donnant ainsi un spectre large [124].

- Une autre possibilité évoqué par J.Salamo dans [125] serait la création d'états mixtes hybrides entre la couche de mouillage et les boîtes quantiques. Cette hybridation se traduit par un spectre large (associé aux états hybridés) sur lequel se superposent les spectres de raies des états excitoniques des boîtes.

3.1.5 Choix des raies à étudier

Afin de mieux comprendre ces deux régimes, nous avons concentré nos études sur trois mesas présentant des raies dans deux régions spectrales :

- Un groupe de raies dans la bande-O des télécommunications. Ce choix s'est porté sur le groupe à 1300nm présenté à la figure (3.9) (a). Il sera nommé $QD_{1.3}$.
- Une raie fine et une raie large dans la bande-C des télécommunications. Elles seront nommées :
 - $QD_{1.54}$ pour la raie présentée sur la figure (3.9) (b)
 - $QD_{1.55}$ pour la raie large centrée à $1.55\mu\text{m}$ présentée sur la figure (3.9) (c)

3.2 Étude à 4K en fonction de la puissance d'excitation

Afin d'attribuer l'émission de ces raies à des transitions optiques dans les boîtes, une première mesure consiste à étudier le spectre d'émission en fonction de la puissance d'excitation. Cette étude que nous avons menée, peut être faite sous excitation continue ou impulsionnelle.

3.2.1 Étude en excitation pulsée

Le laser utilisé est le Ti :Sa à une longueur d'onde de $\lambda=810\text{nm}$, délivrant des impulsions de 10ps à une cadence de 82MHz.

Sur les spectres des figures (3.10) et (3.11) on observe une augmentation de l'amplitude et du nombre des raies d'émission en fonction de la puissance de pompe. Afin d'étudier cette évolution de façon quantitative, on peut recourir à un modèle simple [126] :

- Premièrement, nous supposons que la boîte quantique ne capture que des paires de porteurs. Cette hypothèse semble bien vérifiée puisqu'à faible excitation, nous n'observons qu'une raie d'émission. Si des états de charge différents existaient à l'intérieur de la boîte quantique (exciton avec un électron ou un trou en plus), nous verrions autant de raies supplémentaires à cause de la sensibilité du processus de recombinaison aux interactions coulombiennes [127].
- Deuxièmement, le processus de capture des paires électron-trou est supposé aléatoire et ne dépend pas en particulier du nombre de porteurs déjà

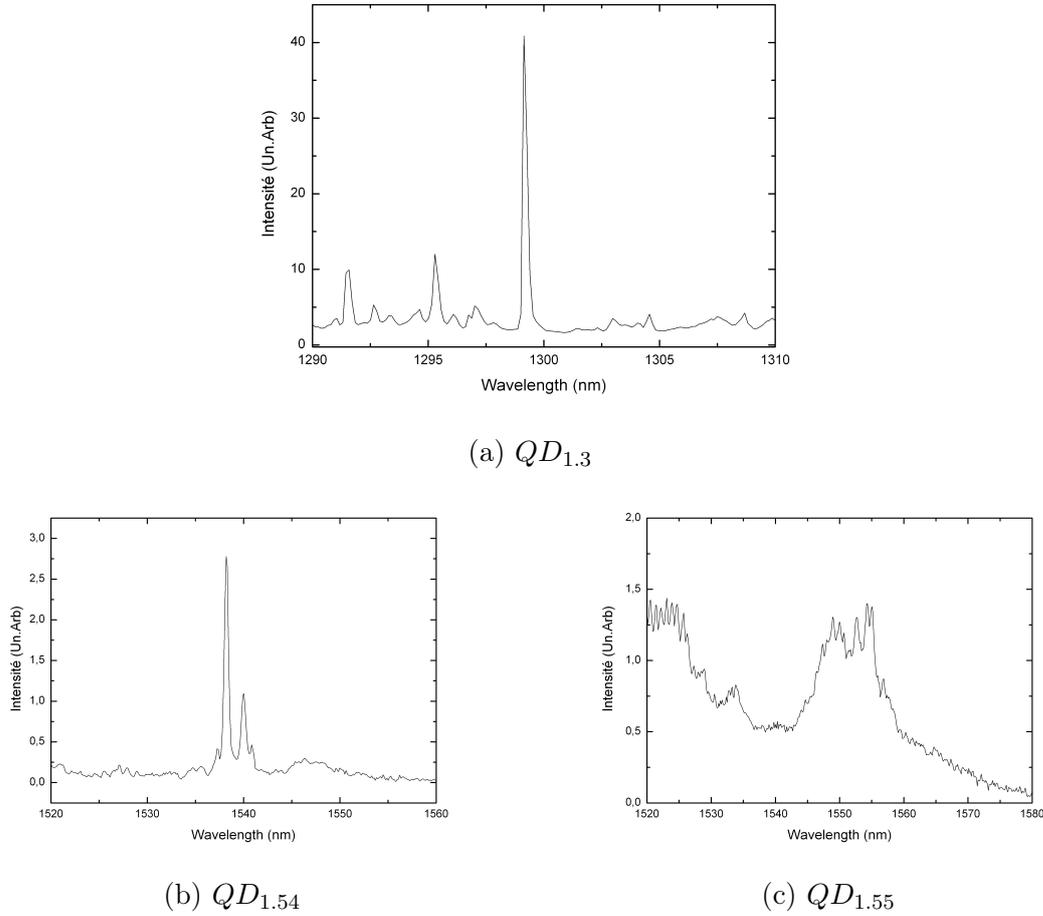


FIGURE 3.9 – Présentation des spectres des mesas d'étude effectués sous excitation continue ($\lambda=532\text{nm}$) de puissance de 6.37mW/cm^2 à 4K .

présents dans la boîte quantique.

Sous ces hypothèses, le nombre de paires électron-trou créées par impulsion laser est directement proportionnel à la puissance d'excitation et suit une statistique poissonnienne. La probabilité $P(n)$ d'avoir n paires électron-trou capturées par la boîte quantique après une impulsion laser s'écrit donc :

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} = \frac{1}{n!} \left(\frac{P}{P_{sat}} \right)^n e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (3.1)$$

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

$$I_X(P) = I_{sat}(1 - P(0)) = I_{sat} \left(1 - e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \right) \quad (3.2)$$

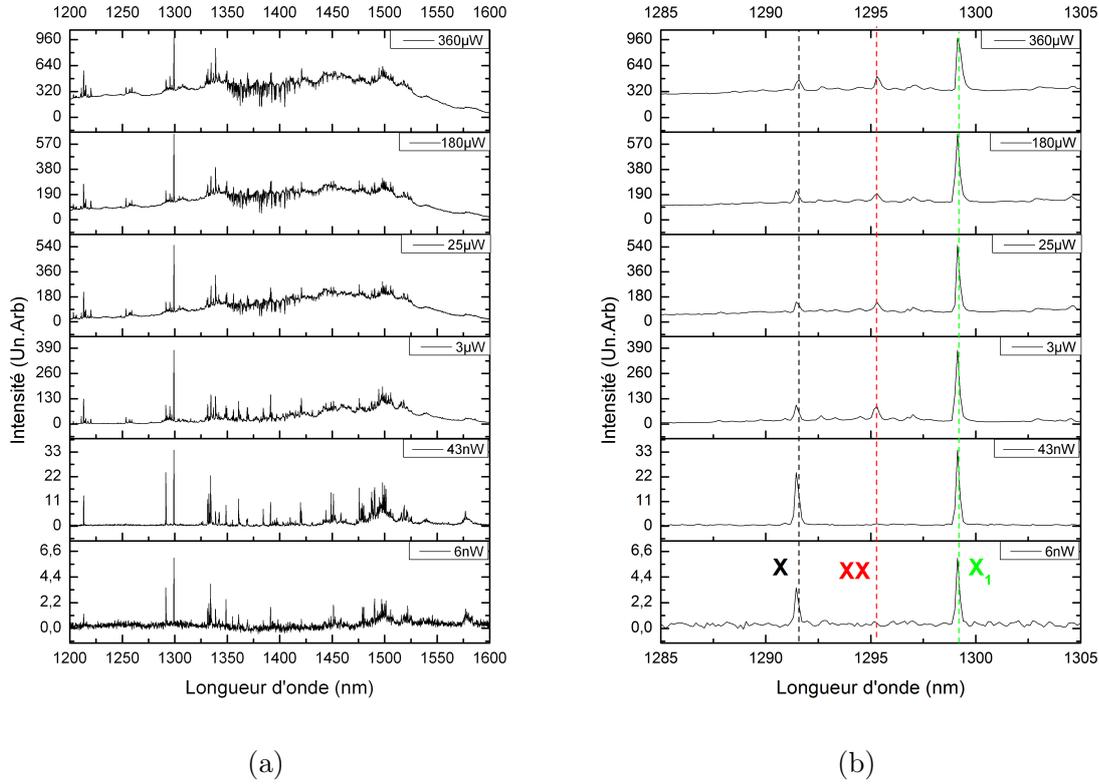


FIGURE 3.10 – Évolution du spectre d'émission à 4K sous excitation impulsionnelle non-résonnante de la boîte $QD_{1,3}$ en fonction de la puissance d'excitation. (a) Spectre de 1.2 à 1.6 μm (b) Zoom du spectre sur le groupe de raies d'intérêt autour de 1.3 μm . Les lignes verticales verte, rouge et noire repèrent les 3 raies étudiées.

où I_{sat} est l'intensité de saturation de la raie et P_{sat} est la puissance du laser pour laquelle nous observons la saturation de l'émission associée à l'exciton. Il est à noter qu'il existe 4 états à un exciton, de spin $J=\pm 1$ et $J=\pm 2$. Ceux de spin ± 1 sont radiants, alors que ceux de spin ± 2 sont non-radiants (noirs) mais peuvent émettre un photon suite à un retournement de spin. Étant donné que notre détection est intégrée dans le temps, nous observons non seulement les photons des excitons radiants mais également ceux émis après retournement de spin. Lorsque deux paires électron-trou sont dans la boîte, 16 combinaisons existent (en fonction du spin de chacune des deux paires). Parmi ces seize combinaisons seules 4 d'entre elles contribuent à l'émission de la raie biexcitonique, correspondant à un spin $J=0$. Pour déterminer l'intensité du biexciton il faut retirer la probabilité que l'état à 2 paires soit dans une des 12 autres combinaisons qui ne contribuent pas à la raie biexcitonique.

$$I_{XX}(P) = I_{sat} \left(1 - P(0) - P(1) - \frac{3}{4}P(2) \right) \quad (3.3)$$

$$= I_{sat} \left(1 - e^{-\frac{P}{P_{sat}}} - e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \left(\frac{P}{P_{sat}} \right) - \frac{3}{8} e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \left(\frac{P}{P_{sat}} \right)^2 \right) \quad (3.4)$$

Le spectre du mesa $QD_{1,3}$, est composé de trois raies fines spectralement à

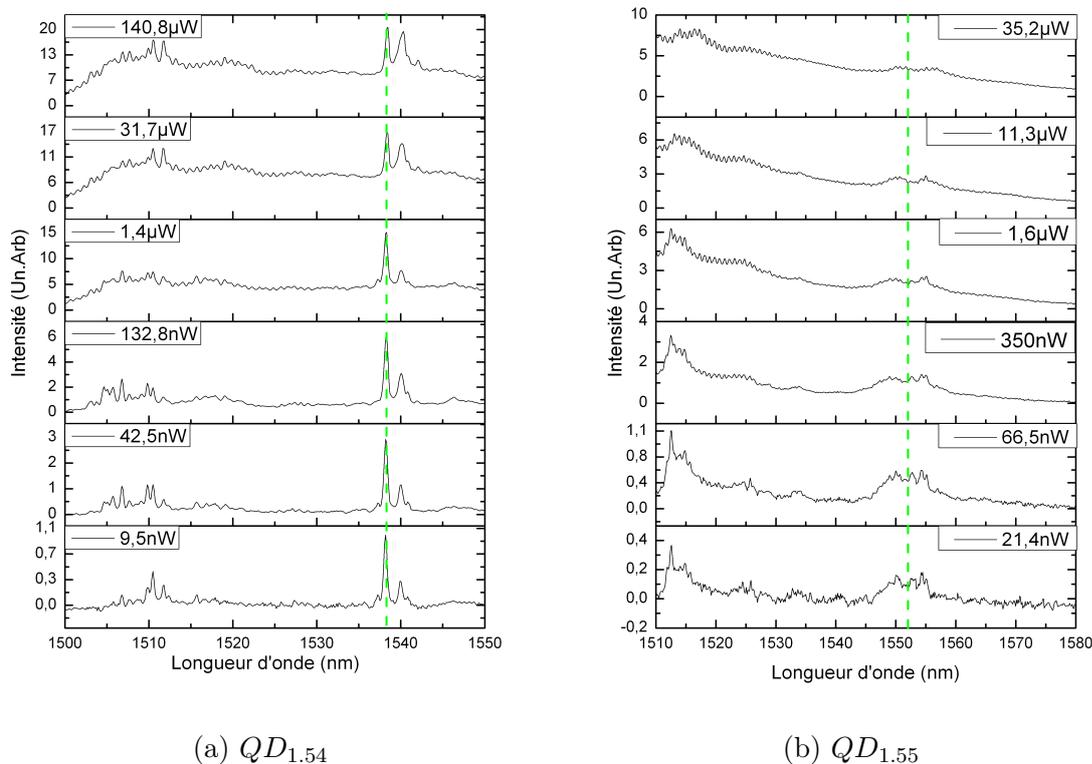


FIGURE 3.11 – Évolution du spectre d'émission à 4K sous excitation impulsionnelle non résonante des boîtes $QD_{1.54}$ et $QD_{1.55}$ en fonction de la puissance d'excitation.

1291 nm, 1295 nm et 1300 nm. Elles sont indiquées sur la figure 3.10(b) en trait noir, rouge et vert respectivement.

La figure (3.12) montre un comportement en puissance semblable pour les trois mesas. En effet, en augmentant la puissance de pompe, il y a une augmentation de l'intensité des raies fines, et un élargissement des raies larges. A faible puissance de pompe, l'intensité des excitons est directement proportionnelle à la probabilité d'injecter une paire électron-trou dans notre boîte. En effet, une croissance linéaire de l'intensité en échelle logarithmique-logarithmique est observée sur les courbes de la figure (3.12). A plus forte puissance d'excitation, l'intensité sature. En effet, la probabilité d'avoir au moins une paire électron trou dans la boîte étant égale à 1, un photon sera émis à chaque impulsion laser. L'intensité n'augmente plus en fonction de la puissance d'excitation. En revanche, d'autres raies spectrales apparaissent, associées à des états multiexcitoniques (biexciton, trions, ...).

Afin d'identifier les différentes excitations électroniques à l'origine des différentes raies, une approche consiste à analyser la pente avec laquelle croît l'intensité de luminescence en échelle logarithmique-logarithmique à basse puissance. L'exciton croît avec une pente logarithmique de 1 alors que le biexciton croît avec une pente logarithmique supérieure à 1 comme en témoigne l'équation (3.4). Cette croissance est en effet proportionnelle à la probabilité d'injecter deux paires de porteurs par impulsion laser et qu'il se recombinent avec l'énergie de la raie biexcitonique.

Sur le mesa $QD_{1.3}$, deux raies excitoniques et une raie biexcitonique sont

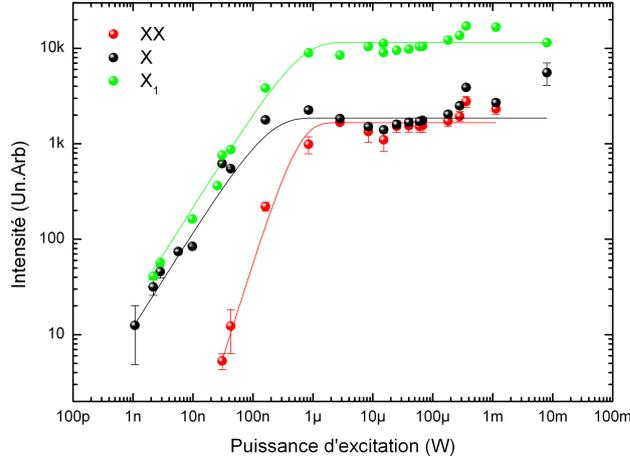
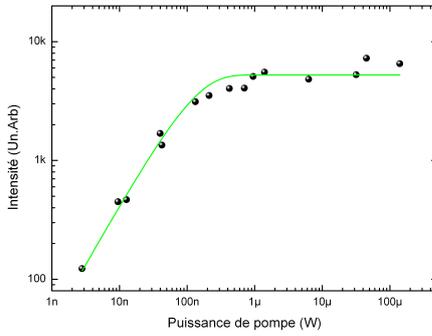
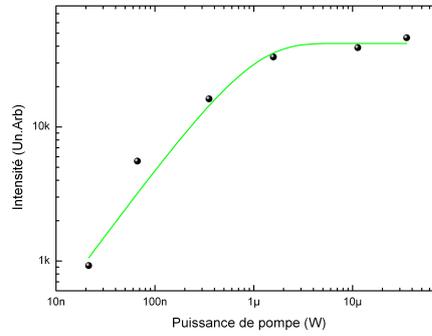
(a) $QD_{1.3}$ (b) $QD_{1.54}$  $QD_{1.55}$

FIGURE 3.12 – Évolution de l'aire intégrée des raies de luminescence en fonction de la puissance d'excitation. (a) $QD_{1.3}$ (b) $QD_{1.54}$ (c) $QD_{1.55}$. Les traits pleins noir et vert sont des ajustements par l'équation (3.2) et le trait rouge par l'équation (3.4). Les puissances de saturation sont : (a) à 1291nm : $P_{sat_X} = 155 \pm 25$ nW, à 1295nm : $P_{sat_{XX}} = 176 \pm 20$ nW, à 1300nm : $P_{sat_{X_1}} = 534 \pm 25$ nW (b) $P_{sat} = 123.4 \pm 20$ nW et (c) $P_{sat} = 840 \pm 50$ nW.

| Longueur d'onde (nm) | Nature de la raie | P_{sat} (nW) | I_{sat} (Un.Arb) |
|-------------------------|-------------------|-------------------|-----------------------|
| 1291 | Exciton (X) | 155 ± 25 | 1865 ± 200 |
| 1295 | Biexciton (XX) | 176 ± 20 | 1670 ± 100 |
| 1300 | Exciton (X_1) | 534 ± 25 | 11600 ± 600 |

Tableau 3.2 – La puissance de saturation P_{sat} et l'intensité émise à la saturation I_{sat} pour les différentes raies du mesa $QD_{1.3}$.

observables. Le tableau (3.2) répertorie les puissances et les intensités de saturation pour chaque raie. Comme le démontre les équations (3.2 et 3.4) l'exciton et le biexciton associés à la même boîte doivent avoir la même puissance et intensité de saturation. Il est donc possible que la raie XX à 1295 soit le biexciton associé à la

raie X à 1291. Pour démontrer sans ambiguïté cette affiliation, il conviendrait de faire une expérience de corrélation croisée. Cependant cette confirmation n'a pas pu être effectuée en raison d'un flux de photons insuffisant. De cette filiation il est possible de calculer l'énergie de liaison du biexciton qui correspond à l'écart énergétique entre les deux raies, dans ce cas elle vaut $E_l = 2.98\text{meV}$.

Quant à la raie X_1 à 1300nm elle est probablement issue d'une autre boîte quantique.

Une fois la puissance de saturation dépassée, un fond continu croît sur toute notre gamme spectrale, jusqu'à englober les raies (voir figure 3.13).

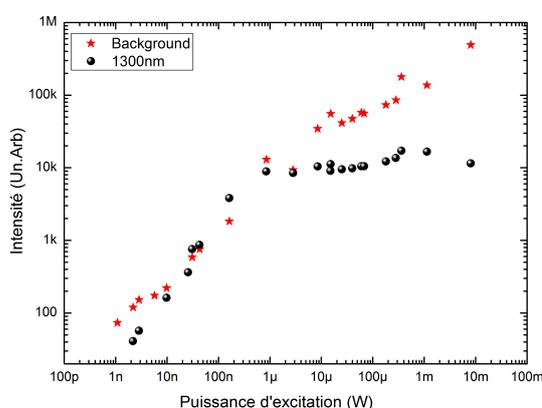


FIGURE 3.13 – Points noirs : Évolution de l'aire intégrée de la raie X_1 à 1300nm. Étoiles rouges : évolution de l'aire intégrée du fond continu qui croît sous la raie. A partir de la puissance de saturation le fond a une intensité supérieure à celle de la raie. A une puissance de 10 fois P_{sat} l'aire du fond est 10 fois supérieure.

L'étude sur les mesas centrées autour de $1.5\mu\text{m}$, permet de déterminer que leur dépendance en puissance est celle attendue pour un exciton.

3.2.2 Étude en régime d'excitation continue

Une étude spectroscopique sous excitation continue a été menée, à l'aide du laser Nd :Yag continu doublé en fréquence à 532nm. La figure (3.14) représente le spectre du mesa $QD_{1,3}$ en fonction de la puissance d'excitation. L'intensité des raies croît puis au-delà d'un seuil, elle diminue. L'évolution de l'intensité des trois raies en puissance est présentée à la figure (3.15).

Afin de pouvoir quantifier et décrire ce comportement en puissance, il convient d'enrichir le modèle précédemment employé et introduire τ_n , les temps de recombinaison à n paires électrons-trous. Soit $\frac{1}{\tau_a}$ le taux d'injection des paires électron-trou. Cette quantité est reliée à la puissance incidente P par la relation $P = \frac{B}{\tau_a}$ où B est un simple facteur de proportionnalité. L'évolution de $P(n)$, probabilité d'avoir n paires de porteurs, s'écrit alors pour $n > 1$:

$$\frac{dP(n)}{dt} = \frac{P(n+1)}{\tau_{n+1}} + \frac{P(n-1)}{\tau_a} - P(n) \left(\frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_n} \right) \quad (3.5)$$

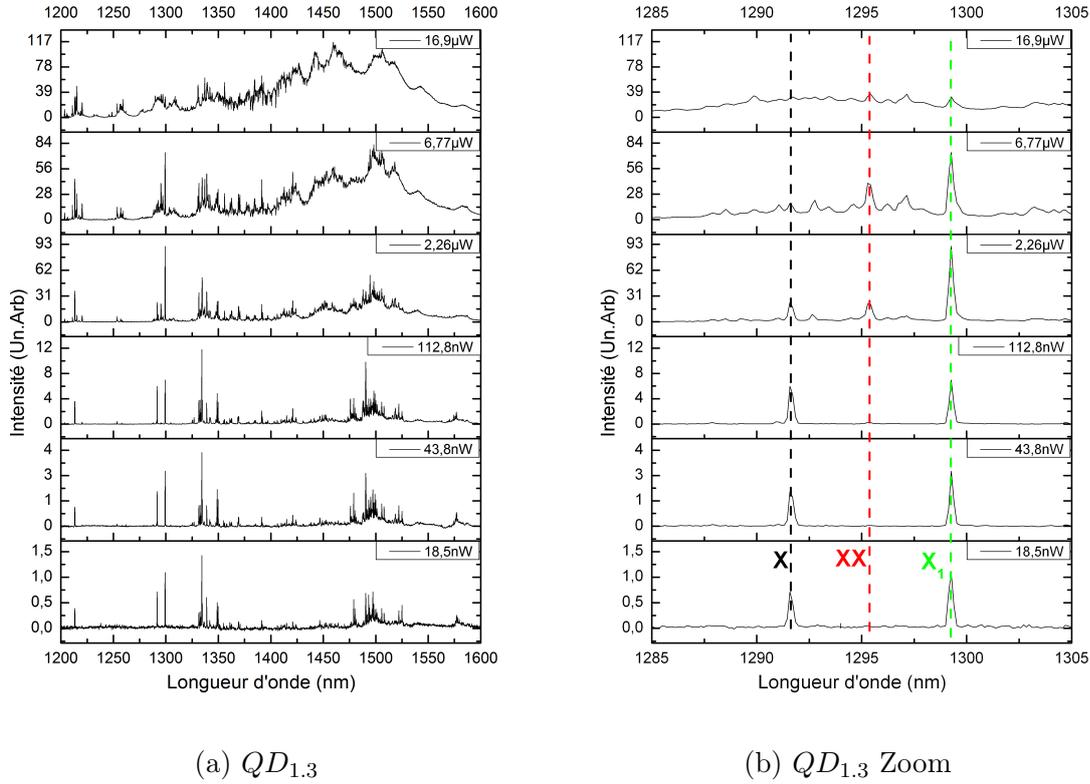


FIGURE 3.14 – Évolution du spectre à $4K$ sous excitation continue non-résonante du mesa $QD_{1.3}$ en fonction de la puissance de pompe. (a) Spectre entre 1.2 et $1.6\mu m$ du mesa. (b) : Zoom sur la zone d'intérêt autour de $1.3\mu m$. Les différentes raies (X , X_1 et XX) sont indiquées par des traits verticaux (respectivement noir, vert et rouge).

On suppose, que la probabilité pour une paire de se recombiner est indépendante à la fois du niveau dans lequel elle se trouve et de l'état de charge total. Le taux de recombinaisons de l'état associé à n paires électron-trous est alors égal à n fois le taux de recombinaisons de chaque paire, pris égal à $1/\tau_r$:

$$\frac{1}{\tau_n} = \frac{n}{\tau_r} \quad (3.6)$$

Sous cette hypothèse, l'équation 3.5 se réécrit :

$$\frac{dP(n)}{dt} = \frac{P(n-1)}{\tau_a} + \frac{(n+1)P(n+1)}{\tau_r} - P(n) \left(\frac{1}{\tau_a} + \frac{n}{\tau_r} \right) \quad (3.7)$$

En régime stationnaire, $\forall n \geq 0$, $\frac{dP(n)}{dt} = 0$, on obtient par récurrence la relation suivante :

$$P(n) = \frac{e^{-\frac{\tau_r}{\tau_a}}}{n!} \left(\frac{\tau_r}{\tau_a} \right)^n \quad (3.8)$$

L'intensité de la raie X (exciton) est proportionnelle à la probabilité de présence d'une paire électron-trou multipliée par la probabilité que cette paire se recombine.

Ainsi, l'intensité de la raie associée à l'état exciton ($I_X(P)$) s'expriment en fonction de la puissance incidente P (en rappelant que $P=B/\tau_a$) de la manière suivante :

$$I_X(P) = A \frac{P(1)}{\tau_X} = \frac{AP}{B} e^{-\frac{P\tau_X}{B}} \quad (3.9)$$

où A est une constante de proportionnalité qui sera définie plus loin et τ_X est la durée de vie de la luminescence de l'exciton qui, comme on a vu à la section 3.2.1 sur l'étude en excitation pulsée inclut également le temps de retournement de spin. Pour l'intensité du biexciton, on tient compte comme à la section précédente que seul 1/4 des combinaisons à deux excitons sont complètement radiants et contribuent à la raie biexcitonique. L'intensité du biexciton s'écrit alors :

$$I_{XX}(P) = 2A \frac{P(2)}{4\tau_B} = \frac{A\tau_B P^2}{4B^2} e^{-\frac{P\tau_r}{B}} \quad (3.10)$$

En définissant $I_{sat_X}=A/\tau_X$, $I_{sat_{XX}}=A/\tau_B$ et $P_{sat_X}=B/\tau_X$, $P_{sat_{XX}}=B/\tau_B$, nous obtenons finalement :

$$I_X(P) = I_{sat_X} \frac{P}{P_{sat_X}} e^{-\frac{P}{P_{sat_X}}} \quad (3.11)$$

$$I_{XX}(P) = \frac{I_{sat_{XX}}}{4} \frac{P^2}{P_{sat_{XX}}^2} e^{-\frac{P}{P_{sat_{XX}}}} \quad (3.12)$$

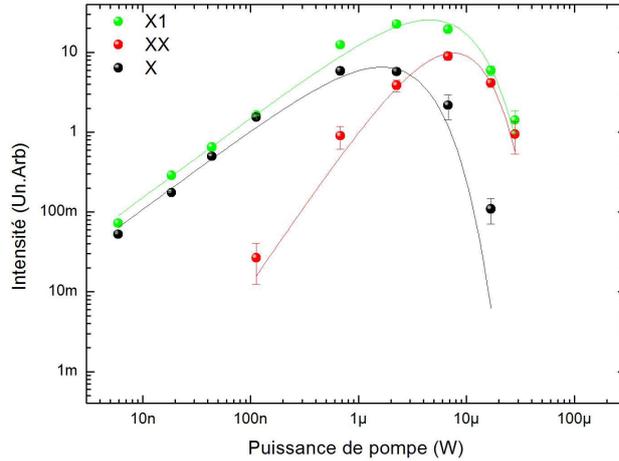


FIGURE 3.15 – Évolution de l'aire intégrée des raies d'émission de $QD_{1.3}$ en fonction de la puissance d'excitation continue. En points noirs : Évolution de l'aire de l'exciton X à 1291nm. En points rouges : Evolution de l'aire du biexciton à 1295nm. En points verts : Évolution de l'aire de l'exciton $X1$ à 1300nm. En trait noir : ajustement suivant (3.11). En trait rouge : ajustement suivant (3.12). En trait vert : ajustement suivant (3.11). Les puissance de saturation sont : $P_{sat_X}=1,86 \pm 0,24 \mu W$, $P_{sat_{XX}}=3,03 \pm 0,44 \mu W$, $P_{sat_{X1}}=4.6 \pm 0.5 \mu W$.

L'intensité de l'aire de l'exciton croît d'abord de manière linéaire avec la puissance de pompe (voir figure (3.15)). En effet son intensité est proportionnelle à la probabilité d'avoir une paire électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique. En continu cette probabilité dépend linéairement de la puissance à basse excitation, car nous injectons nettement moins qu'une paire électron-trou par temps de vie de l'exciton. A plus forte puissance de pompe, l'intensité de la raie X sature à un maximum, c'est le point où nous injectons en moyenne une paire électron-trou par temps de vie de l'exciton. Ensuite la raie X décroît lors de l'augmentation de la puissance de pompe. Nous sommes dans un régime où nous injectons en moyenne plus d'une paire électron-trou par temps de vie de l'exciton. Par conséquent la probabilité d'avoir une paire électron-trou uniquement dans la boîte quantique diminue quand le taux d'injection augmente. La boîte n'a pas le temps de se vider de ses porteurs ; le taux d'injection des porteurs est plus important que leur temps de recombinaison. La raie excitonique perd donc en intensité en faveur d'autres raies correspondant à des états de charge plus élevés de la boîte. A faible puissance d'excitation, l'intensité du biexciton croît de manière quadratique, car son intensité est proportionnelle à la probabilité d'avoir deux paires électrons-trous. La raie XX, tout comme la raie X, passe par un maximum avant de diminuer en intensité. En effet, la probabilité de présence de deux paires électrons-trous dans la boîte diminue lorsque nous injectons en moyenne plus de deux paires par temps de vie pour finir totalement négligeable.

Il est à noter que comme en excitation pulsée, à très forte puissance de pompe les pics disparaissent totalement pour laisser place à un fond continu. Ce fond est bien issu des boîtes quantiques. Sa provenance peut être expliquée par l'hybridation des états électroniques [51].

| Longueur d'onde (nm) | Nature de la raie | P_{sat} | I_{sat} |
|-------------------------|-------------------|-----------------|--------------------|
| | | (μ W) | (Un.Arb) |
| 1291 | Exciton (X) | 1.86 ± 0.24 | 19300 ± 2300 |
| 1295 | Biexciton (XX) | 3.03 ± 0.44 | 101400 ± 21500 |
| 1300 | Exciton (X_1) | 4.6 ± 0.5 | 70000 ± 6000 |

Tableau 3.3 – Évolution des paramètres P_{sat} et I_{sat} pour les différentes raies du mesa $QD_{1.3}$.

3.2.3 Étude résolue en temps

Afin d'obtenir des informations sur l'efficacité quantique et la dynamique d'émission des boîtes quantiques, une spectroscopie résolue en temps de ces objets a été effectuée. Le protocole expérimental des mesures temporelles est décrit à la section 2.2.2. Les histogrammes des temps d'arrivée des photons ont été mesurés sur chaque raie excitonique des différentes boîtes à 4K en fonction de la puissance d'excitation. Ces histogrammes sont présentés sur les figures (3.16) et (3.17) pour la raie X_1 de $QD_{1.3}$ (les raies X et XX n'ont pas été mesurées à cause d'une détérioration de l'échantillon), pour $QD_{1.54}$ et $QD_{1.55}$ respectivement.

Les histogrammes des figures (3.16) et (3.17) démontrent deux comportements distincts : alors que le maximum de l'histogramme sur les mesas $QD_{1.3}$ et $QD_{1.54}$ se décale dans le temps avec la puissance d'excitation, la raie sur le mesa $QD_{1.55}$ ne se décale pas quelque soit la puissance d'excitation. Il est important de

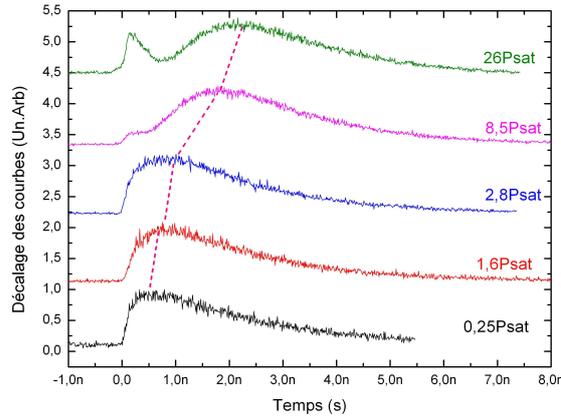


FIGURE 3.16 – Évolution de l’histogramme des temps d’arrivée des photons pour la raie X_1 du mesa $QD_{1.3}$ en fonction de la puissance d’excitation à 4K. Le maximum de l’histogramme se décale avec la puissance d’excitation.

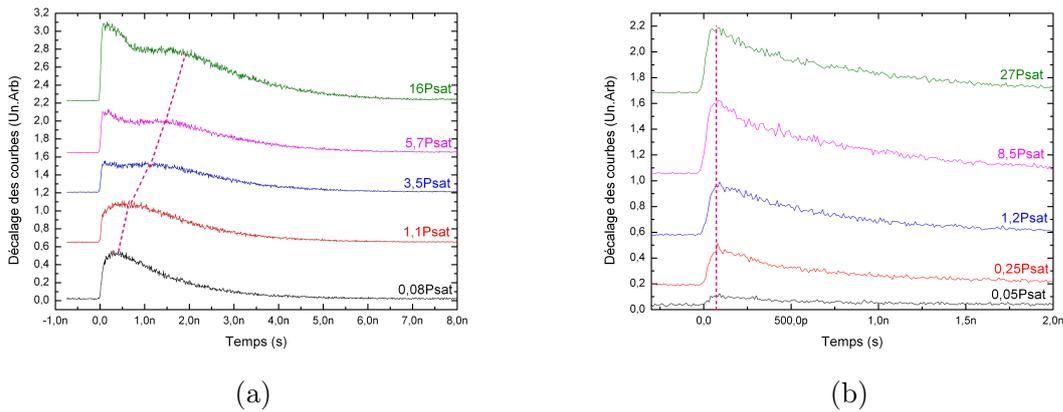


FIGURE 3.17 – Évolution des histogramme des temps d’arrivée des photons suite à une excitation impulsionnelle des mesas à 4K (a) : $QD_{1.54}$ et (b) : $QD_{1.55}$ en fonction de la puissance d’excitation. Le maximum de l’histogramme se décale pour le mesa $QD_{1.54}$ mais pas pour le mesa $QD_{1.55}$.

remarquer qu’à forte puissance d’excitation ($>16P_{sat}$), un pic apparaît à $t=0$. Le pic provient de l’émission du fond continu, comme on peut le voir sur la figure (3.18). Grâce à ces histogrammes il est possible de définir deux temps de vie l’un associé au signal de fond (τ_B) et l’autre associé à la raie de luminescence (τ_X).

En ajustant les histogrammes obtenus à 4K, par une exponentielle décroissante il est possible de déterminer les valeurs suivantes :

- Pour le mesa $QD_{1.3}$: $\tau_B = 700\text{ps}$ et $\tau_{X_1} = 2.2\text{ns}$
- Pour le mesa $QD_{1.54}$: $\tau_B = 800\text{ps}$ et $\tau_X = 1.3\text{ns}$
- Pour le mesa $QD_{1.55}$: $\tau = 700\text{ps}$

Le cas du mesa $QD_{1.55}$ est singulier, il n’y a pas de pic étroit spectralement et sa durée de vie (700ps ; voir figure (3.19)) est identique à la durée de vie du signal de fond des deux autres mesas. Par conséquent cette émission correspond à une

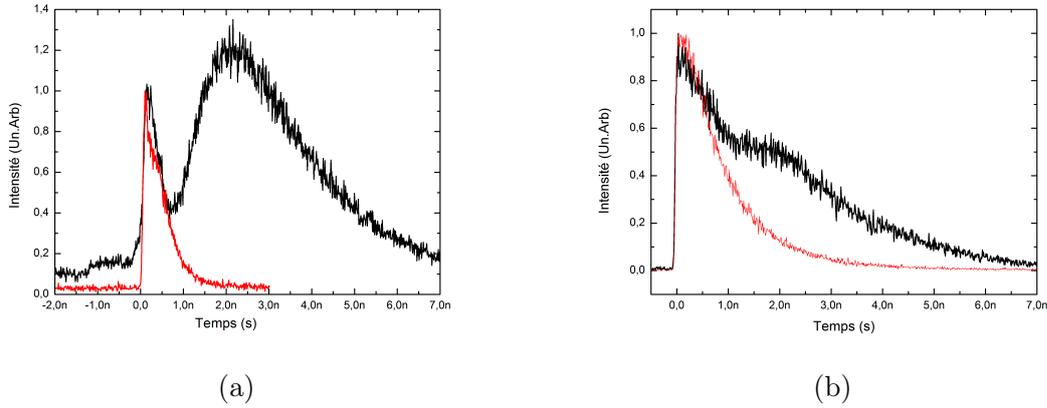


FIGURE 3.18 – Trait noir : histogramme des temps d'arrivée des photons des raies fines. Trait rouge : histogramme des temps d'arrivée des photons associés au signal de fond. (a) : $QD_{1.3}$ (b) : $QD_{1.54}$. Il est à remarquer que l'émergence du fond de luminescence correspond au pic qui apparaît à $t=0$.

"tranche" du signal de fond.

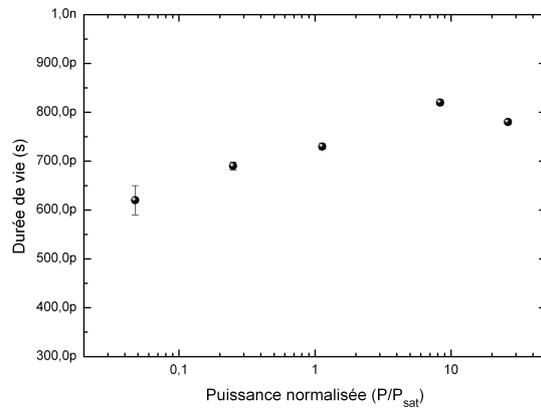


FIGURE 3.19 – Evolution de la durée de vie mesurée sur $QD_{1.55}$ en fonction de la puissance d'excitation normalisée. Nous rappelons que $P_{sat}=840nW$.

Dans une boîte quantique il a été démontré que les photons sont émis de manière séquentielle [129]. En effet l'émission de l'exciton d'une boîte aura lieu après la désexcitation de tous les autres états supérieurs. Nous parlons d'effet d'émission en cascade radiative (voir figure (3.20)). Ce processus décrit bien le décalage temporel observé sur les histogrammes des temps d'arrivée des photons.

Afin de décrire le processus d'émission des boîtes quantiques, un modèle a été développé dans notre équipe [130]. Pour cela il a été décidé de partir d'un système multiexcitonique. Pour plus de clarté le détail des calculs est présenté en annexe B à la page 153. Dans la suite de la section seuls les résultats importants seront présentés. Deux régimes sont alors distingués.

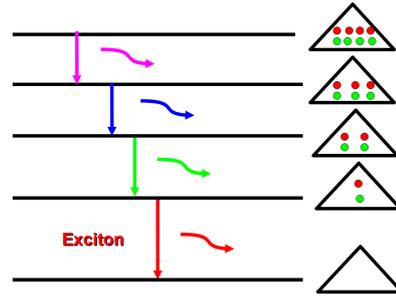


FIGURE 3.20 – Schéma de la cascade radiative. Il faut attendre que tous les photons issus de la recombinaison d'états à $n > 1$ paires électron-trou soient émis pour que le photon excitonique puisse être émis. Ce phénomène entraîne un décalage temporel du maximum de l'intensité émise lors de la mesure des histogrammes.

Cas $\tau_X \approx \tau_B$ (cas de $QD_{1.54}$)

L'intensité d'émission de la raie à 1 paire électron-trou dans la boîte suite à une excitation impulsionnelle s'écrit alors :

$$I_X(t) = \mu e^{-t/\tau_X} \exp(-\mu e^{-t/\tau_B}) \quad (3.13)$$

avec μ le nombre moyen de paires de porteurs dans la boîte, τ_X la durée de vie radiative de la raie et τ_B la durée de vie radiative du fond continu.

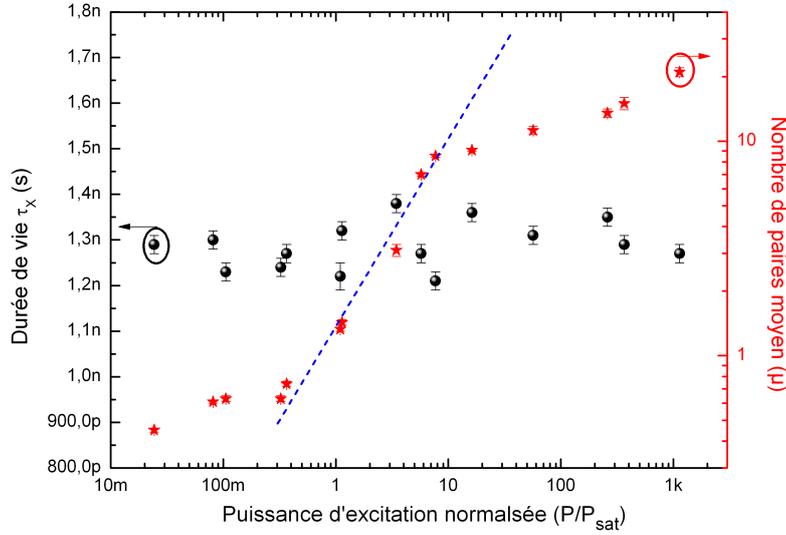
L'équation (3.13) permet de tracer l'évolution de $I_X(t)$ en fonction du temps pour différentes valeurs de μ . Le maximum de la courbe se décale temporellement en fonction de μ . Il est alors aisé de déduire l'instant ξ correspondant au maximum de la courbe $I_X(t)$ en fonction de μ comme :

$$\xi = \tau_B \ln \left(\mu \frac{\tau_X}{\tau_B} \right) \quad (3.14)$$

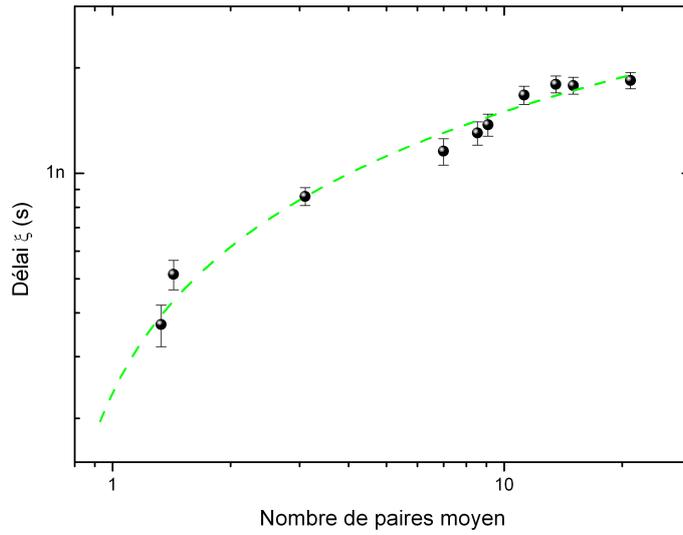
Ce cas correspond au mesa $QD_{1.54}$, pour lequel $\tau_X = 1.3$ ns et $\tau_B = 800$ ps.

L'ajustement des courbes temporelles par l'équation (3.13) permet d'extraire le nombre moyen de paires μ injectées. Ces résultats sont présentés sur la figure (3.21) (a). La durée de vie reste constante avec la puissance d'excitation à une valeur de 1.3 ns. L'évolution du nombre de porteurs μ dans la boîte est constant jusqu'à P_{sat} , puis croît linéairement jusqu'à $10P_{sat}$ pour ensuite croître de manière sous linéaire. Nous pouvons expliquer cela ainsi :

- $P < P_{sat}$. A basse puissance d'excitation, nous remarquons que le nombre de paires dans la boîte quantique est constant et égal à 0.5 paires. Ceci peut provenir du fort dopage de notre échantillon (10^{18} cm^{-2}). A faible puissance d'excitation les boîtes émettrices sont celles qui étant initialement chargées capturent le porteur complémentaire pour devenir neutres et émettre un photon. Par conséquent, le nombre de paires constaté dans ces boîtes est égal à celui du dopage résiduel initial. Il est donc constant et indépendant de la puissance d'excitation.
- $P_{sat} < P < 10P_{sat}$. Dans cette gamme de puissance le dopage résiduel est saturé et le nombre de paires capturées dans la boîte est directement proportionnel à la puissance d'excitation.



(a)



(b)

FIGURE 3.21 – (a) Points noirs : évolution de la durée de vie de $QD_{1.54}$ en fonction de la puissance d'excitation. Étoiles rouges : évolution du nombre de paires piégées en fonction de la puissance d'excitation. En pointillé bleu : droite de pente unitaire. Ces données sont obtenues en ajustant les courbes temporelles par l'équation 3.13. (b) Évolution du retard ξ du maximum de l'histogramme en fonction du nombre de paires piégées. Le trait vert représente un ajustement par la fonction (3.14) avec les valeurs de τ_b et τ_X mesurées.

- $10P_{sat} < P$. Lorsque la puissance d'excitation devient supérieure à $10P_{sat}$ l'évolution du nombre de paires dans la boîte devient sous linéaire. En effet lorsque le nombre de porteurs générés par l'impulsion laser devient

très grand, le phénomène de recombinaison bimoléculaire dans la couche de mouillage devient prépondérant. Par conséquent, le nombre de porteurs susceptibles d'être capturés décroît, car la durée de vie dans le réservoir (couche de mouillage) décroît.

L'évolution du retard est présenté sur la figure (3.21) (b). La courbe en vert est la fonction $\xi(\mu)$ décrite par l'équation 3.14 avec les valeurs de τ_X et τ_B mesurées. Un très bon accord entre théorie et expérience peut être constaté.

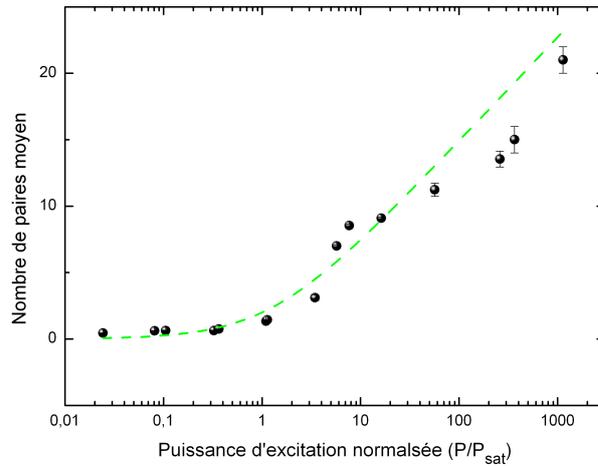


FIGURE 3.22 – Évolution du nombre de paires piégées dans la boîte en fonction de la puissance d'excitation. En vert : ajustement des données par l'équation (3.15).

Grâce à l'équation, développée dans l'annexe B :

$$\mu = \frac{VC}{B} \ln \left(1 + \frac{B}{VC} \frac{P_{in}}{P_{sat}} \right) \quad (3.15)$$

il est également possible de décrire l'évolution du nombre de paires piégées dans la boîte en fonction de la puissance d'excitation. Dans cette équation l'évolution du nombre de charges dépend du volume de la boîte (V), de la section efficace de capture (C) et de la constante de recombinaison bimoléculaire (B) dans la couche de mouillage. L'ajustement de cette courbe permet de déterminer le terme $T = VC/B$, la valeur obtenue est $T=5$. Le volume de la boîte quantique peut être calculé grâce aux images haute résolution TEM. En effet la dimension des boîtes est d'environ 50nm dans les deux directions du plan et de 3nm dans la direction de croissance, ce qui permet d'estimer le volume $V \approx 10^{-18} \text{ cm}^3$. Ainsi, la valeur du rapport C/B vaut $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^3$. En prenant la valeur de $B=10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [131] il est possible de déterminer que $C=5 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$. La valeur de T confirme que le nombre de paires pouvant aller dans la boîte est assez faible. Le nombre de paires à $1000P_{sat}$ est de 20. Cette valeur est à comparer au nombre d'états électronique de conduction de ces boîtes observés en STM dans l'article [132]. La spectroscopie des fonctions électroniques présentée dans cet article démontrent l'existence de 10 niveaux énergétiques

doublement dégénérés. Cette valeur de 20 paires de porteurs semble être la valeur maximum de paires que peut capturer la boîte.

Cas $\tau_X \gg \tau_B$ ($QD_{1.3}$)

Lorsque $\tau_X \gg \tau_B$ il est démontré en Annexe B que la relation liant l'intensité d'émission de notre boîte et le temps s'écrit alors :

$$I_X(t) = e^{-t/\tau_X} [\exp(-\mu e^{-t/\tau_B})(1 + \mu e^{-t/\tau_B}) - e^{-\mu}] \quad (3.16)$$

avec μ le nombre moyen de paires de porteurs dans la boîte, τ_{X_1} la durée de vie radiative de la raie excitonique X_1 et τ_B la durée de vie radiative du fond continu.

Il est donc intéressant de déduire de l'équation (3.16) l'évolution du retard ξ , correspondant au maximum de $I_X(t)$, en fonction de μ :

$$\xi = \tau_B \ln \left(\mu \sqrt{\frac{\tau_X}{\tau_B}} \right) \quad (3.17)$$

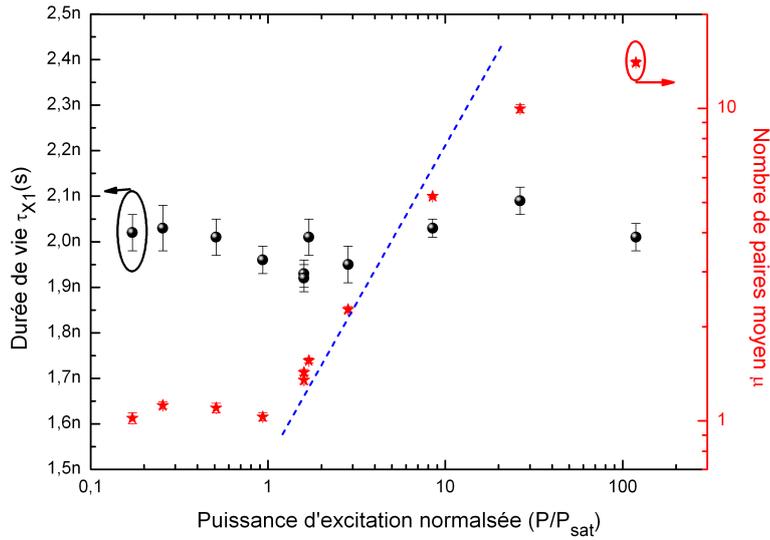


FIGURE 3.23 – Points noirs : évolution de la durée de vie τ_{X_1} en fonction de la puissance d'excitation. Étoiles rouges : évolution du nombre de paires piégées dans la boîte en fonction de la puissance d'excitation. En pointillé bleu : droite de pente unitaire. Ces données sont obtenues en ajustant les courbes temporelles par l'équation (3.16).

Le traitement des histogrammes des durées de vie nous permet d'extraire la valeur de τ_{X_1} et de μ en fonction de la puissance d'excitation. Ces résultats sont rassemblés sur la figure 3.23, ce cas correspond à la situation du mesa $QD_{1.3}$, pour lequel $\tau_{X_1}=2.2\text{ns}$ et $\tau_B=700\text{ps}$. Comme pour le mesa $QD_{1.54}$ la durée de vie est constante en fonction de la puissance d'excitation. L'évolution du nombre de charges suit également la même évolution. Toutefois, on remarque que dans cet échantillon le nombre de paires est égal à 1 pour $P < P_0$ ce qui implique que son dopage résiduel est 2 fois plus grand que celui de $QD_{1.54}$.

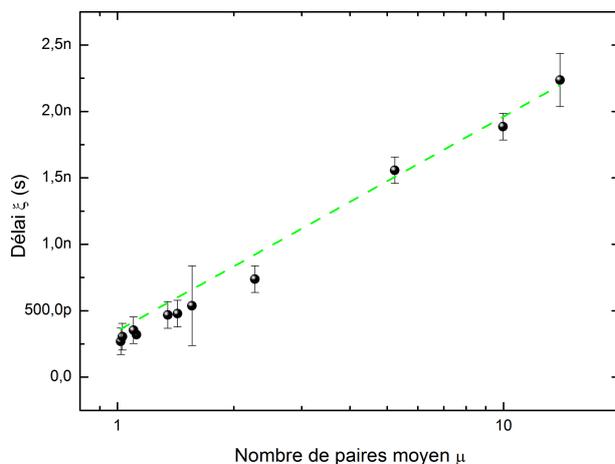


FIGURE 3.24 – Évolution du retard ξ en fonction du nombre de paires μ dans la boîte. En vert : ajustement des données par l'équation (3.17).

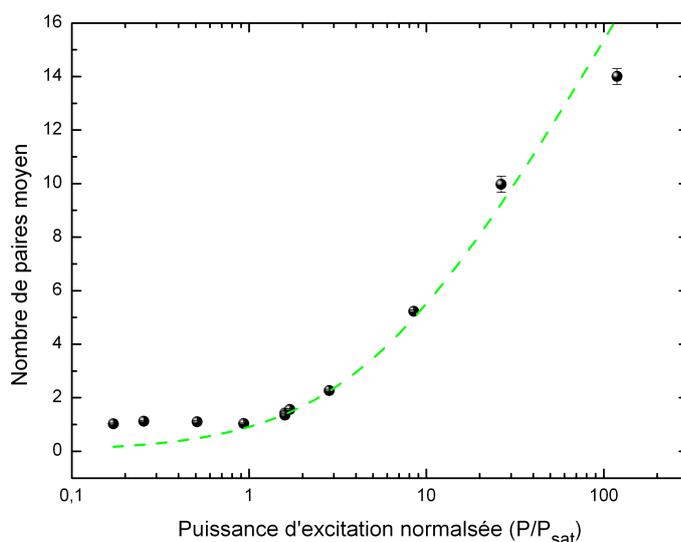


FIGURE 3.25 – Évolution du décalage du maximum de l'histogramme en fonction du nombre de paires piégées. Le trait vert représente la fonction (3.15) avec les valeurs de τ_B et τ_{X_1} obtenu par ajustement.

Il est également possible de déterminer le taux de capture des porteurs pour cette boîte. Sur le graphique de la figure (3.25), l'ajustement permet de déterminer la valeur de $T=5$. Cette valeur identique à celle obtenue pour le mesa $QD_{1.54}$ permet d'affirmer que son taux de capture des porteurs sera le même, c'est à dire $C \approx 5 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$. Les conclusions seront par conséquent les mêmes.

3.2.4 Conclusion

L'étude en fonction de la puissance excitatrice a permis de mettre en évidence la nature des raies d'émission de boîtes quantiques. Afin d'obtenir une source de photons uniques, la nature des raies est importante. En effet, la nature même d'une boîte quantique et la discrétisation des états génèrent en son sein une cascade radiative. L'émission séquentielle des photons entraîne un retard pour l'émission de l'exciton qui croît avec la puissance. Ainsi, les raies des mesas $QD_{1.3}$ et $QD_{1.54}$ ont pu être identifiées comme provenant d'une boîte quantique pouvant accommoder plusieurs paires électron-trou. L'analyse du nombre de paires dans la boîte en fonction de la puissance excitatrice permet d'identifier le dopage résiduel de ces boîtes qui est d'une charge en moyenne pour la raie X_1 de $QD_{1.3}$ et de 0.5 charges en moyenne pour $QD_{1.54}$.

3.3 Étude en fonction de la température

Une étude en fonction de la température pourrait permettre de confirmer le bon comportement radiatif de ces boîtes.

3.3.1 Étude spectrale

La figure (3.26) présente le spectre d'émission de la raie X_1 de $QD_{1.3}$ et le spectre de $QD_{1.54}$ en fonction de la température.

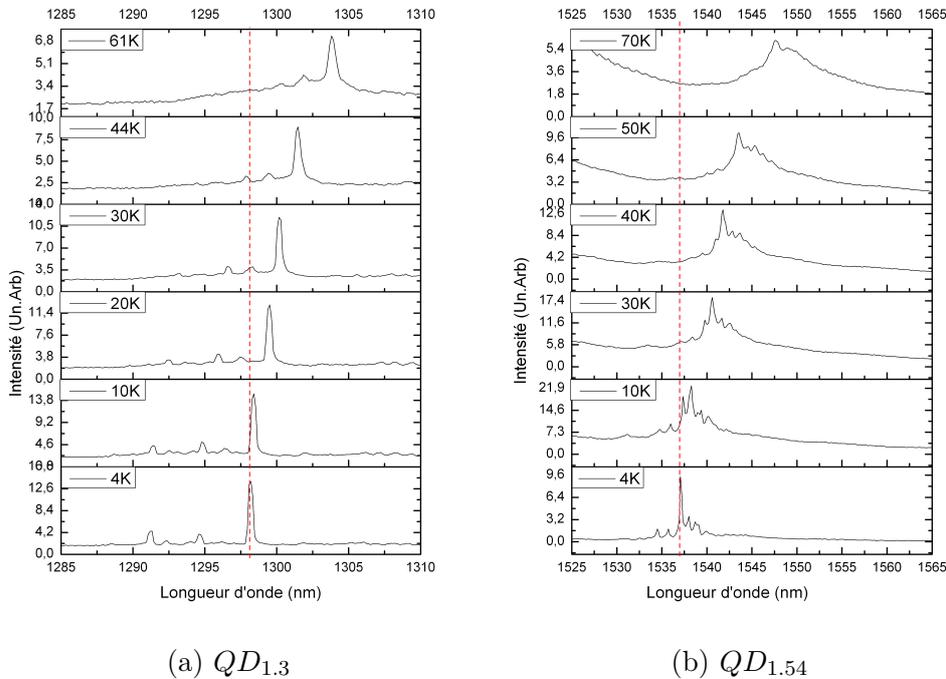


FIGURE 3.26 – Spectres des mesas $QD_{1.3}$ et $QD_{1.54}$ en fonction de la température. L'excitation est faite avec le laser impulsionnel avec $\lambda=810\text{nm}$ et $P = 2\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. La ligne en pointillé rouge repère la position du pic à 4K.

Ces spectres mettent en évidence la croissance d'un fond continu au pied des raies en fonction de la température. Ce fond croît jusqu'à englober totalement la raie du mesa $QD_{1.53}$. La discussion sur la nature de ce fond sera faite dans la section suivante.

Décalage spectral vers le rouge

Les études spectrales n'ont été menées que sur les mesas $QD_{1.3}$ et $QD_{1.54}$.

On remarque un décalage des raies associés à l'émission de boîte quantique vers les grandes longueurs d'onde en augmentant la température. Cette variation provient de la dépendance du gap en fonction de la température, liée à la dilatation thermique du réseau cristallin et au couplage électron-phonon. Ce décalage est caractéristique pour un semiconducteur et permet d'affirmer que l'émission étudiée n'est pas issue d'un défaut profond de la matrice d'InP qui ne se décalerait pas en fonction de la température. Le modèle empirique de Varshni [133] permet de décrire et quantifier ce décalage ; il permet d'exprimer $E_g(T)$, l'énergie du gap, en fonction de la température grâce à la relation suivante :

$$E_g(T) = E_0 - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (3.18)$$

où α et β sont des constantes dépendantes du matériau étudié. Ces valeurs sont données dans [134] et sont indiquées dans le tableau 3.4 pour de l'InAs et InP massif. Il est alors possible d'ajuster les courbes expérimentales par le modèle de Varshni. Les résultats ainsi obtenus sont regroupés dans le tableau 3.4.

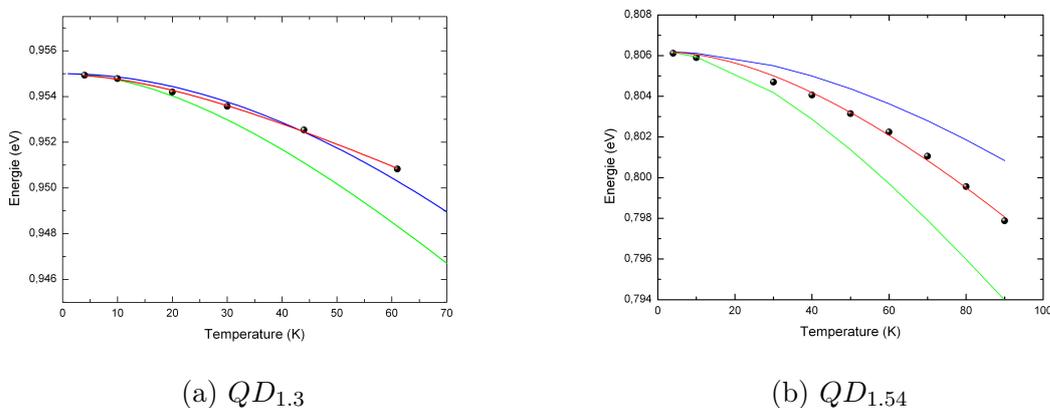


FIGURE 3.27 – Ajustement du décalage des raies excitoniques sur $QD_{1.3}$ et $QD_{1.54}$ vers les grandes longueurs d'onde par le modèle de Varshni. Nous avons représenté en bleu la courbe pour de l'InP, en vert pour de l'InAs et en rouge celle de la boîte. Pour ces deux matériaux nous avons pris, afin de pouvoir comparer, la valeur de E_0 correspondant à notre raie d'émission.

Les courbes présentées à la figure (3.27) représentent l'ajustement du décalage spectral en fonction de la température par le modèle de Varshni. En rouge, est représenté l'ajustement de notre courbe, en bleu la courbe correspondant à un puits d'InP et en vert la courbe correspondant à un puits d'InAs (en supposant leurs énergies de gap E_0 égales à celles mesurées à basse température). Les écarts entre

| Matériau | E_0 (eV) | α (eV/K) | β (K) |
|-------------|------------|-----------------|-------------|
| InAs | 0.415 | $2.76.10^{-4}$ | 93 |
| InP | 1.421 | $4.9.10^{-4}$ | 327 |
| $QD_{1.3}$ | 0.955 | $1.28.10^{-4}$ | 55 |
| $QD_{1.53}$ | 0.806 | $2.48.10^{-4}$ | 157 |

Tableau 3.4 – Valeur des constantes du modèle de Varshni pour des puits d’InP et d’InAs ainsi que pour nos 2 boîtes quantiques d’étude.

les valeurs expérimentales et celles théoriques peuvent être expliqués de la manière suivante :

- Les analyses EDX effectuées sur notre échantillon démontrent une présence de phosphore dans les boîtes (environ 20%). Cette valeur peut expliquer les écarts obtenus avec les valeurs données dans [134]. Cet écart constitue également une preuve de l’incorporation de phosphore dans nos boîtes.
- La seconde grande différence est liée au fort confinement des boîtes quantiques. Le modèle empirique de Varshni a été élaboré pour des matériaux massifs et ne prend donc pas en compte cette structuration. [135].

On note une grande différence entre les deux boîtes sur les valeurs des paramètres α et β . Les paramètres pour la boîte $QD_{1.53}$ sont situés entre ceux de l’InAs et de l’InP alors que ceux de la boîte $QD_{1.3}$, ils sont bien inférieurs à ces valeurs. Cette différence pourrait provenir du confinement des porteurs qui est plus fort pour la raie X_1 de $QD_{1.3}$.

Décroissance de l’intensité intégrée

L’évolution de l’aire intégrée du mesa $QD_{1.3}$ en fonction de la température est représentée sur la figure (3.28) (a). A 10K on observe une légère augmentation de l’aire du pic, puis une décroissance de l’ordre de 50% entre 4 et 61K. Rappelons que l’étude menée sur l’ensemble de boîtes montre une décroissance de l’intensité de 30% entre ces deux températures [123]. Cette différence peut s’expliquer par l’évolution du signal de fond qui lui décroît de 15% entre ces deux températures (voir figure 3.28 (b)).

La diminution de l’intensité intégrée de la raie peut être expliquée par trois effets prédominants :

- L’effet Auger qui a pour rôle de dépeupler les états de la boîte vers ceux de la couche de mouillage, ce qui a pour conséquence de diminuer la probabilité que la boîte émette un photon.
- L’activation thermique de pièges non radiatifs, diminuant l’efficacité radiative de la boîte quantique.
- L’activation thermique d’états excités à des énergies différentes, qui peuvent être des états non-radiants.

Dans la suite de ce manuscrit l’effet Auger ne sera pas traité car il s’agit d’un effet à plusieurs particules et il n’intervient que lorsque la densité de porteurs est très grande ce qui n’est pas le cas dans nos études qui sont faites à des puissances proche de P_{sat} .

Le spectre de la figure (3.29) compare la raie émise par la boîte quantique $QD_{1.54}$ à 4K et 10K. L’évolution spectrale de la boîte $QD_{1.54}$ ne permet pas de

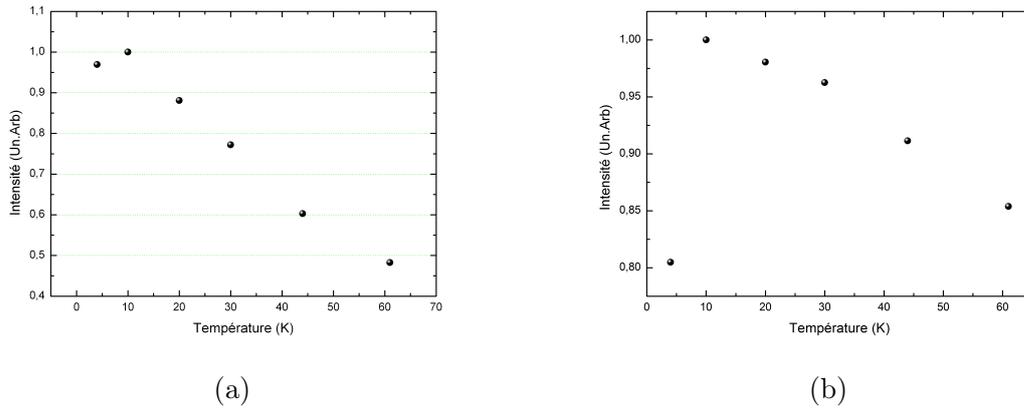


FIGURE 3.28 – (a) Évolution de l’aire intégrée de la raie X_1 de la boîte quantique $QD_{1.3}$ en fonction de la température. L’intensité intégrée diminue de 50% (b) Évolution de l’aire intégrée du fond en fonction de la température. L’intensité intégrée diminue de 15%.

faire une étude sur l’évolution de son aire en fonction de la température au delà de 10K (voir spectre de la figure (3.26) (b)). En effet le signal de fond croit trop vite empêchant ainsi l’isolation de la raie spectrale. En comparant les aires des intensités intégrées, on note que l’intensité émise par la boîte à 4K, est égale à celle émise à 10K mais pour des puissances d’excitation plus faibles. Une explication serait le dépiégeage de défauts nonradiatifs par activation thermique, plus efficace à 10K. Ces porteurs initialement piégés, pourraient alors venir peupler des états radiants de la boîte.

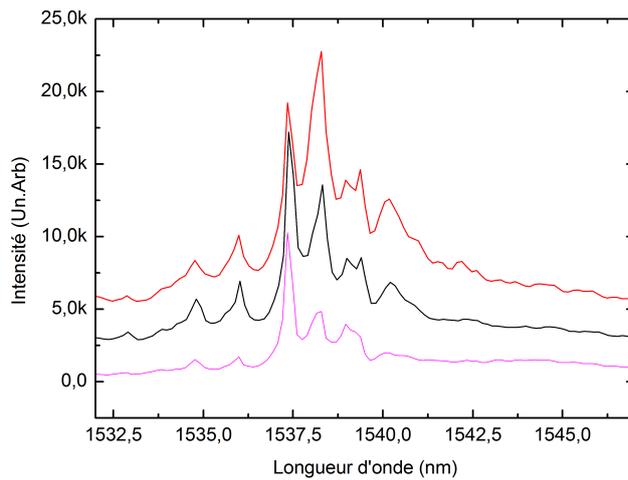


FIGURE 3.29 – Comparaison des spectres d’émission de $QD_{1.54}$ sous excitation pulsée non-résonante à 4K et à 10K. Courbe noire, avec $P_{exc}=6P_{sat}$ et $T=4K$; (courbe décalée de 0.3nm vers les grandes longueurs d’onde pour compenser l’effet de la température). En violet, $P_{exc}=P_{sat}$ et $T=10K$ et en rouge $P_{exc}=2P_{sat}$ et $T=10K$

Élargissement de la raie d'émission

Le couplage de la boîte avec le réseau cristallin peut être étudié à travers la largeur de raie. Pour des températures inférieures à 30K, la largeur spectrale de la raie est inférieure à la résolution du monochromateur du banc de μ PL. Par conséquent une mesure par interférométrie par transformé de Fourier a été faite. Pour faire cette mesure, une stabilité d'un quart d'heure est nécessaire. De ce fait, seule la mesure à 4K a pu être effectuée car le cryostat n'avait pas la stabilité requise aux températures plus élevées. Les détails théoriques et les explications expérimentales sont disponibles à la section 4.2.3. L'interférogramme obtenu à 4K a été ajusté à l'aide des modèles lorentzien et gaussien (ajustement des logarithmes linéairement et quadratiquement respectivement) ce qui permet d'en déduire une valeur de $45 \pm 5 \mu\text{eV}$ (voir à la figure (3.30)). Ces ajustements permettent d'en déduire que l'émission suit un profil gaussien à cette température [136, 137]. Un tel profil a aussi été observé sur boîtes quantiques InAs/GaAs. L'origine du profil gaussien tient dans les fortes fluctuations de l'énergie de la transition induites par effet Stark, dû à des défauts localisés à proximité de la boîte, susceptibles de piéger des porteurs de charge. Les fluctuations aléatoires du nombre de charges piégées dans ces défauts induisent alors une diffusion spectrale du profil gaussien de la raie [140].

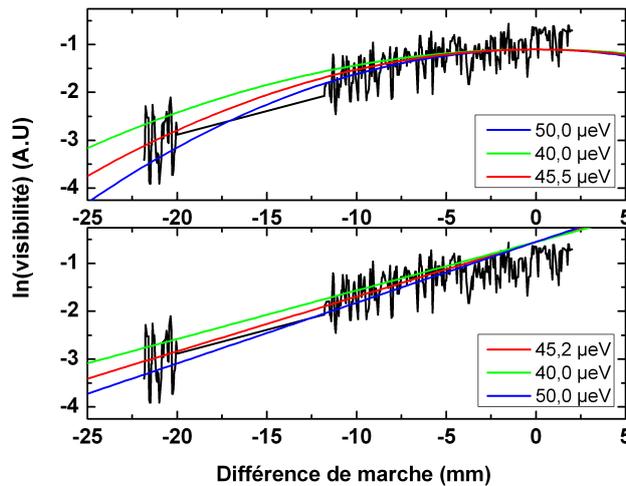


FIGURE 3.30 – Interférogramme à 4K de la raie $QD_{1,3}$ sous excitation continue à 532nm à une puissance de P_{sat} . En haut : ajustement parabolique correspondant à un profil de raie gaussien. En bas : ajustement linéaire correspondant à un profil de raie lorentzien. La raie a une largeur à mi-hauteur de $45.5 \mu\text{eV}$ à 4K, son émission correspond à un profil gaussien.

La figure (3.31) représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie $QD_{1,3}$. On observe une évolution linéaire en fonction de la température.

Pour comprendre cette évolution, à température non nulle, il faut revenir sur l'interaction entre les vibrations des atomes de la maille cristalline (phonons) et la paire électron-trou dans la boîte. Cette interaction est une source de processus déphasants, entraînant un élargissement spectral [61, 138]. Le couplage exciton-phonon se traduit sur le spectre de photoluminescence d'une part par l'apparition de bandes latérales autour de la raie centrale (appelée raie à zéro-phonon)

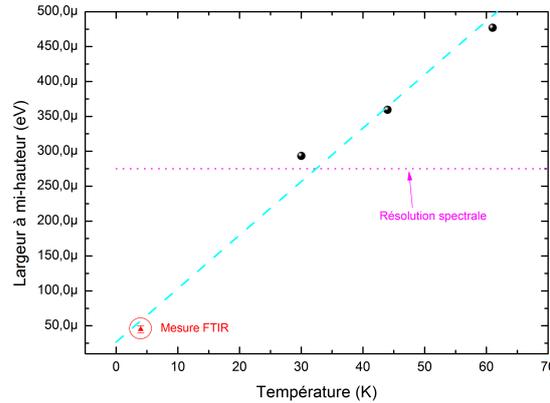


FIGURE 3.31 – Évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie X_1 de $QD_{1.3}$ en fonction de la température. En pointillé violet : résolution de notre monochromateur. En triangle rouge : mesure FTIR . En pointillé cyan : ajustement linéaire.

et d'autre part par l'élargissement de cette raie. La largeur à mi-hauteur en fonction de la température peut s'écrire [139] :

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + a * T + b * \exp(-\Delta(E)/kT) \quad (3.19)$$

où Γ_0 désigne la largeur à mi-hauteur à 0 K, a et b désignent respectivement les constantes de couplage excitons-phonons acoustiques et optiques et $\Delta(E)$ représente l'énergie du phonon optique. Les valeurs de ces constantes sont surtout référencées pour des boîtes sur GaAs. Par contre, il existe peu de travaux sur les boîtes InAs/InP. Citons également les travaux de thèse d'A. Berthelot [141], où sont traités les effets des charges environnantes des boîtes pour expliquer une partie de l'élargissement.

D'après [136,137] la contribution des phonons optiques peut être négligée jusqu'à 100K et permet de s'affranchir dans l'équation 3.19 du terme en $b*\exp(-\Delta(E)/kT)$ retrouvant ainsi une fonction linéaire. Grâce à cette fonction linéaire il est possible d'ajuster la courbe expérimentale ce qui permet de déterminer les paramètres suivants : $\Gamma_0 = 26.7\mu\text{eV}$ et $a = 7.659\mu\text{eV.K}^{-1}$. On peut noter que la largeur de $45.5\mu\text{eV}$ mesurée à 4K correspond à un temps de cohérence 29ps. Cette valeur est à comparer avec la durée de vie de l'état, de l'ordre de la nanoseconde.

3.3.2 Étude de la durée de vie.

Pour accéder à l'efficacité quantique des boîtes quantiques, une approche consiste à étudier l'évolution de la durée de vie de la transition radiative en fonction de la température.

L'étude temporelle en fonction de la température n'a pu être menée que sur la raie X_1 du mesa $QD_{1.3}$ ². Le protocole expérimental est disponible à la section 2.2.2. La puissance d'excitation est maintenue constante à 915nW soit environ $1.72P_{sat}$ à

2. Suite à une détérioration de l'échantillon les mesures n'ont pas pu être effectuées sur le mesa $QD_{1.54}$

4K. Comme vu à la section précédente les histogrammes des temps d'arrivée des photons de cette raie peuvent être ajustés par l'équation (3.16).

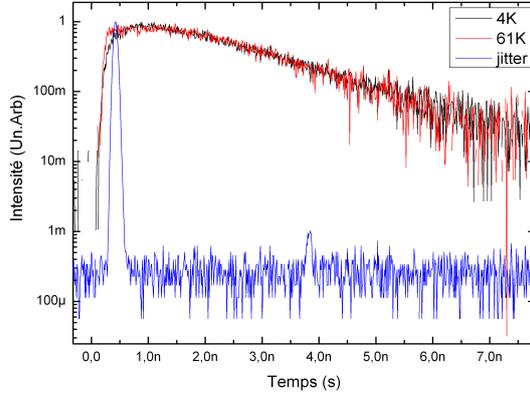


FIGURE 3.32 – Histogrammes du temps d'arrivée des photons de la raie X_1 de $QD_{1.3}$. En bleu : résolution temporelle du montage. En noir et rouge : histogrammes pour des températures de 4K et 62K respectivement.

L'ajustement des courbes expérimentales a permis d'obtenir les valeurs du nombre de paires piégées dans la boîte ainsi que la durée de vie de la transition excitonique en fonction de la température (voir figure (3.33)).

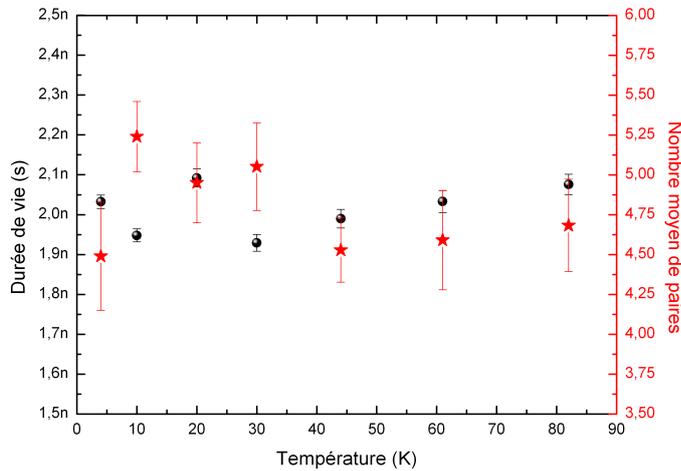


FIGURE 3.33 – Évolution de la durée de vie (points noirs) et du nombre moyen μ de paires dans la boîte (étoiles rouges) en fonction de la température.

La première chose à remarquer est que la durée de vie n'est pas modifiée en fonction de température. En effet jusqu'à 80K la durée de vie reste constante à 2ns ; cela signifie que la boîte n'est que peu soumise à des effets non-radiatifs. Le nombre moyen de paires μ dans la boîte augmente à 10K puis semble rester constant. Ce comportement est à comparer avec l'évolution de l'aire intégrée de la raie présentée

à la figure (3.28) (a). L'évolution de l'aire intégrée entre 4K et 10K peut s'expliquer par une augmentation du nombre moyen de paires dans la boîte quantique, ce qui valide l'explication du dé-piégeage des porteurs par activation thermique. Au delà de 10K, l'intensité de la raie décroît alors que le nombre de porteurs dans la boîte reste constant. Cette observation démontre que la chute d'intensité n'est pas liée à des processus non-radiatifs mais au transfert des porteurs vers d'autres états thermiquement activés.

3.3.3 Conclusion

Cette étude a permis de démontrer que les boîtes quantiques en tant qu'objets uniques conservent un bon caractère radiatif (car la durée de vie radiative est longue et la boîte n'est pas soumise à des processus non radiatifs) jusqu'à 80K. Elles constituent donc un bon candidat pour l'émission de photons uniques à 77K. L'évolution du nombre de paires dans la boîte a permis également d'expliquer la nature du fond qui croît au pied de la raie et la chute de l'intensité de la raie à 1300nm.

3.4 Mesure d'autocorrélation sur boîte unique

A présent nous allons présenter la mesure qui constitue une preuve directe de l'unicité du dipôle émetteur associé à la transition excitonique : l'émission de photons uniques. Cette mesure s'effectue par corrélation de photons ; pour commencer cette section nous décrirons le principe de la mesure. Finalement nous clôturerons cette section par l'observation du dégroupement des photons sur la raie X_1 du mesa $QD_{1.3}$.

3.4.1 Mesure de corrélation de photons

L'unicité des photons émis se vérifie grâce à des expériences de dégroupement de photons : le signal de luminescence rayonné par la transition fondamentale de la boîte quantique est dirigé sur un des ports d'entrée d'une lame séparatrice 50/50 et, en plaçant deux détecteurs à photons uniques sur les deux ports de sortie de la lame, on doit observer un taux nul pour les coïncidences entre les deux détecteurs. Cette expérience revient à mesurer la fonction d'autocorrélation d'intensité du signal (les explications sur les sources thermiques et cohérentes sont disponible à la section 4.4.1)).

La fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle E^{(-)}(t_1)E^{(-)}(t_2)E^{(+)}(t_2)E^{(+)}(t_1) \rangle}{\langle E^{(-)}(t_1)E^{(+)}(t_1) \rangle \langle E^{(-)}(t_2)E^{(+)}(t_2) \rangle} \quad (3.20)$$

où $E^{(+)}(t)$ et $E^{(-)}(t) = (E^{(+)}(t))^\dagger$ sont respectivement la partie positive et négative de l'opérateur champ électrique en représentation d'Heisenberg. Plaçons nous dans le cas d'un onde monomode. L'expression ci-dessus devient alors :

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle a^\dagger(t_1)a^\dagger(t_2)a(t_2)a(t_1) \rangle}{\langle a^\dagger(t_1)a(t_1) \rangle \langle a^\dagger(t_2)a(t_2) \rangle} \quad (3.21)$$

ou encore pour $t_1=t_2$:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle a^\dagger a^\dagger a a \rangle}{\langle a^\dagger a \rangle \langle a^\dagger a \rangle} \quad (3.22)$$

où a^\dagger et a sont respectivement les opérateurs de création et d'annihilation des photons dans le mode.

Prenons à présent un état nombre $|n\rangle$, nous avons donc :

$$\langle n|a^\dagger a|n\rangle = \|a|n\rangle\|^2 = \langle n \rangle \quad (3.23)$$

$$\langle n|a^\dagger a^\dagger a a|n\rangle = \|a a|n\rangle\|^2 = \langle n(n-1) \rangle \quad (3.24)$$

avec $\langle n \rangle$ le nombre moyen de photon dans le mode. Dans ce cas $g^{(2)}(0)$ s'écrit :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n(n-1) \rangle}{\langle n \rangle^2} \quad (3.25)$$

Par conséquent si l'état nombre est un état à un photon, la fonction d'autocorrélation du second ordre s'annule lorsque $t_1=t_2$: $g^{(2)}(\tau=0) = 0$.

3.4.2 Dispositif expérimental de type Hanbury-Brown et Twiss

Afin de déterminer si une source émet des photons uniques, il nous suffit de mesurer sa fonction d'autocorrélation du second ordre à retard nul et de trouver la valeur zéro. Autrement dit observer que $g^{(2)}(0) = 0$. Cette mesure utilise un montage d'Hanbury-Brown et Twiss [146]. Nous représentons un schéma de cette expérience à la figure (3.34). Le principe est d'envoyer la lumière sur une lame séparatrice 50/50 ; sur chacune des deux voies de cette lame, nous plaçons des détecteurs de photons. Ensuite nous venons calculer le produit des deux intensités en fonction de τ le délai entre les deux voies. Cette mesure nous permet de mesurer directement la fonction d'autocorrélation du second ordre $g^{(2)}(\tau)$. Cette expérience peut être faite en régime d'excitation continue ou pulsée. Dans le cadre de ce travail de thèse seule l'excitation pulsée a été utilisée.

Mesure en régime pulsé

Dans notre cas nous nous intéressons à un rayonnement constitué par une suite d'impulsions dont nous souhaitons connaître la statistique de photons. Dans notre expérience nous excitons la boîte avec un laser de cadence 82MHz, donc nous avons une impulsion excitatrice toutes les 12.2ns ce qui est bien supérieur à la durée de vie de notre boîte (2ns). Nous supposons que les propriétés optiques de la source sont invariantes dans le temps. Les impulsions lumineuses envoyées dans le montage de type Hanbury-Brown et Twiss sont donc considérées identiques et sans corrélation les unes avec les autres.

A présent nous pouvons construire notre courbe de corrélation. Pour ce faire il nous suffit d'enregistrer le temps d'arrivée des photons sur une voie (voie stop) sachant que nous avons détecté un photon sur l'autre voie (voie start). Nous envoyons donc directement le signal des SSPDs sur les deux voies de l'oscilloscope, puis nous utilisons un déclenchement conditionnel, qui déclenche la détection sur la

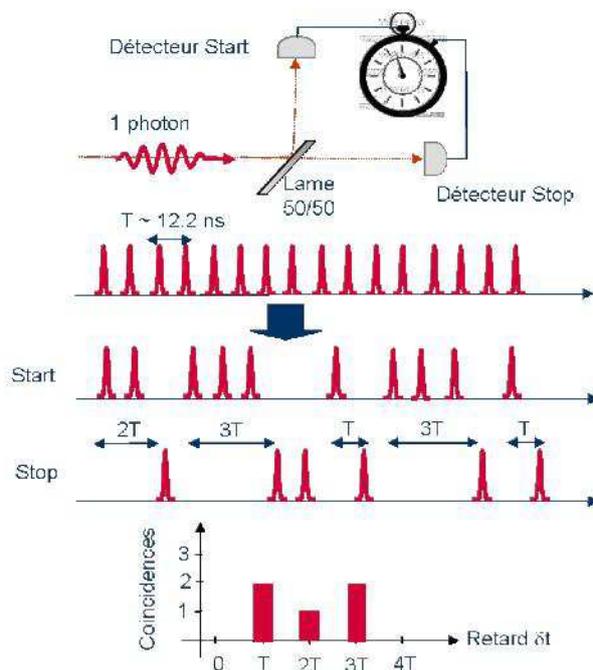


FIGURE 3.34 – Schéma représentant l'expérience d'Hanbury-Brown et Twiss, pour démontrer l'unicité des photons.

première voie (voie stop) seulement si un photon a été détecté sur l'autre voie (voie start). Nous réglons une fenêtre de 70ns (ce qui nous permet de visualiser 5 pics de corrélation sur l'oscilloscope). Enfin, une fonction permet de calculer la différence temporelle d'arrivée des deux photons, ce qui permet de tracer des coïncidences.

Deux points relatifs à notre dispositif de mesure pulsée

- La fonction de déclenchement conditionnel de l'oscilloscope ne nous permet pas de faire des mesures avec des retards négatifs ; pour pouvoir ainsi bien cerner le retard nul, nous avons décalé le zéro de la fonction en ajoutant quatre mètres de fibre optique devant un des deux SSPDs. Grâce à cette fibre nous avons pu décaler le zéro de 20ns et ainsi pouvoir faire la mesure à délai nul.
- La mesure sous excitation impulsionnelle ne nous permet pas d'avoir la fonction $g^{(2)}(\tau)$ pour tout retard τ mais uniquement un échantillonnage de cette dernière tous les 12.2ns.

3.4.3 Vers une source de photons uniques

La mesure a été faite sur la raie X_1 à 1300nm du mesa $QD_{1.3}$. Pour isoler la raie, nous utilisons un filtrage spectral par le monochromateur. Le signal ainsi filtré est ensuite introduit dans une fibre optique puis scindé par un coupleur 50/50 fibré avant d'arriver sur chaque SSPD. La boîte quantique est excitée à une puissance de 845nW soit environ $1.6P_{sat}$; à cette puissance l'intensité de la raie est maximale,

sans signal de fond et la boîte contient en moyenne 1.3 paires. A cette puissance nous mesurons 325 000 photons sur la caméra InGaAs et 1500 photons sur chaque SSPD. Cette grande différence est due à la faible efficacité quantique de nos détecteurs supraconducteur, environ 1%.

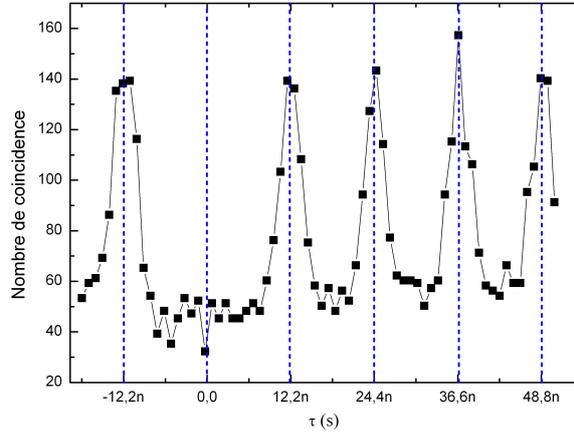


FIGURE 3.35 – Histogramme des mesures de corrélations non corrigé du bruit. Traits bleus : les impulsions du laser. L’absence de pic à retard nul est une preuve de l’unicité de l’émetteur. La durée de l’acquisition est de 1000 minutes (16h45).

L’histogramme présenté à la figure (3.35) correspond au résultat brut de la mesure, comptabilisant 5336 coïncidences pour une durée d’acquisition de 1000 minutes (16h45). Cet histogramme met en évidence un pic à chaque impulsion laser à l’exception de celui à retard nul. Sur cette figure, nous n’avons pas corrigé du bruit provenant de fausses coïncidences. En effet il nous faut retirer toutes les coïncidences provenant des corrélations de type :

- $Bruit_{voieStart}$ avec $Bruit_{voieStop}$
- $Signal_{voieStart}$ avec $Bruit_{voieStop}$
- $Bruit_{voieStart}$ avec $sSignal_{voieStop}$

Le nombre moyen de ces coïncidences est de 33 pour la durée totale d’acquisition en prenant en compte les 3 types de bruits décrits précédemment.

Afin de déterminer au mieux la valeur de $g^{(2)}(0)$, nous avons décidé d’ajuster notre courbe corrigé du bruit par une somme de gaussiennes situées à 12.2ns d’intervalle.

Sur la figure (3.36) nous avons représenté l’ajustement de notre courbe corrigée du bruit par des gaussiennes de 3ns de largeur. Les chiffres indiqués au dessus des pics correspondent à l’aire normalisée par l’aire moyenne des 5 pics. Nous avons également fait la même chose pour le pic à retard nul et nous obtenons $g^{(2)}(0) \approx 0.18$. Cette mesure de $g^{(2)}$ en régime impulsionnel montre que lorsque la boîte émet un photon, il faut attendre 12.2ns avant qu’un autre photon ne soit émis. Notre boîte émet bien des impulsion lumineuses ne comprenant qu’un seul et unique photon. Grâce à cette signature directe nous pouvons affirmer que notre émetteur est bien une boîte quantique unique.

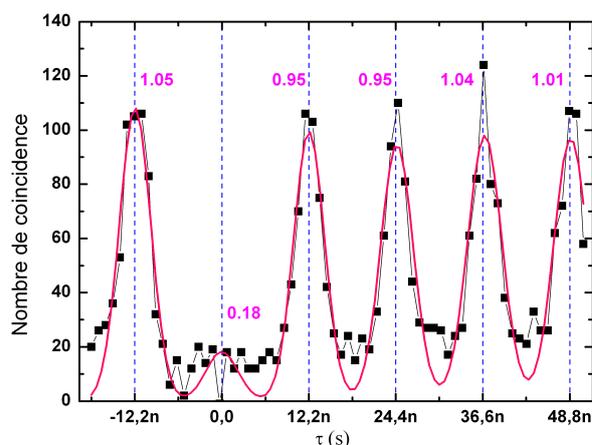


FIGURE 3.36 – Histogramme des mesures de corrélations corrigé du bruit. En traits bleus : impulsions du laser d'excitation. La courbe en trait plein magenta représente un ajustement de la courbe par des gaussiennes de 3ns de largeur. Les chiffres au dessus de chaque pic correspondent à l'aire normalisée de chaque gaussienne.

3.5 Conclusions

Dans ce chapitre l'objectif a été d'étudier les propriétés de luminescence des boîtes quantiques uniques d'InAsP/InP, car il s'agit d'un système encore mal connu. Au cours de ce chapitre nous avons démontré qu'il est possible d'isoler un faible nombre de boîtes quantiques sur des micropiliers. Ceci présente un triple intérêt : tout d'abord de pouvoir localiser des boîtes quantiques uniques. D'autre part par sa structuration, le mesa nous permet de nous repérer spatialement sur l'échantillon et ainsi de revenir d'un jour sur l'autre sur le même mesa. Le dernier intérêt est que la structuration permet d'induire un effet guide d'onde redirigeant la lumière le long du mesa et ainsi d'obtenir un flux de photons plus important. Nous avons ainsi pu étudier trois émetteurs différents. Il a été démontré qu'il est possible de les classer en deux catégories distinctes : des structures hybrides de type "puits" avec des spectres d'émission larges et des structures de type boîte quantique dont le spectre d'émission comporte des raies fines. L'étude de deux boîtes quantiques dans deux bandes télécommunications (bande-O à 1300nm et bande-C à 1550nm), a permis de mettre en évidence de nombreuses similitudes entre elles malgré une longueur d'onde très différente. Cependant certaines expériences n'ont pu être menées que sur la boîte à 1300nm. Une mesure d'autocorrélation du second ordre a permis d'affirmer l'unicité du dipôle associé à la transition excitonique dans ces boîtes. L'étude en température et le maintien de la durée de vie radiative jusqu'à 82K est de bon augure pour la réalisation de sources d'états quantiques de lumière dans la fenêtre spectrale des télécommunications sur fibre et opérant à 77K. Dans la perspective de créer des sources de photons indiscernables ou intriqués il sera indispensable d'accélérer la durée de vie radiative au vu des courtes valeurs du temps de déphasage mesuré (30ps). Ceci peut être fait en recourant à des effets de cavité, comme nous le verrons dans le chapitre 5.

Chapitre 4

Les cavités à cristaux photoniques comme outil pour sonder l'émission des boîtes quantiques.

Au cours du chapitre 2, il a été démontré que le système InAsP/inP épitaxié par EPVOM permettait de créer des boîtes quantiques ayant un très bon comportement radiatif à température ambiante. En effet, ce système est peu sensible aux défauts non-radiatifs et émet à des longueurs d'onde allant de $1.2\mu\text{m}$ à $2.3\mu\text{m}$. Le processus d'émission d'un tel système à basse température peut être identifié à un spectre de raies fines associé à des transitions excitoniques. En revanche, à température ambiante la nature discrète de l'émission des boîtes disparaît pour donner lieu à un spectre large. Ainsi lors de l'utilisation d'un tel système comme milieu à gain dans des nanolasers, se pose la question de la nature même de ce milieu à gain. Serait ce un milieu homogène ou inhomogène ? L'objectif de ce chapitre sera de répondre à cette question. Pour cela il sera indispensable d'introduire dans un premier temps la cavité laser : une cavité à cristal photonique.

4.1 La cavité optique : Vers une mise en œuvre d'effets d'électrodynamique quantique en cavité

4.1.1 Cavités à défauts ponctuels

Dans les cristaux photoniques bidimensionnels constitués d'un réseau périodique parfait bi-dimensionnel de trous traversant un matériau diélectrique, des défauts ponctuels de périodicité peuvent être créés par l'introduction locale de lacunes, par exemple en omettant de percer certains trous. La présence d'un défaut ponctuel peut conduire à l'existence de niveaux discrets d'énergie dans une ou plusieurs bandes interdites à la fois. L'exemple le plus simple est la cavité dite H_1 (voir figure 4.1 et 1.16). Il s'agit d'un cristal photonique à maille hexagonale dans lequel nous omettons de percer un trou. Suivant les paramètres géométriques du cristal (le pas du réseau et la taille des trous), cette cavité peut être le siège de plusieurs modes. Le mode fondamental dipolaire est doublement dégénéré correspondant à deux polarisations orthogonales. Celui-ci possède un facteur de qualité modéré, de

l'ordre de quelques centaines, mais présente un volume modal très faible de l'ordre de $0.3 (\lambda/n)^3$. Ces cavités peuvent donc être le siège d'effets d'électrodynamique quantique en cavité importants. Pour un émetteur idéalement couplé au mode, le facteur de Purcell peut théoriquement atteindre une valeur de 70.

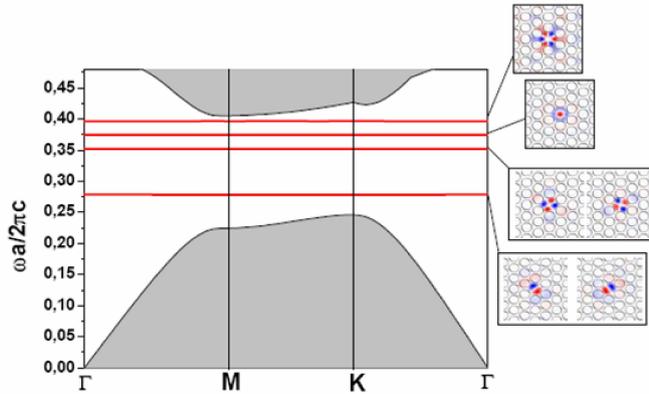


FIGURE 4.1 – Diagramme de bandes de la structure H1; quatre niveaux d'énergie, correspondant aux modes confinés dans le défaut, apparaissent dans la bande interdite photonique délimitée par les deux régions grisées. Les distributions spatiales du champ H_{\perp} associés à chaque mode sont indiquées à droite.

L'agencement et le diamètre des trous au voisinage de la cavité jouent un rôle primordial sur les propriétés optiques des résonateurs. La cavité à cristaux photoniques, appelée "L3 modifiée", gravée dans une membrane suspendue de diélectrique peut servir d'exemple pour illustrer ce point. Cette cavité consiste en trois trous manquants sur une même ligne d'un cristal photonique à maille hexagonale gravé sur une membrane suspendue. En modifiant légèrement la position des trous externes de la cavité, l'équipe de l'Université de Tokyo a démontré que le facteur de qualité peut être fortement exalté [73](voir figure 4.2).

L'équipe du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique donne une interprétation de ces phénomènes [74, 75]. Les éléments qui entrent en jeu dans l'amélioration du facteur de qualité sont :

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

Ainsi, le facteur de qualité de la cavité L3 varie de près d'un ordre de grandeur suivant l'amplitude du déplacement des trous plus proches voisins de la cavité. Ces travaux ont permis la réalisation de cavités de très faibles volumes modaux (environ $(\lambda/n)^3$) et de très grands facteurs de qualité (environ 10^4 en GaAs et 45000 sur Si).

4.1.2 Descriptif de fabrication

Le but de ce paragraphe est d'exposer les étapes de réalisation des cavités à cristaux photonique sur membrane. Ce travail est réalisé en salle blanche au sein

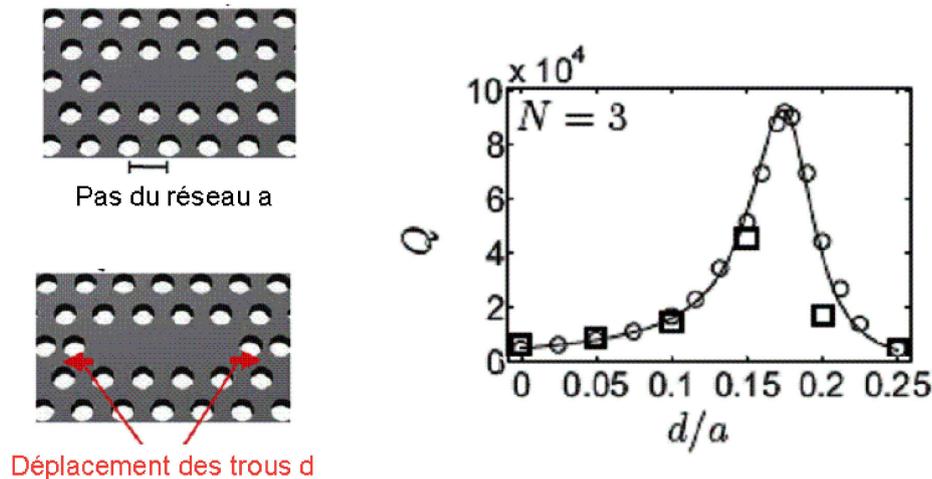


FIGURE 4.2 – *Gauche* : Représentation schématique de la cavité $L3$ de paramètre de maille a . *Droite* : Facteur de qualité de la cavité optique en fonction du déplacement des trous d ; les carrés sont les résultats expérimentaux issus de [73] et le trait plein superposé de cercles sont les résultats numériques issus de [74].

du laboratoire par Rémy Braive et Isabelle Sagnes. Les travaux de thèse de K. H. Lee (LPN) et [147] apportent plus de détails techniques sur ces différentes étapes. La figure (4.3) illustre chacune des étapes de la fabrication décrites par la suite.

La première étape consiste en la croissance du semiconducteur par épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM). Elle débute par la croissance d'une couche sacrificielle d'InGaAs d'épaisseur $1,16 \mu\text{m}$ sur un buffer d'InP. Cette épaisseur est choisie égale à $3\lambda/4$ en prenant $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$. Pour cette épaisseur, l'amplitude du champ sera maximale à l'interface avec l'InP. On vient ensuite croître une couche d'InP qui formera la membrane suspendue. Au sein de cette couche et en son centre, on fait croître un plan de boîtes quantiques. Les boîtes sont ensuite encapsulées avec de l'InP. L'épaisseur totale de la membrane, égale à 262 nm dans nos expériences, correspond à une épaisseur de $\lambda/2n_{eff}$, avec n_{eff} l'indice effectif de la cavité. La référence [148] renseigne sur l'impact de l'épaisseur de la membrane sur les modes de cavité et sur leurs diagrammes d'émission.

Après avoir effectué l'empilement des couches semiconductrices, on fabrique un masque de gravure qui nous permet d'obtenir le dessin de la structure voulue. Ce masque est constitué d'une épaisseur de 300 nm de nitrure de silicium Si_3N_4 déposé à $300 \text{ }^\circ\text{C}$ par P.E.C.V.D (pour Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) sur les couches épitaxiées. Ce nitrure est recouvert par la suite d'une épaisseur de 450

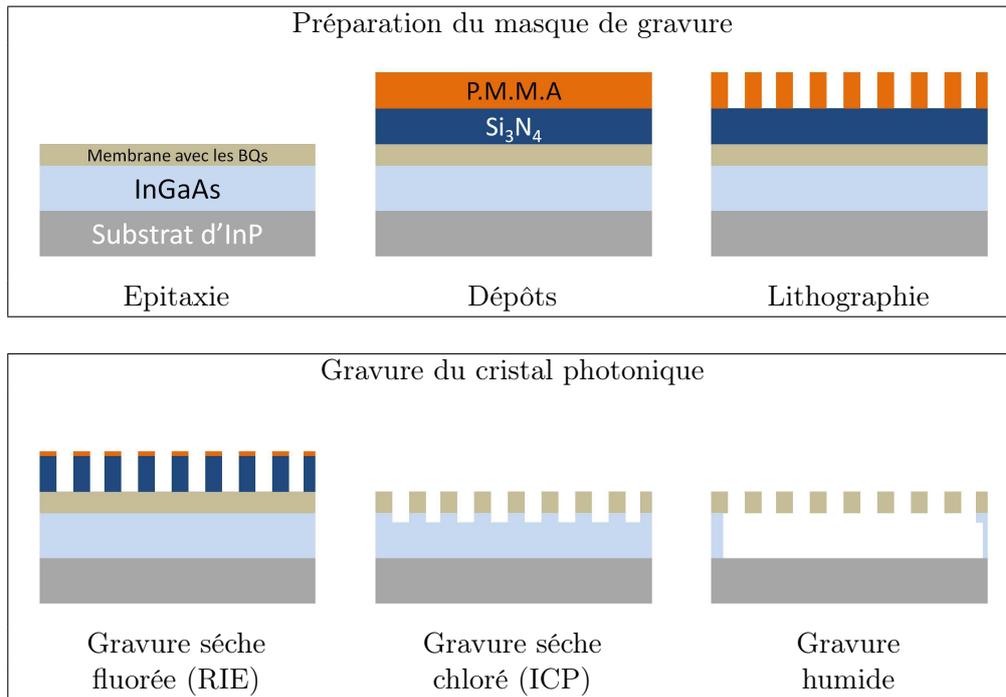


FIGURE 4.3 – Schéma explicatif des différentes étapes de la fabrication des cristaux photoniques.

nm de P.M.M.A (polyméthacrylate de méthyle), qui est alors polymérisée pendant une phase de recuit de 15 min à 150 °C. Elle devient ainsi sensible à un rayonnement d'électrons qui entraîne la rupture des chaînes de molécules du polymère. Les régions insolées peuvent dès lors être dissoutes par l'intermédiaire d'une solution chimique appropriée. Les dessins de nos structures sont réalisés sur le logiciel "L-Edit". L'échantillon est placé dans un appareil de lithographie électronique (LEICA EBPG 5000 +), qui permet de focaliser un faisceau d'électrons sur le PMMA en suivant le dessin de la structure avec une très grande précision (2.5 nm de résolution).

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

Enfin, dans le but de réaliser une membrane suspendue, la couche sacrificielle d'InGaAs est gravée. Il s'agit d'une étape de gravure humide. L'attaque sélective de

la couche se fait dans une solution chimique appropriée. La solution pénètre par les trous du cristal et vient dissoudre l'InGaAs. Cette étape est appelée la sous-gravure.

4.1.3 Les cavités étudiées

Afin de comprendre les choix des cavités effectués, il est important de comparer les différents types de cavité. Il est possible de créer des cavités à défaut de périodicité en omettant de percer de 1 à 11 trous dans un cristal photonique à maille hexagonale (voir figure (4.4)(a) à (c)). De plus, il est possible de créer des cavités à double hétérostructure (qui seront décrites ci dessous) comme évoqué dans [149] (voir (4.4) (d)).

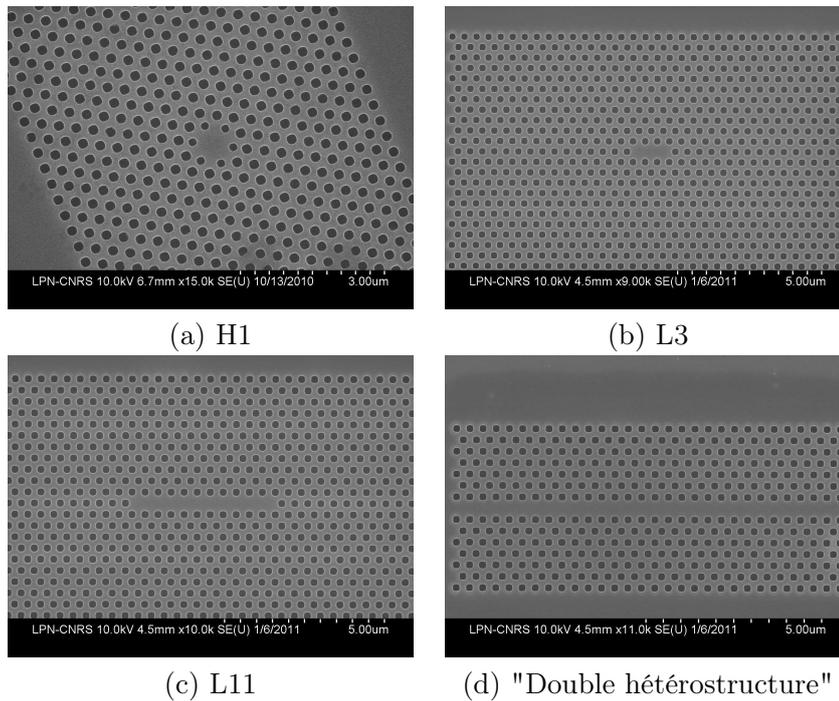


FIGURE 4.4 – Image MEB des différents types de cavités.

Les cavités à double hétérostructure

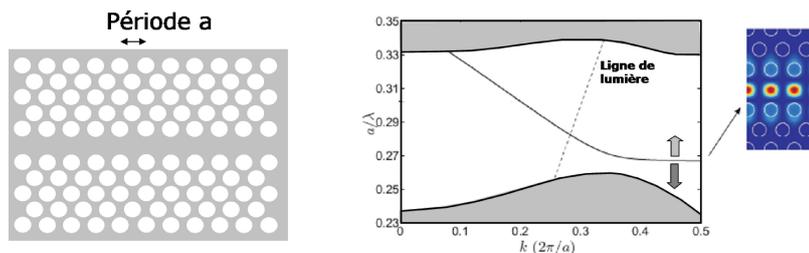


FIGURE 4.5 – Représentation schématique du guide W1 (gauche) et de sa courbe de dispersion ainsi que la distribution spatiale du mode en bord de bande (droite)

Lorsqu'on retire une ligne de trous dans un cristal photonique parfait ou bien lorsqu'on modifie le diamètre des trous d'une ligne entière, on peut réaliser des guides de lumière au sein du cristal. Un guide formé d'une ligne manquante de trous dans la direction ΓK (voir figure (4.5)) est appelé guide W_1 . Dans ce type de guide, le champ électromagnétique ne peut se propager que dans la direction d'invariance et il est confiné transversalement grâce à la présence d'un gap photonique (expliqué en section 1.2). Ce guide présente une fréquence de coupure indiquée par la courbe en trait plein dans la bande interdite photonique sur la figure (4.5). Seules les ondes de fréquence supérieure à cette courbe pourront se propager dans le guide. La zone de coupure du guide est marquée par une courbe de dispersion très plate correspondant à une vitesse de groupe en théorie nulle au bord de la première zone de Brillouin. L'augmentation de la période du cristal entraîne une diminution de la fréquence de coupure du guide, qui peut donc être ajustée facilement.

Cet ajustement de la position de la fréquence de coupure à partir d'un changement de géométrie (tel que la période longitudinale) permet la réalisation de cavités optiques. La cavité dite "à double hétérostructure" [149], proposée et réalisée par l'équipe de l'Université de Tokyo, utilise ce principe. Le principe du confinement latéral dans cette cavité est d'augmenter localement (sur deux périodes) la périodicité longitudinale du réseau le long du guide (voir la figure (4.6)). Un guide est ainsi créé, avec un paramètre de maille a_c et de fréquence de coupure ν_c s'étendant sur deux périodes, encadré par deux guides W_1 de paramètres a_g et de fréquences de coupure ν_g tels que $a_g < a_c$ et donc $\nu_c < \nu_g$. Ainsi, dans l'intervalle spectral $[\nu_c, \nu_g]$, des modes peuvent exister dans le guide central mais ne peuvent se propager dans les guides adjacents. En raison de la grande similitude géométrique entre les deux zones du cristal photonique, la réflectivité des miroirs formés par les guides W_1 de période longitudinale a_g est proche de 99,99%. De plus, la vitesse de groupe du mode de Bloch est très faible (faible courbure de la courbe de dispersion). Ainsi, ces cavités présenteront de très grands facteurs de qualité tout en préservant de faibles volumes modaux qui restent de l'ordre de $(\lambda/n)^3$ et dont la distance de pénétration de la lumière dans le miroir reste équivalente à celle des cavités à défaut ponctuel (1 à 2 périodes) [149]. Les facteurs de qualité sont d'autant plus élevés que l'écart de période entre le guide faisant office de cavité et ceux utilisés comme miroirs sera faible. Ainsi, le seul fait de juxtaposer des guides avec des périodes très proches suffit, en principe, à réaliser une cavité avec un excellent facteur de qualité et de très faible volume. Dans la pratique, la réalisation de ces cavités sur Si ont permis la fabrication de structures de facteurs de qualité de l'ordre de quelques 10^6 [149]. Ces cavités fabriquées dans des matériaux semiconducteurs III-V sans milieu actif montrent des facteurs de qualité de l'ordre de quelques 10^5 [150, 151] (sur GaAs).

Le tableau (4.1) compare les principales caractéristiques des cavités à cristaux photoniques utilisées dans ce travail de thèse.

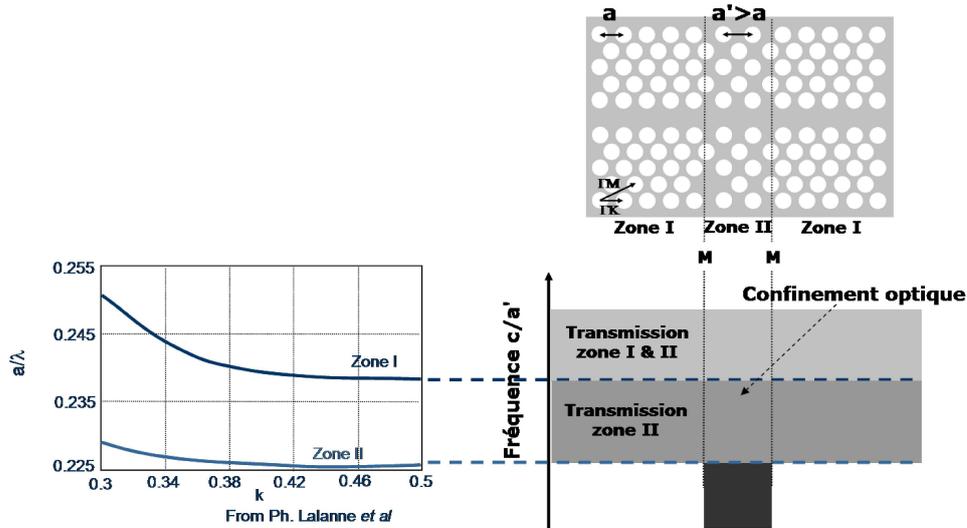


FIGURE 4.6 – Schéma de principe d’une structure à double hétérostructure (en haut), courbes de dispersion de deux guides W1 mais avec une périodicité différente dans la direction longitudinale (en bas à gauche) et une représentation du confinement optique dans une telle structure (en bas à droite)

| Type de cavité | Facteur de qualité | Volume Modal | Nombre de modes |
|------------------------|--------------------|---|--|
| H1 | $\simeq 10^2$ | $< \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ | 2 modes dégénérés de polarisation croisée |
| L_X | $\simeq 10^4$ | $\geq \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ | 1 mode pour la L_3 5 modes pour la L_{11} |
| Double hétérostructure | $\simeq 10^{5-6}$ | $\simeq \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ | Monomode |

Tableau 4.1 – Caractéristiques des différentes cavités d’étude.

4.1.4 Influence du rayon et du pas des trous sur la longueur d’onde d’émission : De la simulation à l’expérience

Dans la perspective de générer des cavités aux longueurs d’onde voulues, il est indispensable de comprendre les paramètres qui contrôlent la longueur d’onde de résonance. Les paramètres sur lesquels nous pouvons agir sont les suivants (voir figure (4.7)) :

- r le rayon des trous de la cavité
- a le pas du réseau de la cavité

Les études menées par S. Laurent [148] ont montré que pour un cristal photonique bidimensionnel de maille triangulaire, le rapport optimal entre le rayon du trou (r) et le pas (a) du réseau maximisant la bande interdite est :

$$\frac{r}{a} = 0.3 \tag{4.1}$$

La fabrication de ces cavités nécessite de nombreux moyens technologiques et de longues heures de travail (voir section 4.1.2). Une étude théorique permettant d’ajuster la longueur d’onde des cavités fabriquées s’avère indispensable avant d’en-

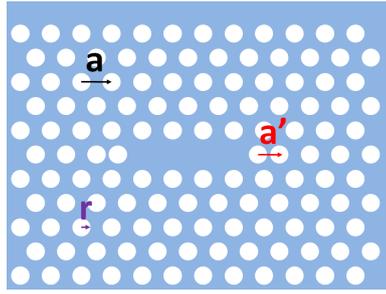


FIGURE 4.7 – Schéma d'une cavité à cristal photonique de type L_3 . Sur le schéma sont mentionnés les paramètres a (pas du réseau), r (rayon des trous) et a' (pas du réseau pour les trous fermant la cavité).

treprendre toute phase de fabrication. Une simulation sur Crystal Wave (logiciel de FDTD) a permis ainsi d'obtenir les paramètres r et a pour les cavités à défaut ponctuel. Quant aux cavités à double hétérostructure de type "NODA", les études menées par Richard Hostein [123] durant sa thèse permettent de créer des cavités aux longueurs d'onde souhaitées. Le traitement des courbes obtenues permet de lier la longueur d'onde du mode laser et le pas a du réseau par les équations suivantes :

$$L_3 : \lambda = 0.313 + 2.71a \quad (4.2)$$

$$L_5 : \lambda = 0.311 + 2.76a \quad (4.3)$$

$$L_7 : \lambda = 0.317 + 2.75a \quad (4.4)$$

$$L_{11} : \lambda = 0.327 + 2.73a \quad (4.5)$$

$$” Doublehetrostructure ” : \lambda = 0.270 + 3.7a_g \quad (4.6)$$

$$H_1 : \lambda = 0.025 + 3.06a \quad (4.7)$$

Dans ces équations, a et λ sont exprimés en microns.

Toutefois lorsqu'on réalise une cavité, ces paramètres doivent être modifiés pour certains trous afin d'optimiser la cavité :

- Pour les cavités à défaut ponctuel : le pas a des trous proches de la cavité (voir figure (4.7)). Dès lors les cavités seront dites "modifiées" et seront notés : L_{XM}
- Pour les cavités à double hétérostructures : le pas a_c du réseau au centre de la cavité par rapport à celui du guide a_g . ces variations sont comprises entre 10% et 30% (voir figure (4.6))

Dans le cas particulier des cavités à défaut ponctuel, les calculs ont été menés sans la modification du pas du réseau des trous plus proches voisins de la cavité. La thèse de S.Laurent [148] établit des relations entre les cavités à pas modifié et celles ayant un pas constant :

$$\lambda_{modifie} = 1.05 * \lambda_{constant} \quad (4.8)$$

$$a' = 0.81a \quad (4.9)$$

Une fois les simulations effectuées, il faut en vérifier la validité expérimentale.

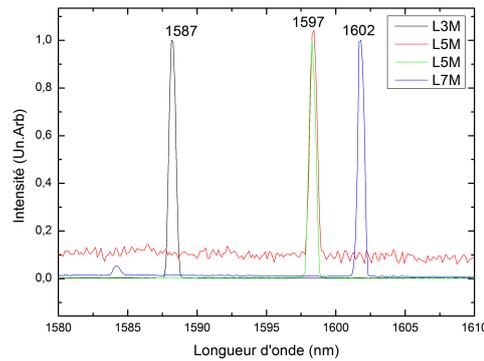


FIGURE 4.8 – Spectres de différentes cavités à défaut ponctuel de type L_{XM} . Les paramètres géométriques de ces cavités ont été choisis pour une résonance à 1550nm. Les longueurs d’onde expérimentales sont décalées de 3% vers le rouge.

Sur la figure (4.9) sont présentés les spectres expérimentaux des cavités L_{3M} , L_{5M} et L_{7M} fabriquées selon le modèle ici présenté, et conçues pour obtenir une résonance du mode fondamental à une longueur d’onde de 1550nm. Sur ces spectres, la longueur d’onde de résonance est légèrement décalée par rapport à celle attendue. Le décalage spectral entre le mode mesuré et celui visé est de 2.3% pour les L_{3M} et 3.3% pour les L_{7M} . Ces premières cavités permettent de valider le modèle proposé. L’écart de longueur d’onde peut s’expliquer par une modification de l’épaisseur de la membrane suspendue qui a pour effet de décaler les longueurs d’onde vers le rouge.

La mise au point de ces cavités ouvre l’opportunité de faire des mesures spectrales sur les boîtes quantiques en régime laser.

4.2 Courbe caractéristique du laser

4.2.1 Rappel sur les lasers : milieu à gain homogène ou inhomogène ?

Pour avoir l’oscillation laser, il faut que le gain du mode oscillant soit supérieur aux pertes. Deux types de milieu à gain existent :

- Milieu homogène : il est formé d’un ensemble de dipôles, tous avec le même spectre d’émission correspondant à la courbe de gain.
- Milieu inhomogène : il est formé d’un ensemble de dipôles émettant chacun à une longueur d’onde différente avec un spectre relativement étroit. Les longueurs d’onde des différents dipôles ont une distribution statistique large, ce qui donne une large courbe de gain pour le laser.

Le schéma de la figure (4.9) permet de visualiser la différence entre une courbe de gain homogène (en noir sur le schéma) et une courbe de gain inhomogène (en rouge sur le schéma). Sur le schéma sont également représentés en traits verticaux verts les différents modes de la cavité optique et en pointillés horizontaux violet la valeur des pertes de la cavité. Dans ce cas de figure, 5 modes ont un gain supérieur aux pertes et sont susceptibles d’osciller. Cependant en fonction du type de milieu à gain, le comportement du laser sera différent :

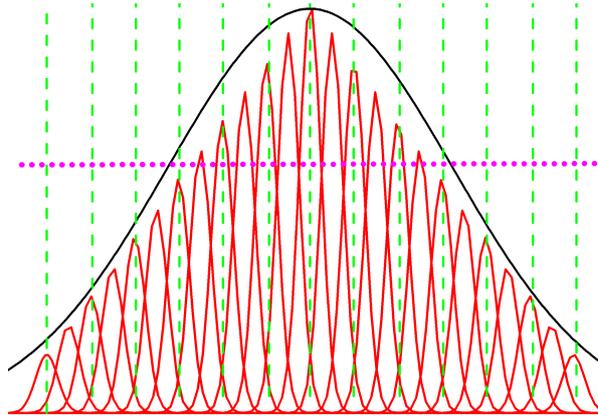


FIGURE 4.9 – *Noir : courbe de gain homogène. Rouge : courbe de gain inhomogène. Traits verticaux verts : différents modes de cavité. Trait horizontal violet : perte de la cavité.*

- Dans le cas d'un gain inhomogène, chacun des 5 modes adresse une population de dipôles différente, chacune apportant un gain indépendamment des autres et par conséquent les 5 modes peuvent osciller.
- Dans le cas d'un gain homogène, les 5 modes ne pourront pas s'établir simultanément. En effet une compétition "pour le gain" a lieu entre les différents modes, car lorsqu'un mode commence à laser, il draine l'énergie des autres modes qui ne peuvent plus laser. Généralement dans cette configuration il s'agit du mode disposant du gain le plus élevé qui oscillera. En conséquence, un seul mode sera susceptible d'osciller.

Par conséquent en utilisant le facteur β définis lors du chapitre 1, il est possible de définir la relation suivante, dans le cas d'un gain homogène :

$$\beta_1 + \beta_2 + \beta_3 + \beta_4 + \beta_5 + \beta_{pertes} = 1 \quad (4.10)$$

avec respectivement β_i le facteur β des modes 1,2,3,4,5 et β_{pertes} la proportion de photons émis dans les modes fuites.

Dans le cas des boîtes quantiques, à 4K et à forte puissance de pompe, chaque boîte émet un spectre d'une largeur spectrale de 10nm environ. Par conséquent l'utilisation des boîtes quantiques comme milieu à gain pour des nanolasers à 4K peut être a priori considéré comme un gain inhomogène. C'est ce que nous chercherons à vérifier, en étudiant l'émission laser dans des cavités multimodes.

4.2.2 Mise en évidence de l'effet laser à 300K

Dans un premier temps, nous nous intéressons à la dépendance de l'intensité collectée en fonction de la puissance d'excitation. Pour cela les deux lasers d'excitation utilisés sont, le Ti :Sa impulsional à 810nm et la diode continue à 840nm. Dans les deux cas l'observation de la courbe d'intensité émise en fonction de la puissance d'excitation en échelle logarithmique-logarithmique prend une forme de "S" caractéristique du passage du seuil laser (voir figure (4.10)). Cette courbe est appelée courbe "L-L" pour "Light in - Light out".

L'évolution de l'intensité émise en fonction de la puissance d'excitation permet de distinguer trois régimes :

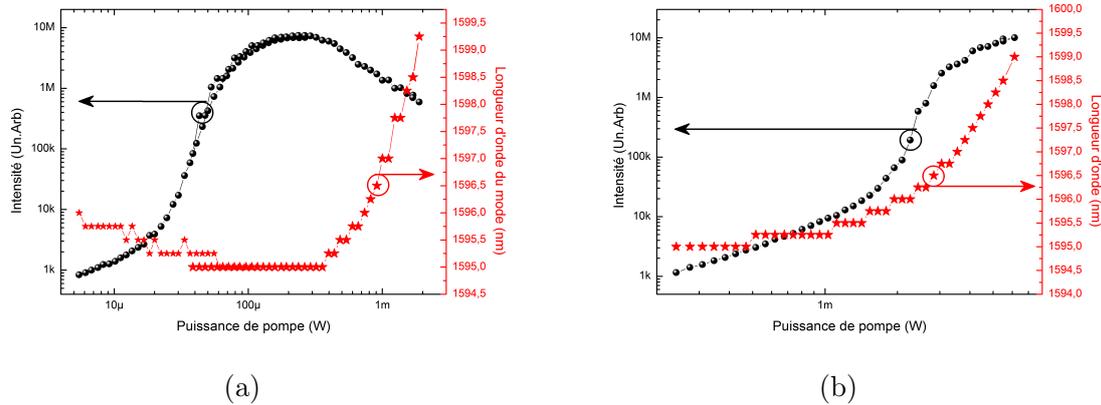


FIGURE 4.10 – Courbe "L-L" d'une cavité à double hétérostructure en échelle logarithmique (rond noir) et longueur d'onde du mode (étoile rouge) en fonction de la puissance de pompe. (a) Pompage impulsionnel, (b) Pompage continu.

- À faible puissance d'excitation on observe une progression linéaire de l'intensité émise en fonction de la puissance de pompe. C'est le régime d'émission spontanée.
- À forte puissance d'excitation la progression redevient linéaire en fonction de la puissance d'excitation. c'est le régime d'émission stimulée.
- Entre ces deux zones, on remarque une croissance abrupte de l'intensité émise en fonction de la puissance d'excitation. C'est la zone de transition laser l'émission spontanée et stimulée coexiste. Le centre de cette zone correspond au seuil du laser.

L'examen de la courbe de la figure (4.10) (a), montre, à forte puissance de pompe une saturation puis une décroissance de l'intensité émise. Ce phénomène peut être lié à la saturation du gain et à l'apparition de pertes induites par des effets thermiques. En effet, l'étude de la longueur d'onde du mode en fonction de la puissance d'excitation révèle un décalage vers le rouge ce qui est la signature d'un effet thermique.

Longueur d'onde du mode et effets thermiques

Deux phénomènes sont à l'origine du déplacement de la longueur d'onde de la cavité en fonction de la puissance d'excitation.

- A faible puissance d'excitation, l'injection des porteurs augmente leur densité. Ce processus entraîne une modification de l'indice optique du matériau entraînant ainsi un décalage de la longueur d'onde vers le bleu [153].
- A forte puissance d'excitation, l'augmentation de la puissance d'excitation induit un échauffement de la membrane [154]. Cet échauffement provoque par conséquent un décalage de la longueur d'onde vers le rouge. De plus, il entraîne une chute de l'intensité collectée voire même une destruction totale de la membrane¹.

L'analyse des spectres de la figure (4.10) permet de distinguer un comportement différent en fonction du type d'excitation.

1. celle-ci est évaporée au niveau du spot laser d'excitation

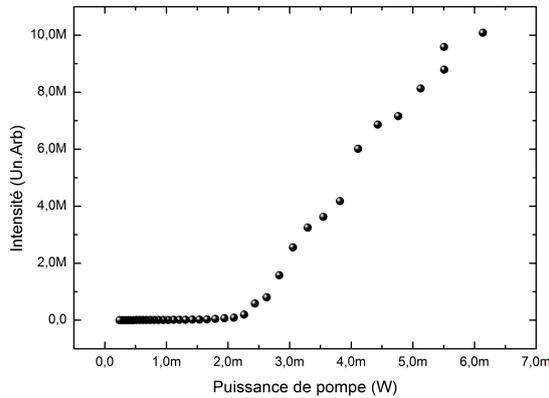


FIGURE 4.11 – Courbe "L-L" en pompe continu en échelle linéaire, d'une cavité à double hétérostructure.

- En régime de pompage continu, il n'y a pas de décalage vers le bleu à basse puissance, mais un décalage vers le rouge très rapide. En effet, les puissances d'excitation utilisées chauffent la membrane plus vite qu'elles ne changent l'indice optique.
- En régime de pompage impulsionnel, à faible puissance un décalage vers le bleu est observable. A plus forte puissance d'excitation le décalage s'effectue vers le rouge ce qui permet de souligner un comportement différent de celui observé par Richard Hostein [123] qui n'avait pas observé de décalage vers le rouge. Cette différence peut s'expliquer, par une moins bonne diffusion de la chaleur au sein de la membrane, explicable par une membrane plus épaisse que prévue.

La courbe "L-L" en échelle linéaire de la figure (4.11) permet une meilleure visualisation du passage du seuil. En effet pour une puissance de 2.23mW une rupture brutale est observable. Ce point correspond donc au seuil laser de la cavité.

Rapport signal/bruit

Un point intéressant à étudier est le rapport signal sur bruit de ces raies d'émission.

D'après les spectres de la figure (4.12), le rapport signal à bruit de ces structures est de $35 \pm 5dB$, et la puissance de sortie de ces structures est de 1.1nW collectée à la verticale de la membrane.

Influence du paramètre β sur les caractéristiques du laser

La figure (4.13) permet d'observer la dépendance de la courbe "L-L" sur le paramètre β . Lorsque β est faible (comme pour les lasers conventionnels), la courbe marque une rupture franche qui s'opère sur une faible plage de puissance. A l'opposée, lorsque β augmente, le passage du seuil se fait sur une plage de puissances plus importante. La rupture de pente peut même disparaître lorsque β prend la

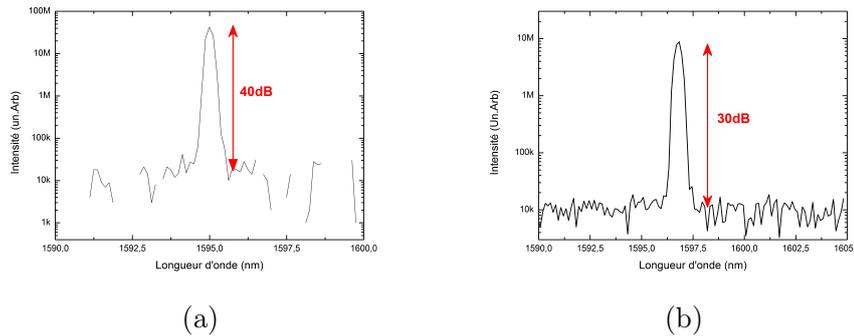


FIGURE 4.12 – Spectres du laser à cristal photonique à double hétérostructure à une puissance de deux fois le seuil. (a) En pompage continu. (b) En pompage impulsionnel.

valeur de 1.

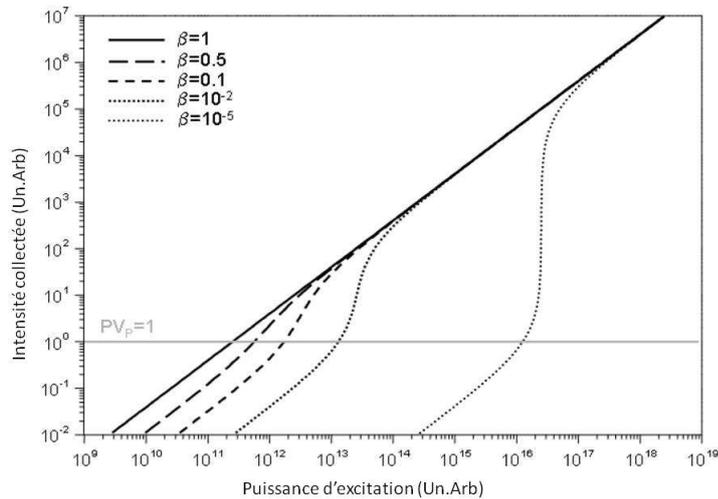


FIGURE 4.13 – Évolution de la courbe d'intensité émise en fonction de la puissance incidente pour différentes valeurs du paramètre β .

Détermination du facteur β et du seuil laser

Le facteur β des cavités étudiées peut être directement obtenu à partir des courbes "L-L". Pour des faibles puissances d'excitation, la lumière émise est essentiellement de l'émission spontanée et la probabilité d'alimenter le mode utile est égale à β . En revanche, à forte puissance, l'émission est principalement de l'émission stimulée qui est entièrement canalisée dans le mode utile. Le facteur β correspond donc au rapport des efficacités de couplage entre ces deux régimes autrement dit : β est égal au rapport des logarithmiques de l'intensité émise entre ces deux régimes ramenée à la même puissance d'excitation (voir figure (4.14)).

Sur la figure (4.14) sont tracées les courbes "L-L" déjà présentées à la figure (4.10) sur lesquelles sont calculés les facteurs β . La valeur de β obtenue en pompage

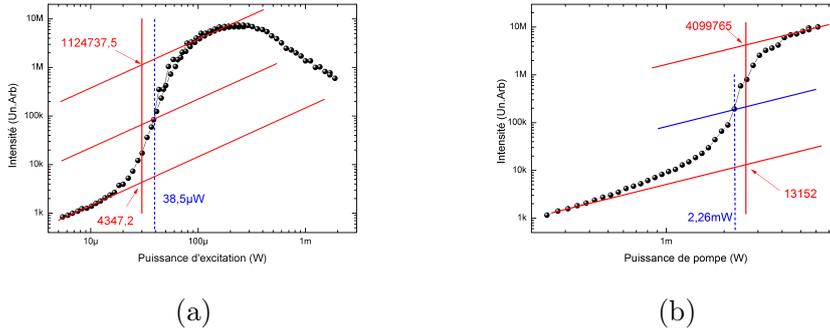


FIGURE 4.14 – Courbe "Light in - Light out" d'une cavité à double hétérostructure. En rouge : droites de pente unitaire permettant une détermination du facteur β . En bleu : droite de pente unitaire passant par la valeur moyenne correspondant au seuil du laser. (a) sous excitation pulsée : $\beta = 3.9 \times 10^{-3}$, $P_{th} = 38.5 \mu W$ (b) sous excitation continue : $\beta = 3.3 \times 10^{-3}$, $P_{th} = 2.26 mW$.

pulsé est $\beta = 3.9 \times 10^{-3}$ et en pompage continu $\beta = 3.3 \times 10^{-3}$. Ces deux valeurs sont à l'intérieur des erreurs expérimentales.

Puissance au seuil et normalisation des courbes "L-L"



FIGURE 4.15 – Efficacité quantique de détection de la caméra InGaAs en fonction de la longueur d'onde (courbe donnée par le constructeur).

On peut normaliser des courbes "L-L" en régime d'excitation continue pour tracer le nombre de photons émis dans la cavité par durée de vie, en fonction de la puissance d'excitation normalisée à la puissance seuil (définie par le point d'inflexion sur la courbe "L-L"). Connaissant le nombre de coups sur la caméra InGaAs, il est possible de revenir au nombre de photons intra-cavité à partir du facteur η :

$$\eta = \eta_{cav} \eta_{opt} \eta_{spec} \eta_{cam} \quad (4.11)$$

avec

- η_{cav} la fraction de photons de la cavité qui sont effectivement collectés par l'objectif de microscope. Elle est déduite de simulations FDTD [156], qui permettent de remonter au diagramme d'émission de la cavité. Cette fraction vaut $\eta_{opt} = 0.004$ (pour une cavité de type L_3). Cette valeur est, comme attendu, relativement faible car la majeure partie de l'émission se fait dans le plan du guide
- η_{opt} le taux de transmission du montage d'optique entre la cavité et le spectromètre. Ce taux est mesuré grâce à une diode laser à $1.55 \mu\text{m}$ et vaut : $\eta_{opt} = 0.25$
- η_{spec} la transmission du spectromètre à $1.55 \mu\text{m}$, mesurée à : $\eta_{spec} = 0.7$
- η_{cam} l'efficacité quantique de la caméra InGaAs dépend de la longueur d'onde est représenté à la figure (4.15), donnée par le fabricant.

Ainsi, le facteur η est estimé à environ 3.2×10^{-4} à 1530 nm .

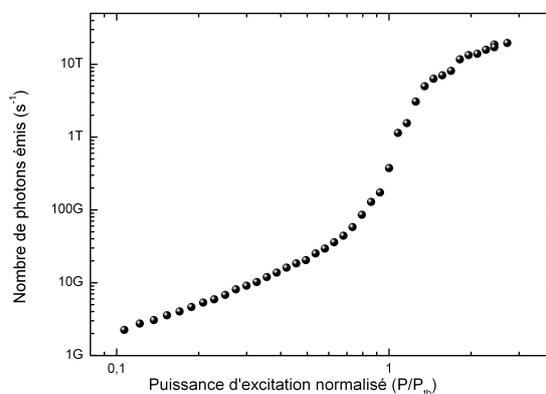


FIGURE 4.16 – Courbe "L-L" normalisée de la cavité.

La courbe "L-L" normalisée de la figure (4.16) permet de déterminer le nombre de photons intra-cavité par seconde en fonction de la puissance d'excitation.

4.2.3 Largeur de raie : Rappel théorique et mise en place expérimental

Un dernier paramètre important est le facteur de qualité de la cavité. Pour cela des mesures interférométriques permettant de déterminer la largeur spectrale des cavités ont été effectuées. La largeur de raie d'émission des cavités d'étude est bien plus fine que la résolution spectrale du monochromateur. Par conséquent cette mesure s'effectue à l'aide d'un interféromètre de Michelson. Il est équipé d'un bras fixe et d'un bras motorisé, qui translate horizontalement le miroir par l'intermédiaire d'un moteur micro-contrôle. En utilisant ce montage il est donc possible d'effectuer des mesures de spectroscopie par transformée de Fourier qui offrent une résolution des largeurs de raie quand ces dernières sont plus fines que la résolution spectrale du monochromateur.

Suivent quelques rappels sur les interférences à deux ondes en lumière polychromatique, dans le cas d'une source de densité spectrale d'intensité continue $\mathcal{I}(\sigma)$,

avec $\sigma = 1/\lambda$ le nombre d'onde en cm^{-1} . Dans le cas où la source est polychromatique, il est indispensable de sommer toutes les composantes spectrales dans le calcul de l'intensité en sortie du Michelson. Pour une différence de parcours de Δ entre les deux bras, on peut écrire :

$$I(\Delta) = I_0 + \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{I}(\sigma) \cos(2\pi\sigma\Delta) d\sigma \quad (4.12)$$

avec $I_0 = \int_0^{+\infty} \mathcal{I}(\sigma) d\sigma$. Le second terme (noté par la suite $\hat{I}(\Delta)$) est la transformée de Fourier de la densité spectrale $\mathcal{I}(\sigma)$. Ainsi, une acquisition de l'interférogramme $I(\Delta)$ et le calcul de sa transformée de Fourier permettent de remonter à la densité spectrale. Dans nos expériences, la densité spectrale sera en première approximation soit gaussienne soit lorentzienne. C'est pourquoi ces deux distributions sont ici traitées :

Densité spectrale Gaussienne

Soit une répartition d'intensité donnée par une gaussienne :

$$\mathcal{I}(\sigma) = \mathcal{I}_0 \exp\left(-\pi \frac{(\sigma - \sigma_0)^2}{\Delta_\sigma^2}\right) \quad (4.13)$$

L'enveloppe des franges d'interférence est aussi gaussienne et s'écrit :

$$\hat{I}(\Delta) = \mathcal{I}_0 \Delta_\sigma e^{-\pi(\Delta\Delta_\sigma)^2} \quad (4.14)$$

ce qui sur un graphique logarithmique donne une parabole dont l'ajustement permet d'obtenir la largeur Δ_σ .

Densité spectrale Lorentzienne

Soit une répartition lorentzienne :

$$\mathcal{I}(\sigma) = \mathcal{I}_0 \frac{1}{1 + 4\left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\Delta_\sigma}\right)^2} \quad (4.15)$$

L'enveloppe des franges d'interférence est une exponentielle décroissante :

$$\hat{I}(\Delta) = \mathcal{I}_0 \Delta_\sigma e^{-\pi(|\Delta|\Delta_\sigma)} \quad (4.16)$$

ce qui sur un graphique logarithmique donne une droite dont la pente permet d'obtenir la largeur Δ_σ .

La visibilité des interférences dépend fortement du recouvrement spatial entre les deux faisceaux issus des 2 bras de l'interféromètre. Pour faire une mesure correcte il est indispensable que les faisceaux se superposent et cela pour toute la longueur de déplacement de la platine motorisée, en évitant que la translation du miroir entraîne un décalage de l'un des 2 faisceaux ou que la divergence du faisceau mobile entraîne une défocalisation. Pour cela il est nécessaire de vérifier l'alignement avec une source dont la longueur de cohérence est très grande devant la longueur de translation, telle qu'un laser He-Ne stabilisé en fréquence qui dispose d'une cohérence de plusieurs

centaines de mètres. L'interférogramme d'un tel laser est présenté sur la figure (4.17). La visibilité des franges reste constante sur l'intégralité de la distance parcourue.

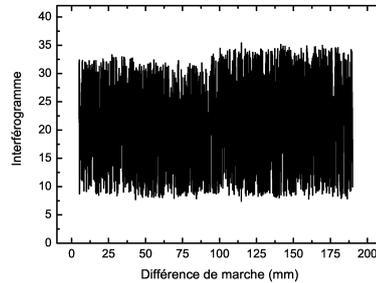


FIGURE 4.17 – Interférogramme du laser He-Ne sur la totalité de la course de notre platine. Nous constatons que le signal reste constant ce qui signifie que notre interféromètre est bien réglé.

Détermination du facteur de qualité grâce à la largeur de raie.

En l'absence de sources, l'évolution de la densité de photons dans une cavité prend la forme d'une exponentielle décroissante avec un temps caractéristique τ_c . La largeur à mi-hauteur du spectre du mode de la cavité est $\Delta\nu_C=1/\tau_c$. Cette largeur appelée : "largeur de la cavité froide" est reliée au facteur de qualité du résonateur par $Q = \nu_C/\Delta\nu_C$, où ν_C est la fréquence de résonance du mode optique. Il est possible de le réécrire ainsi : $Q = \lambda_C/\Delta\lambda_C$ où λ_C est la longueur d'onde de résonance du mode optique et $\Delta\lambda_C$ sa largeur.

4.3 Mesures expérimentales

4.3.1 Étude des cavités à 300K

Étude Spectrale

| Type de cavité | Longueur d'onde du mode (nm) |
|----------------|------------------------------|
| L_{3M} | <u>1595</u> |
| L_{5M} | 1567 |
| | <u>1600</u> |
| L_{7M} | 1548 |
| | 1584 |
| | <u>1608</u> |
| L_{11M} | 1541 |
| | 1550 |
| | 1564 |
| | 1585 |
| | <u>1612</u> |

Tableau 4.2 – Tableau répertoriant les longueurs d'onde des modes des cavités à cristal photonique à 300K. En gras souligné indique le seul mode oscillant dans chaque cavité (mode fondamental).

Les cavités L_X sont multimodes lorsque $X \geq 5$: les cavités L_5 , L_7 et L_{11} ont respectivement 2, 3 et 5 modes. Cependant quelle que soit la cavité d'étude à 300K, un seul mode oscille en régime laser. Par la suite de l'étude, lorsque rien ne sera précisé, alors le mode étudié sera le mode fondamental.

Le tableau (4.2) répertorie les longueurs d'onde des modes des différentes cavités étudiées. Le fait qu'un seul mode lase dans toute ces cavités implique qu'à température ambiante les boîtes quantiques se comportent comme un milieu à gain homogène (voir section 4.2.1).

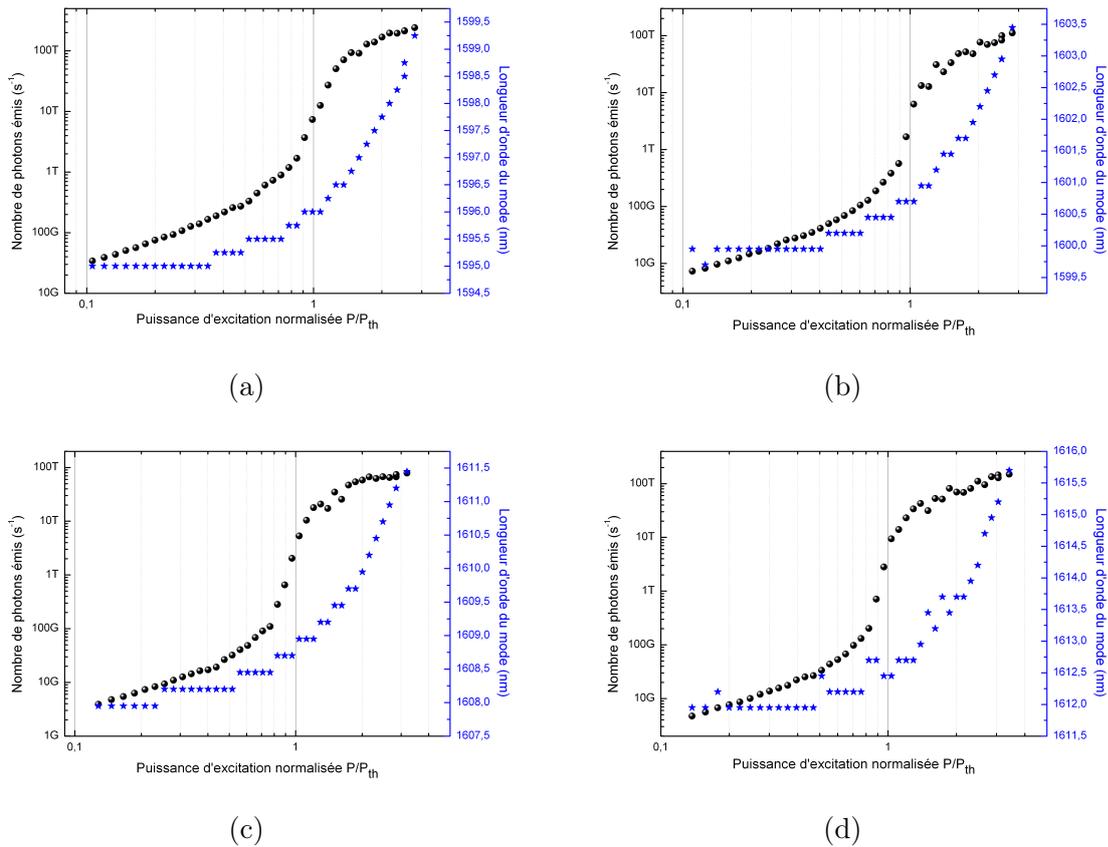


FIGURE 4.18 – (a-d) Exemple de courbe "L-L" pour chaque type de cavité. En points noirs : nombre de photons en fonction de la puissance d'excitation (courbe "L-L"). En étoiles bleues : longueur d'onde du mode de la cavité en fonction de la puissance d'excitation. (a) L_{3M} (b) L_{5M} (c) L_{7M} (d) L_{11M} .

L'étude des courbes de l'évolution de la longueur d'onde du mode laser en régime de pompage continu (voir figure (4.18)) permet d'observer que la longueur d'onde croît de manière sur-linéaire dès le passage du seuil. Ce décalage en longueur d'onde qui a déjà été discuté à la section précédente, reflète un échauffement de la cavité. L'étude de courbes "L-L" permet aussi de déterminer la valeur du paramètre β . Le tableau (4.3) répertorie la valeur de ce paramètre pour chaque type de cavité. Les valeurs s'y trouvant sont des moyennes effectuées sur une dizaine de cavités.

Le tableau (4.3) permet de relever les comportements suivants :

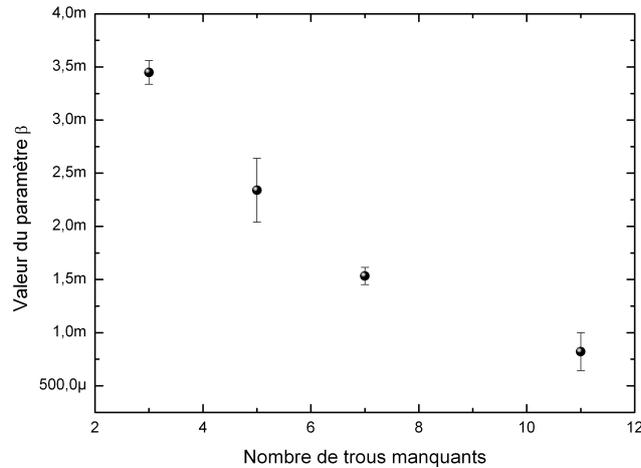


FIGURE 4.19 – Évolution du paramètre β en fonction du nombre de trou manquants dans la cavité.

| Modèle de cavité | Longueur d'onde (nm) | Puissance de seuil (P_{th}) (mW) | β |
|------------------|----------------------|--------------------------------------|---------------------------------|
| "DHS" | 1526 | 5.7 ± 0.4 | $(1.6 \pm 0.4) \times 10^{-3}$ |
| L_{3M} | 1595 | 2.6 ± 0.02 | $(3.5 \pm 0.4) \times 10^{-3}$ |
| L_{5M} | 1600 | 2.55 ± 0.09 | $(2.3 \pm 0.3) \times 10^{-3}$ |
| L_{7M} | 1608 | 2.25 ± 0.02 | $(1.5 \pm 0.1) \times 10^{-3}$ |
| L_{11M} | 1612 | 2.7 ± 0.03 | $(0.82 \pm 0.2) \times 10^{-3}$ |

Tableau 4.3 – Tableau répertoriant les principales caractéristiques des cavités laser à cristal photonique à 300K. "DHS" signifie double hétérostructure. La longueur d'onde présenté ici est celle à basse puissance avant le décalage.

La valeur du seuil diminue lorsque la longueur d'onde du mode augmente. Cela s'explique simplement par le fait que le mode de cavité se rapproche du maximum d'intensité de la distribution du gain.

L'augmentation de la taille de la cavité (augmentation du nombre de trous manquants) entraîne l'apparition de nouveaux modes de cavité; ainsi les cavités L_{3M} , L_{5M} , L_{7M} et L_{11M} ont respectivement 1, 2, 3 et 5 modes. Le facteur β qui correspond au ratio du nombre de photons émis spontanément dans le mode de cavité par le nombre total de photons émis dépend du dessin de la cavité. Il décroît en fonction du nombre de modes de la cavité et par conséquent de sa taille (voir figure (4.19)). Dès lors il est important de rappeler l'expression qui lie le facteur β et le volume de cavité (équation (1.14)) :

$$\beta = \frac{F}{\gamma + F} \quad (4.17)$$

avec γ le facteur des modes de fuite et $F = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2V}$ le facteur de Purcell (nous rappelons que V est le volume du mode "utile" de la cavité et Q son facteur de qualité). Il est donc possible de calculer le rapport entre β_{Li} et β_{L3} avec $i = 5, 7$ et 11 . On

obtient alors :

$$\frac{\beta_{L3}}{\beta_{Li}} = \frac{F_{L3}(\gamma_{Li} + F_{Li})}{(\gamma_{L3} + F_{L3})F_{Li}} \quad (4.18)$$

$$= \frac{Q_{L3}\lambda_3^3 V_{Li}}{V_{L3}Q_{Li}\lambda_{Li}^3} \times \frac{\gamma_{Li} + F_{Li}}{\gamma_{L3} + F_{L3}} \quad (4.19)$$

où F_{Li} est le facteur de Purcell de la cavité L_i et γ_{Li} et le taux de fuite de la cavité L_i . Le taux de fuite γ est très grand devant le facteur de Purcell car il inclut un grand nombre de modes de fuite et donc $\gamma_{Li} + F_{Li} \approx \gamma_{Li}$, de plus les longueurs d'onde des modes étant similaire $\lambda_{L3}^3/\lambda_{Li}^3 \approx 1$ par conséquent l'équation se simplifie et devient :

$$\frac{\beta_{L3}}{\beta_{Li}} = \frac{Q_{L3}V_{Li}}{V_{L3}Q_{Li}} \frac{\gamma_{Li}}{\gamma_{L3}} \quad (4.20)$$

Nous pouvons dès lors calculer les rapports des différents β :

$$\frac{\beta_{L3}}{\beta_{L5}} = 1.52 \pm 0.37 \quad (4.21)$$

$$\frac{\beta_{L3}}{\beta_{L7}} = 2.33 \pm 0.42 \quad (4.22)$$

$$\frac{\beta_{L3}}{\beta_{L11}} = 4.27 \pm 1.50 \quad (4.23)$$

sachant que l'augmentation du volume de la cavité est directement proportionnel au nombre de trous manquants, il est possible de calculer le rapport des volumes ainsi :

$$\frac{V_{L5}}{V_{L3}} = \frac{5}{3} = 1.67 \quad (4.24)$$

$$\frac{V_{L7}}{V_{L3}} = \frac{7}{3} = 2.33 \quad (4.25)$$

$$\frac{V_{L11}}{V_{L3}} = \frac{11}{3} = 3.67 \quad (4.26)$$

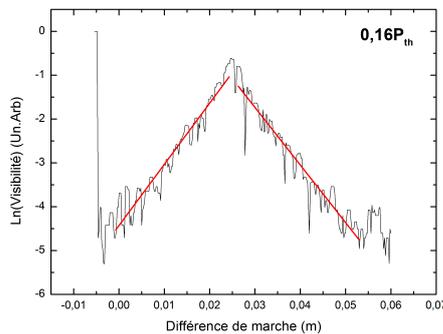
Il est dès lors nécessaire de mesurer les facteurs de qualité des cavités pour compléter ces relations.

Étude du facteur de qualité grâce aux largeurs de raies par FTIR

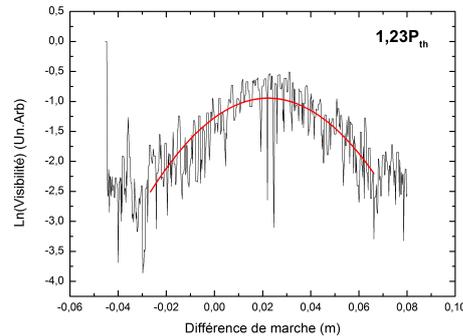
L'acquisition des interférogrammes permet de tracer la visibilité des interférences (correspondant à l'enveloppe des franges d'interférences) dans l'interferomètre de Michelson en fonction de la longueur d'onde. En traçant le logarithme népérien de la visibilité en fonction de la différence de marche, il est alors possible de l'ajuster de manière linéaire ou parabolique. Ces ajustements permettent de revenir à la largeur de raie (voir section 4.2.3).

La figure (4.20) représente le logarithme népérien de la visibilité en fonction de la différence de marche pour une cavité de type L_{3M} pour des puissances de $0.16P_{th}$ et $1.23P_{th}$. Les courbes ont des comportements différents :

- A $0.16P_{th}$ la courbe est de type $f(x)=\alpha|x|$ par conséquent le spectre de l'émission est lorentzien.
- A $1.23P_{th}$ la courbe est de type $f(x)=\alpha x^2$ par conséquent le spectre de l'émission est gaussien.



(a)



(b)

FIGURE 4.20 – *Logarithme népérien de la visibilité en fonction de la différence de marche pour une cavité de type L_{3M} (a) A une puissance de $0.16P_{th}$. La courbe est ajustée par deux droites correspondant à un spectre lorentzien. (b) A une puissance de $1.23P_{th}$. La courbe est ajustée par une parabole correspondant à un spectre gaussien.*

Il est intéressant de déterminer la puissance à laquelle la modification du spectre d'émission a lieu. La figure (4.21) représente l'évolution de la largeur de raie en fonction de la puissance de pompe normalisé par la puissance de seuil. Sur ces graphiques sont représentées en triangle bleu les largeurs de raie pour une émission lorentzienne et en étoile violette les largeurs de raies pour une émission gaussienne. La transition entre les deux types d'émission se situe au seuil. Au delà du seuil la raie se décale spectralement, ce qui implique que la cavité chauffe. L'agitation thermique, en plus du décalage spectral entraîne des fluctuations de la fréquence d'émission, ce qui apparaît dans le spectre mesuré comme un élargissement gaussien, de plus en plus prononcé avec la puissance d'excitation.

Le tableau (4.4) résume les valeurs des largeurs de raie ainsi que les facteurs de qualité estimés (voir section 4.2.3), comme des moyennes sur quatre ou cinq cavités pour le mode oscillant de chaque cavité.

Connaissant le facteur de qualité des cavités il est donc possible de vérifier les équations (4.20) :

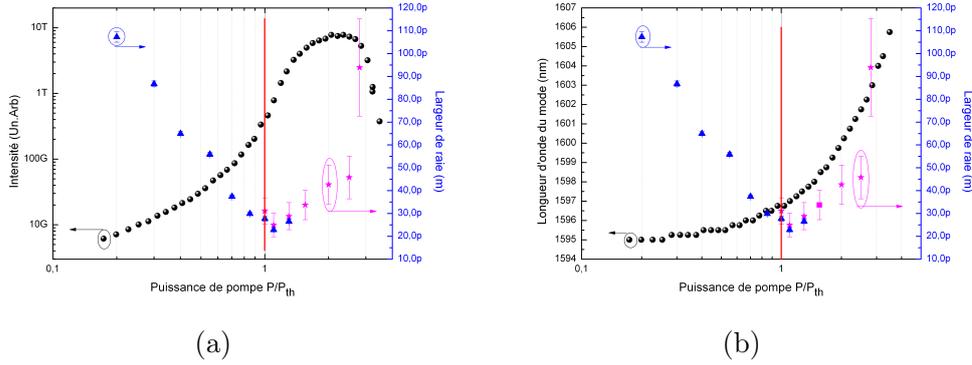


FIGURE 4.21 – (a) Courbe "L-L" Cavité L_{3M} (cercles noirs). (b) Évolution de la longueur d'onde du mode de cavité. En triangles bleus largeur de raie obtenue par ajustement lorentzien. En étoiles violettes largeur de raie obtenue par ajustement gaussien. Le trait rouge repère le seuil. Nous remarquons qu'une fois le seuil passé, le décalage rapide vers le rouge s'accompagne d'un élargissement spectral.

| Modèle de cavité | Longueur d'onde (nm) | Largeur de raie à $0.4P_{th}$ (pm) | Facteur de qualité |
|------------------|----------------------|------------------------------------|--------------------|
| "Noda" | 1526 | 28.7 ± 1 | 53000 ± 1800 |
| L_{3M} | 1595 | 26.7 ± 0.5 | 60000 ± 1300 |
| L_{5M} | 1600 | 27.2 ± 0.7 | 59000 ± 1500 |
| L_{7M} | 1608 | 30.1 ± 0.9 | 53000 ± 1250 |
| L_{11M} | 1612 | 31.2 ± 1 | 52000 ± 1450 |

Tableau 4.4 – Tableau répertoriant le facteur de qualité des cavités à cristal photonique à 300K.

$$\frac{Q_{L3}V_{L5}}{V_{L3}Q_{L5}} = \frac{60000 * 5}{59000 * 3} = 1.69 \pm 0.05 \quad (4.27)$$

$$\frac{Q_{L3}V_{L7}}{V_{L3}Q_{L7}} = \frac{60000 * 7}{53000 * 3} = 2.64 \pm 0.06 \quad (4.28)$$

$$\frac{Q_{L3}V_{L11}}{V_{L3}Q_{L11}} = \frac{60000 * 11}{52000 * 3} = 4.23 \pm 0.06 \quad (4.29)$$

ces résultats sont comparables aux valeurs obtenues pour les rapports des paramètres β (voir équation (4.23)), ceci implique que β est inversement proportionnel au volume de la cavité et dépend essentiellement du facteur de Purcell. Il implique également que le taux de fuite γ_i est le même pour toutes les cavités étudiées indépendamment du nombre de leurs modes.

4.3.2 Étude des cavités en fonction de la température

Avant de faire l'étude en fonction de la température il est intéressant d'utiliser l'étude sur les cavités à 4K pour confirmer nos hypothèses sur l'effet thermique de

l'élargissement spectral.

Étude d'une cavité L_{3M} à 4K et 300K

Les courbes de la figure (4.21) présentent l'évolution de la largeur de raie de la cavité L_{3M} en fonction de la puissance d'excitation à 300K. L'augmentation de la longueur d'onde de résonance ainsi que l'augmentation de la largeur de raie au-delà du seuil est une conséquence de l'échauffement de la cavité (voir section précédente pour plus d'explication).

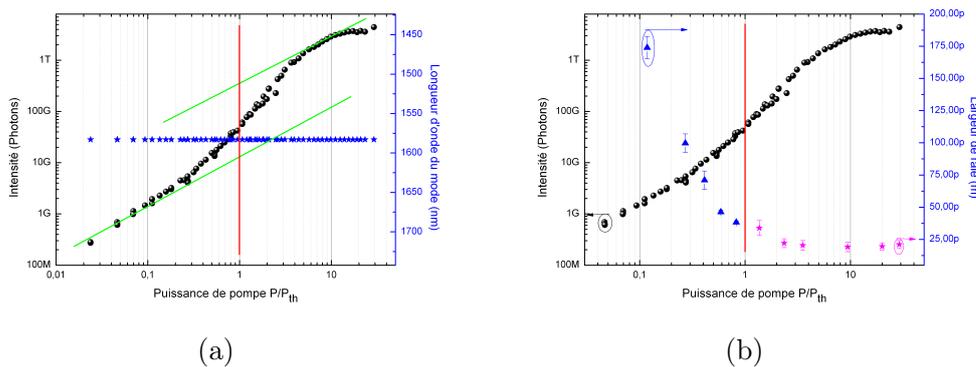


FIGURE 4.22 – (a) En points noirs : Courbe "L-L". Cavité L_{3M} à 4K. Le trait rouge repère le seuil. En étoiles bleues : évolution de la longueur d'onde du mode laser. Quelle que soit la puissance de pompe la longueur d'onde reste constante. (b) En points noirs : Évolution de la longueur d'onde du mode de cavité. En triangle bleu largeur de raie obtenue par ajustement lorentzien. En étoiles violette largeur de raie obtenue par ajustement gaussien. Comme à 300K une modification du profil d'émission a lieu près du seuil.

L'étude de la courbe "L-L" de la cavité L_{3M} (voir figure(4.22) (a)) permet de déterminer la valeur du seuil ainsi que la valeur du paramètre β (voir tableau (4.5)).

| Température (K) | Longueur d'onde (nm) | Puissance de seuil (mW) | β | Largeur de raie (pm) | Facteur de qualité |
|-----------------|----------------------|-------------------------|--------------------------------|----------------------|--------------------|
| 4 | 1583 | 0.085 ± 0.001 | $(6.5 \pm 0.4) \times 10^{-2}$ | 21 ± 1 | 76200 ± 1450 |
| 300 | 1595 | 2.6 ± 0.02 | $(3.5 \pm 0.4) \times 10^{-3}$ | 26.7 ± 0.5 | 60000 ± 1300 |

Tableau 4.5 – Tableau répertoriant les principales caractéristiques de la cavité L_{3M} à 4 et 300K.

- A 4K les principales différences avec la réponse optique à 300K sont :
- Un décalage du mode de la cavité de 12nm vers les courtes longueurs d'onde. Ce décalage correspond à la contraction de la cavité ainsi qu'à une modification de l'indice de l'InP à basse température.
 - Une diminution du seuil d'un facteur 15. A 4K l'intensité intégrée de l'émission des boîtes est 3 fois plus importante qu'à température ambiante. De plus la différence des décalages spectral entre la cavité et la distribution des boîtes permet au mode de cavité de se rapprocher du maximum de la distribution des boîtes. L'analyse du spectre des boîtes sans cavité permet

de constater qu'un décalage de 100 nm sur la distribution entraîne une augmentation de l'intensité émise d'un facteur 4.

- La valeur du paramètre β augmente; à 4K il est d'environ 10^{-1} , soit une augmentation d'un facteur 100, indiquant que le canal d'émission des photons dans d'autres modes a diminué. Comme le nombre de modes n'a pas diminué, ceci signifie que le spectre des boîtes s'est affiné. Ceci laisse supposer que le milieu peut être considéré comme inhomogène.
- On ne voit aucun décalage spectral de la raie en fonction de la puissance de pompe et une largeur de raie qui ne croît plus après le passage du seuil. Ce comportement indique qu'à basse température les effets d'échauffement ne sont pas importants.

L'étude à 4K d'une cavité permet de confirmer le faible impact des effets thermiques sur le mode d'émission de la cavité. De plus une telle cavité à 4K permet de mener des études sur des cavités à très fort β ($\simeq 10^{-1}$).

Étude d'une cavité L_{11M} à 4K et 300K.

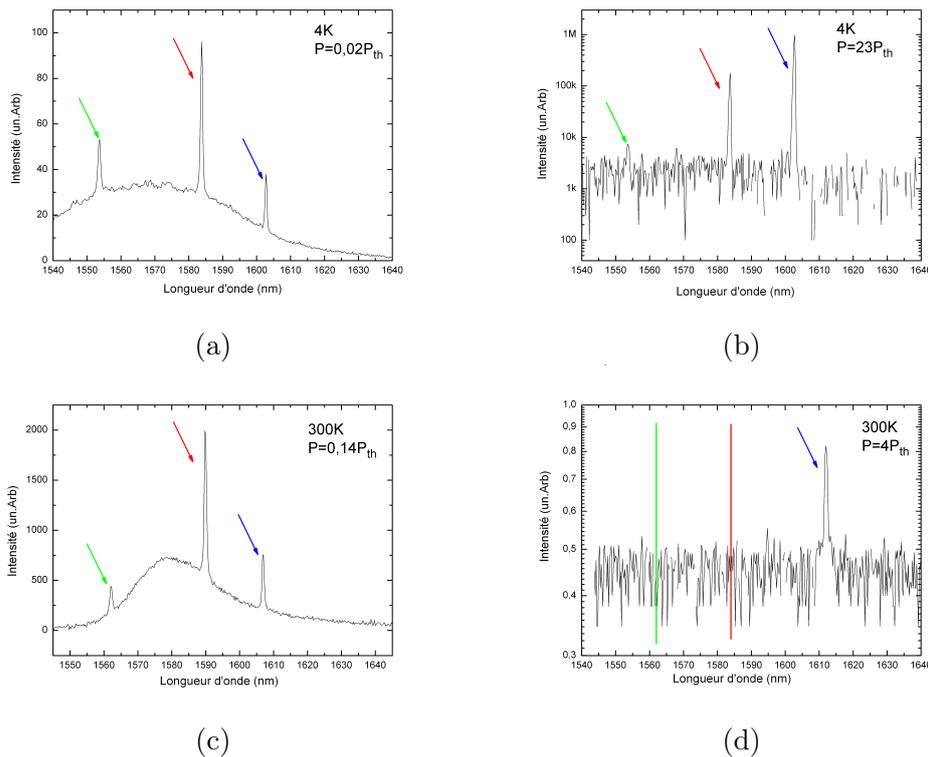


FIGURE 4.23 – Spectres d'une cavité L_{11M} obtenus sous excitation continue à 840nm. (a) à 4K $P=0,02P_{th}$, (b) à 4K $P=23P_{th}$, (c) à 300K $P=0,14P_{th}$, (d) à 300K $P=4P_{th}$. Les flèches (ou trait) vert, rouge et bleu identifient les modes de la cavité.

Les spectres d'une cavité L_{11M} à 4K pour différentes puissances d'excitation sont montrés sur la figure (4.23). On remarque que la cavité de type L_{11M} émet dans tous les modes; quelle que soit la puissance d'excitation, tandis qu'à 300K, après le seuil,

seul le mode laser oscille dans la cavité. Il est donc intéressant d'étudier la courbe "L-L" des deux modes de plus grande longueur d'onde.

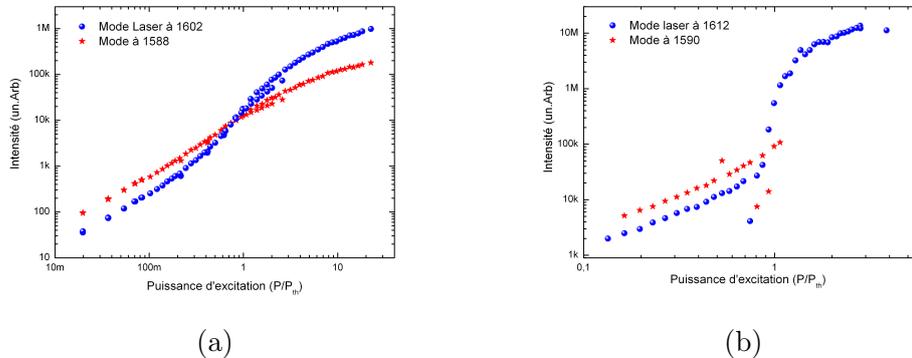


FIGURE 4.24 – Étude des courbes "L-L" de la cavité de type L_{11M} obtenues sous excitation continue à 840nm à deux températures (a) à 4K : points bleus courbe du mode laser (1602nm), étoiles rouges courbe du mode à 1588nm (b) à 300K : points bleus courbe du mode laser, étoiles rouges courbe du mode à 1590nm .

L'étude des courbes "L-L" de la figure (4.24) peut se faire en deux parties en fonction de la température.

- À 4K , les modes à 1602nm et 1588nm peuvent osciller simultanément dans la cavité, le facteur β du mode à 1588nm est même 10 fois plus élevé que celui du mode à 1602nm , sa valeur est de : $\beta = 3.4 \times 10^{-1}$. Par conséquent le milieu à gain se comporte de manière inhomogène car les deux modes sont indépendants.
- À 300K , avant le seuil, tous les modes sont visibles. Par contre une fois le seuil passé, seul le mode laser à 1612nm , qui est le plus proche du maximum de la courbe de gain, oscille dans la cavité. Par conséquent tous les modes sont en compétition pour le gain ce qui est caractéristique d'un milieu à gain homogène.

Nous venons de démontrer à l'aide de la cavité de type L_{11M} , que les boîtes quantiques à 300K se comportent comme un milieu à gain homogène. Cependant à 4K , les boîtes quantiques peuvent être qualifiées de milieu à gain inhomogène. Entre ces deux températures il doit exister une température seuil marquant la transition entre milieu inhomogène et milieu homogène. La variation du facteur β en fonction de la température peut permettre de déterminer cette température seuil.

Étude en fonction de la température.

Il est intéressant d'observer l'évolution du facteur β en fonction de la température et pour différentes tailles de cavité. On observe qu'en augmentant la température le facteur β reste constant jusqu'à 130K et puis il décroît (voir figure (4.25)).

Il faut noter que le spectre d'émission des boîtes individuelles est relativement large et peut couvrir plusieurs modes de la cavité, même à basse température. Par conséquent, le changement abrupt de β à la température seuil est probablement dû à une modification du nombre de boîtes participant à l'émission stimulée par transfert

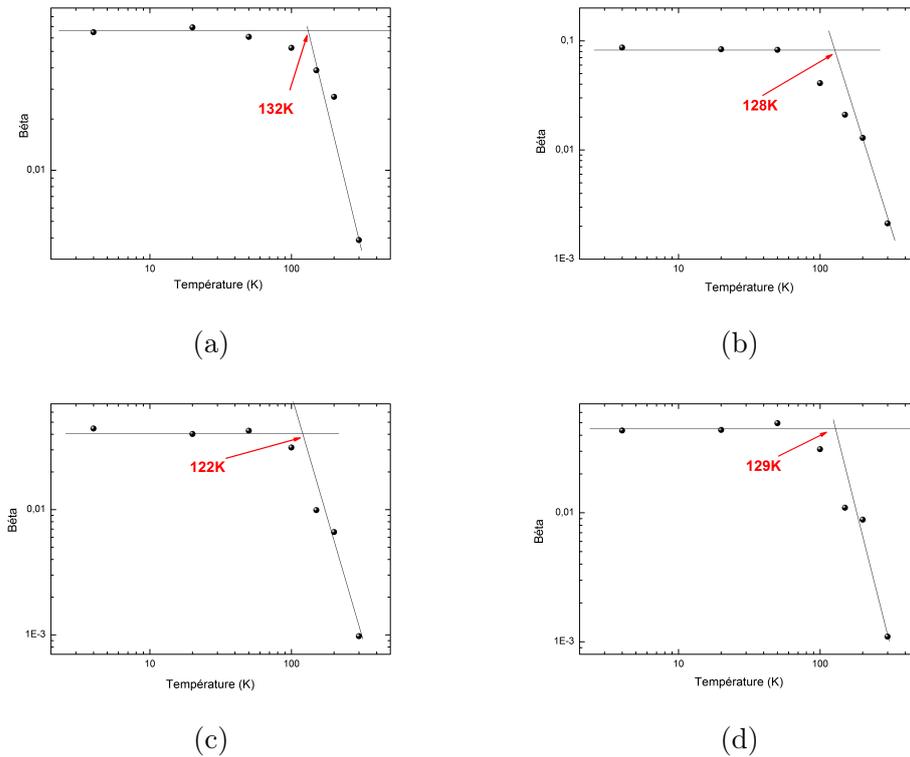


FIGURE 4.25 – Évolution du facteur β du mode fondamental pour chaque cavité en fonction de la température. (a) L_{3M} (b) L_{5M} (c) L_{7M} (d) L_{11M} .

de porteurs, par le mécanisme suivant :

- En dessous de la température seuil, les porteurs une fois piégés dans une boîte y résident jusqu'à ce qu'ils se recombinent. Dans ce cas, au dessus du seuil, chaque mode de la cavité est alimenté par le sous ensemble de boîtes dont le maximum spectral d'émission est près du mode oscillant et qui sont localisés près d'un ventre dans la distribution spatiale de ce mode. Ainsi, le gain est inhomogène et le facteur β relativement élevé car il concerne uniquement le sous-ensemble de boîtes optimal.
- Au dessus de la température seuil, les porteurs piégés dans les boîtes sont thermiquement activés et accèdent aux bandes de conduction et de valence de la couche de mouillage et peuvent migrer vers d'autres boîtes. Ainsi toutes les boîtes communiquent et la courbe de gain devient homogène : dès qu'un mode est au dessus du seuil il draine les porteurs de toutes les boîtes. De plus comme toutes les boîtes participent à l'émission stimulée et pas seulement le sous ensemble optimal, l'émission laser est plus intense ce qui a comme conséquence une diminution importante du facteur β mesuré (10^3).

Afin de mieux comprendre ce mécanisme nous avons présenté en figure (4.26) la dépendance en température du rapport β_{L3}/β_{Li} pour chaque type de cavité ($i=5, 7$ et 11). On remarque que ce rapport est constant et proche de 1 pour toute température en dessous de la température seuil ($\sim 130K$). Ce comportement est dû

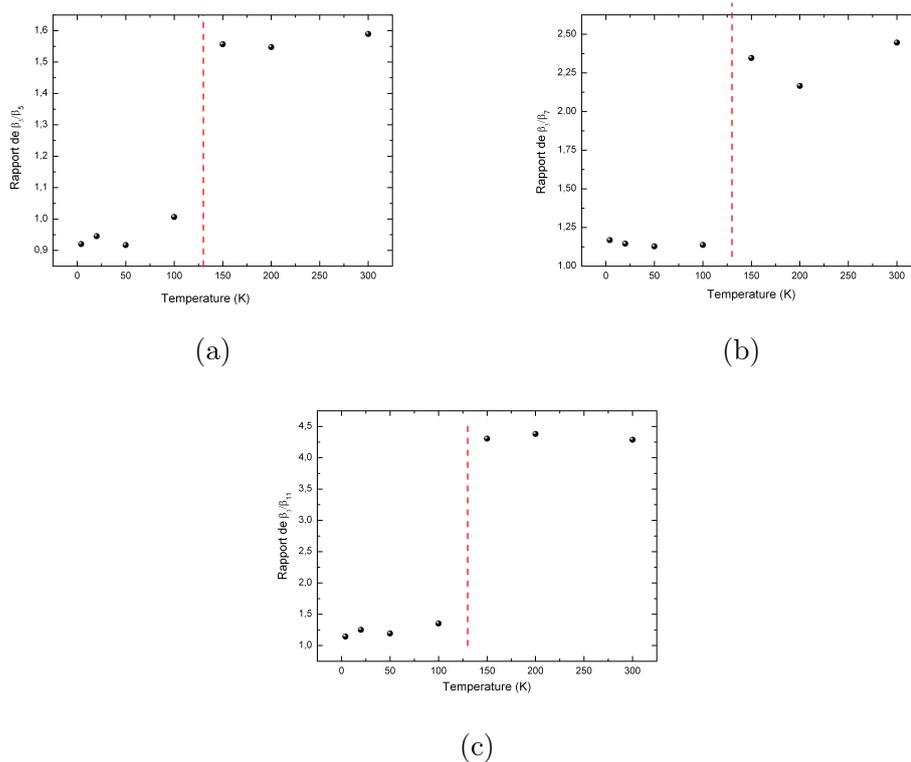


FIGURE 4.26 – Évolution du rapport moyen du facteur β du mode fondamental de la cavité L_{3M} sur celui de la cavité (a) L_{5M} (b) L_{7M} (c) L_{11M} . En pointillé rouge est repéré la température d'activation de chaque cavité.

au fait que lorsque le gain est composé de différents sous-ensembles, chacun avec un spectre large, l'intensité émise est indépendante de la taille de la cavité. En effet, en dessous du seuil, l'émission dans le mode est exaltée par le facteur de Purcell qui est inversement proportionnel au volume V_{Li} de la cavité; mais le nombre de boîtes présentes dans la cavité et qui émettent spontanément dans le mode est lui proportionnel à V_{Li} . Au dessus du seuil, comme la courbe de gain est inhomogène l'émission des boîtes se répartit sur les N modes de la cavité, chaque boîte alimentant un seul mode. Par conséquent, le nombre de boîte alimentant le mode, est égale au nombre total de boîtes dans la cavité (proportionnel au volume V_{Li} de la cavité) divisé par le nombre de modes, lui aussi proportionnel à V_{Li} .

Au dessus de la température seuil (~ 130 K) le rapport β_{L3}/β_{Li} change brusquement pour prendre une valeur égale au rapport des volumes V_{Li}/V_{L3} . Comme toutes les boîtes de la cavité participent à l'émission aussi bien en-dessous et au-dessus du seuil, ce rapport reflète essentiellement le rapport des facteurs de Purcell, comme cela a été discuté en section 4.3.1.

L'intégralité de cette étude a permis de démontrer qu'à basse température les boîtes quantiques se comportaient comme un milieu à gain inhomogène alors qu'à haute température, elles se comportaient comme un milieu à gain homogène. L'origine de ce comportement homogène pourrait provenir d'un couplage entre les boîtes quantiques par la couche de mouillage, au delà d'une température seuil de

130K dans nos expériences.

4.4 Étude de la statistique de photons des nanolasers

D'après [158] au seuil laser le nombre de photons par durée de vie dans la cavité est de $(1/\sqrt{\beta})$. Par conséquent dans ces cavités à fort β le nombre de photons intracavité au seuil est faible (environ 30 photons pour nos cavités à température ambiante). Il est donc intéressant de s'intéresser au bruit dans ces structure et notamment d'étudier la statistique d'émission.

4.4.1 Rappels théoriques

Définitions : états chaotiques et états cohérents

Les états classiques de la lumière en particulier l'état thermique ou chaotique et l'état cohérent sont particulièrement utiles pour décrire le rayonnement issu d'un laser.

Dans le cas d'une source thermique, c'est à dire un corps noir filtré spectralement, le champ peut être décrit par une variable aléatoire gaussienne. Dans le cas d'un flux stationnaire, polarisé avec des fluctuations et gaussiennes la fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle^2} \quad (4.30)$$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (4.31)$$

avec :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle} \quad (4.32)$$

où $E(t)$ est le champ électrique, $I(t)$ est l'intensité lumineuse et $g^{(1)}(\tau)$ est la fonction de corrélation d'ordre 1 du champ électrique. On notera que la transformée de Fourier de cette fonction de corrélation d'ordre 1 donne la densité spectrale de l'onde lumineuse. On remarque d'autre part qu'à retard nul, la fonction d'autocorrélation de second ordre $g^{(2)}(0)$ prend la valeur de 2. On parle de groupement de photons (ou "bunching"). De façon plus générale pour un état chaotique, on peut montrer que toutes les fonctions d'autocorrélation d'ordre $n \geq 2$ à retard nul vérifient :

$$g^{(n)}(0) = \frac{\langle E^*(t)^n E(t)^n \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle^n} = n! \quad (4.33)$$

On définit un "état cohérent" (ou état "quasi-classique", ou encore de "Glauber") du mode unique d'un champ comme l'état propre (normé à 1) de l'opérateur d'annihilation des photons dans le mode l :

$$\hat{a}_l |\alpha\rangle = \alpha |\alpha\rangle \quad (4.34)$$

où α est un nombre complexe. En se servant des états de Fock comme base de l'espace de Hilbert, un tel état cohérent peut se décomposer selon [159] :

$$|\alpha\rangle = e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n_l} \frac{\alpha_l^{n_l}}{\sqrt{n_l!}} |n_l\rangle \quad (4.35)$$

où $|n_l\rangle$ est l'état à n_l photons dans le mode l . Cette équation montre en particulier que le nombre de photons d'un état cohérent suit une distribution de Poisson de moyenne $|\alpha|^2$ et d'écart-type $|\alpha|$. Les photons sont répartis complètement aléatoirement dans le flux et les nombres de photons dans deux intervalles de temps qui ne se recouvrent pas, sont des variables aléatoires indépendantes. Dès lors, $I(t)$ et $I(t+\tau)$ sont indépendants et l'on a : $\langle I(t)I(t+\tau) \rangle = \langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle = \langle I(t) \rangle^2$. Il en résulte que :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} = 1 \quad (4.36)$$

De façon plus générale, on peut montrer que toutes les fonctions d'autocorrélation d'ordre $n \geq 2$ prennent aussi la valeur de 1 pour un état cohérent.

Fonctions d'autocorrélation d'ordres supérieurs

Dans le cadre de ce travail de thèse des études ont été faites pour mesurer les fonctions d'autocorrélation de nos sources jusqu'à l'ordre 4. Ces fonctions d'auto-corrélation peuvent être exprimées comme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle^2} \quad (4.37)$$

$$g^{(3)}(\tau_1, \tau_2) = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau_1)E^*(t+\tau_2)E(t+\tau_2)E(t+\tau_1)E(t) \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle^3} \quad (4.38)$$

$$g^{(4)}(\tau_1, \tau_2, \tau_3) = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau_1)E^*(t+\tau_2)E^*(t+\tau_3)E(t+\tau_3)E(t+\tau_2)E(t+\tau_1)E(t) \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle^4} \quad (4.39)$$

Où $\langle \rangle$ indique une moyenne temporelle et τ le délai. De plus il est important de rappeler que :

- $g^{(n)}(0) = n!$ pour une source de lumière chaotique
- $g^{(n)}(0) = 1$ pour une source de lumière cohérente

Chaque ordre de corrélation nous renseigne sur le moment statistique correspondant des fluctuations d'intensité :

- La valeur de $g^{(2)}$ nous informe sur la variance de la distribution de ces fluctuations.
- La valeur de $g^{(3)}$ nous informe sur le coefficient de dissymétrie (En termes généraux, l'asymétrie d'une distribution est positive si la queue de droite (à valeurs hautes) est plus longue ou grosse, et négative si la queue de gauche (à valeurs basses) est plus longue ou grosse).

- La valeur de $g^{(4)}$ nous informe sur le coefficient d'aplatissement (Elle mesure, hors effet de dispersion (donnée par l'écart type), la disposition des masses de probabilité autour de leur centre, tel que donné par l'espérance mathématique, c'est-à-dire, d'une certaine façon, leur regroupement proche ou loin du centre de probabilité).

On peut aussi définir la fonction de corrélation normalisée $h^{(n)}$ qui vaut 1 pour un état chaotique et 0 pour un état cohérent et ceux quelque soit n . Elle est définis par :

$$h^{(n)} = \frac{g^{(n)}(0) - 1}{n! - 1} \quad (4.40)$$

Ainsi $h^{(n)}$ reflète de la fraction de $g^{(n)}(0)$ due à de la lumière chaotique, et mesure de combien le signal s'écarte d'une statistique poissonnienne, i.e. d'un état cohérent.

Dans un laser conventionnel, $h^{(n)}$ vaut 1 en régime d'émission spontanée chaotique, pour s'annuler au dessus du seuil lorsque la source produit un état cohérent.

4.4.2 Mesures expérimentales

Afin d'effectuer des mesures d'autocorrélation d'ordre supérieur, il est indispensable d'avoir autant de détecteurs que l'ordre n souhaité. Afin de pouvoir faire les mesures jusqu'à l'ordre 4 nous avons collaboré avec V.B.Verma, B.Baek, S.W.Nam et M.J.Stevens du laboratoire "National institute of standards and technology", à Boulder aux Etats-Unis où je me suis déplacé pour effectuer ces mesures.

Le dispositif expérimental est similaire à celui dont nous disposons au sein du laboratoire. Le laser d'excitation est un Ti-Sa ($\lambda=810\text{nm}$, $\delta t=10\text{ps}$ et la cadence est de 80MHz). La lumière une fois filtrée est couplée dans une fibre optique SMF-28 dirigée vers les SNSPDs (Superconducting Nanowire Single Photon Detector). Ces détecteurs fonctionnent comme les SSPDs. La particularité de ce détecteur est d'avoir 4 sillons de détection au bout de la fibre. Par conséquent on dispose de quatre détecteurs sans avoir à diviser le signal en amont. Pour plus de détails sur le fonctionnement de ces détecteurs voir [160]. Le signal de chaque SNSPD est ensuite envoyé sur une carte d'acquisition qui permet d'enregistrer le temps d'arrivée des photons. Ensuite par un programme de calcul numérique, il est possible de calculer les différents $g^{(n)}$.

Les mesures sont faites sur une cavité à double hétérostructure à une température de 300K . La figure (4.27) représente la reconstruction de la fonction $g^{(3)}(\tau_1, \tau_2)$ pour une puissance de $P = 2P_{th}$. Sur cette figure il est possible de déterminer la valeur de $g^{(3)}(0, 0)$ par la hauteur de la barre centrale (en blanc sur la figure) ; ici la valeur est de 1.4. Cette première mesure à une puissance de deux fois le seuil n'est pas égale à 1, par conséquent l'état cohérent n'est pas encore totalement établi. Il est donc intéressant d'étudier l'évolution des différents $g^{(n)}(0)$ en fonction de la puissance d'excitation.

Dans nos expériences, présentées à la figure (4.28), on remarque qu'à la différence des lasers traditionnels, la décroissance des $h^{(n)}$ [161] au passage du seuil est loin d'être abrupte mais très progressive : pour des puissances d'excitation quatre fois supérieurs au seuil P_{th} , les valeurs de $h^{(n)}$ ne s'annulent toujours pas mais prennent comme valeurs :

- $h^{(2)} = 0.05 \pm 0.04$

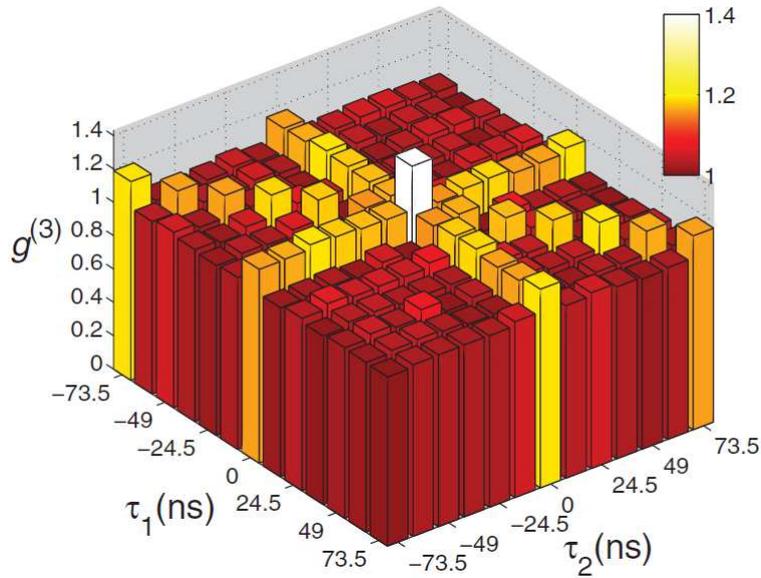


FIGURE 4.27 – Représentation de la fonction d'autocorrélation d'ordre 3 : $g^{(3)}(\tau_1, \tau_2)$ à une puissance $P = 2P_{th}$. La barre blanche centrale haute correspond à $g^{(3)}(0, 0)$. Les trois lignes jaunes correspondant à $\tau_1 = \tau_2$, $\tau_1 = 0$ et $\tau_2 = 0$ sont des mesures de $g^{(2)}(\tau)$.

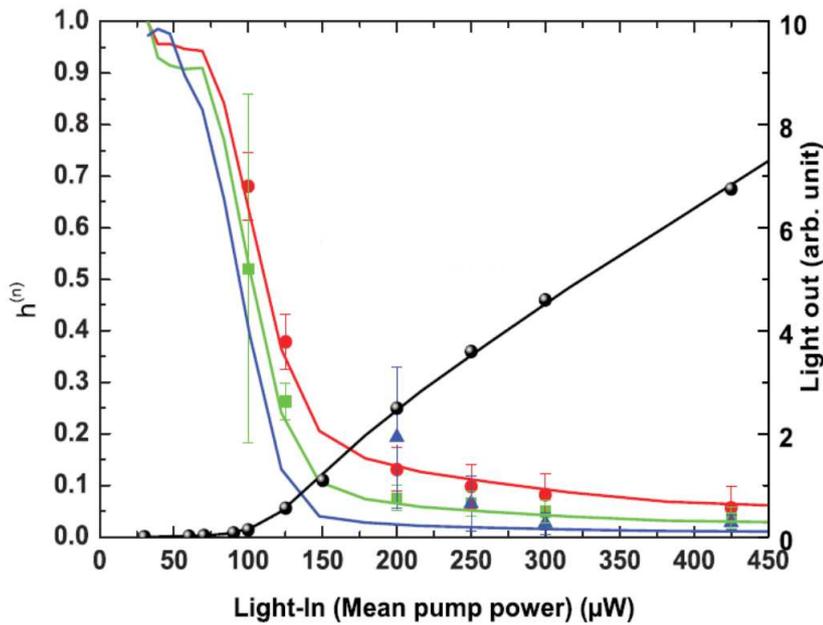


FIGURE 4.28 – Évolution des différents $h^{(n)}$ en fonction de la puissance d'excitation sur une cavité à double hétérostructure sous excitation impulsionnelle. Points rouges : $h^{(2)}$, carrés verts : $h^{(3)}$ et triangles bleus : $h^{(4)}$. Les lignes correspondantes sont des simulations sans paramètres ajustables. En point noir est représentée la courbe "L-L" de la cavité en échelle linéaire, le seuil est de $P_{th} = 100\mu W$.

- $h^{(3)} = 0.04 \pm 0.02$
- $h^{(4)} = 0.029 \pm 0.015$

Cette déviation de la statistique poissonnienne bien au dessus du seuil se comprend de part la nature discrète du milieu à gain (faible nombre de dipôles) et du champ dans ces lasers de faible dimensions et fort β . A la différence des lasers conventionnels macroscopiques, le fonctionnement de ces lasers ne peut plus être décrit à partir de modèles classiques basés sur la thermodynamique et les moyennes de très grands nombres. La nature discrète des particules mis en jeu, photons et dipôles doit être pris en compte. Comme énoncé à la section précédente le nombre de photons intracavité au seuil vaut $\sqrt{1/\beta}$, soit de l'ordre de la dizaine dans nos expériences. Dès lors, toute fluctuation, aussi petite soit-elle, de ce nombre introduit une variation non-négligeable du taux d'émission stimulée, induisant une statistique chaotique même bien au dessus du seuil. Conséquence du caractère discret des particules et de leur faible nombre, le signal délivré par le laser est marqué par des fluctuations importantes de ces petits nombres et donc un fort bruit de partition même très au dessus du seuil. Une simulation basée sur la discrétisation des équations laser sans aucun paramètre ajustable a permis de rendre compte de ces résultats.

4.5 Conclusion

L'utilisation des nanolasers comme outil pour sonder la nature du mode d'émission des boîtes quantiques a permis d'établir une température seuil de 130K dans nos expériences. En dessous de cette température les ensembles de boîtes quantiques peuvent être considérés comme un milieu à gain inhomogène dont l'intensité totale est la somme des contributions individuelles liées à chaque boîte. Au dessus de cette température, la nature de l'émission devient homogène les boîtes ne peuvent plus être considérées indépendantes.

La démonstration de principe des nanolasers est maintenant bien acquise et la démarche vers la compréhension de leur physique particulière commence à se dessiner. La singularité de cette nouvelle physique qui gouverne leur fonctionnement, a été illustrée avec la mesure des propriétés de cohérence du signal délivré. D'autres domaines essentiels doivent être élucidés (dynamique, bruit...). Aujourd'hui peu d'études explorent le fonctionnement de ces lasers à faible nombre de dipôles et de photons. Il est intéressant d'évoquer les travaux actuels de notre équipe sur ce système. Ainsi, la nature discrète des populations d'émetteurs et de photons et leurs interactions évoquent des analogies avec les systèmes de type prédateur-proie en régime de faibles populations, largement étudiés en écologie, épidémiologie ... Cette analogie ouvre tout un nouveau pan de physique encore à explorer et exploiter.

Chapitre 5

Les boîtes quantiques en cavités comme sources d'états quantiques.

Dans le chapitre 3 nous avons mesuré une durée de vie de 2ns et un temps de cohérence de 30ps pour l'exciton. Afin d'obtenir une source efficace de photons uniques à $1.55\mu\text{m}$, il est nécessaire d'accélérer l'émission afin que la durée de vie se rapproche du temps de déphasage pur (qui lui peut être augmenté grâce à un pompage quasi-résonnant). Pour cela il faut introduire un émetteur dans une cavité. D'autre part, l'optimisation de la collection des photons grâce à un dessin de cavité adapté est nécessaire. Enfin, l'accélération de l'émission spontanée est un effet résonnant, nécessitant un accord spatial et spectral entre le dipôle émetteur et le champ intracavité. Or, le mode de croissance actuel, ne permet pas de contrôler le lieu de nucléation d'une boîte quantique ni sa longueur d'onde. Pour cette raison, il est intéressant d'exploiter la possibilité de cavités à spectre large, dont le facteur de Purcell est relativement insensible à la position et au spectre de l'émetteur. Dans cette perspective, une approche consiste à recourir à des cavités de volume sub-longueur d'onde et faible facteur de qualité, ce qui est le cas des cavités plasmoniques. Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord le dessin de cavité que nous avons retenu. Nous confirmerons ensuite expérimentalement que ces cavités induisent un effet Purcell sur une large plage spectrale.

5.1 Cavités plasmoniques contre cavités à cristal photonique

De façon générale, on peut distinguer à l'état solide deux types de cavités : les cavités "diélectriques" et les cavités "plasmoniques".

5.1.1 Atteindre un confinement à large spectre

Les cavités usuellement employées à l'état solide, sont des cavités diélectriques, utilisant un confinement hybride (réflexion interne totale et interférences). Les amplitudes des facteurs Q/V dans ces cavités peuvent atteindre 10^6 , notamment dans les cavités à cristaux photoniques sur membranes. Cependant de tels ratios résultent pour partie du fort facteur de qualité de ces cavités, ce qui limite la plage spectrale où le facteur de Purcell est grand. Si les facteurs de Purcell attendus sont

de plusieurs centaines, les facteurs d'accélération mesurés ne sont que de quelques unités voire la dizaine, en grande partie à cause de la difficulté d'assurer l'accord spectral entre le dipôle et le champ. Pour contourner cette difficulté, une solution consiste à recourir à des cavités de plus faibles facteurs de qualité. Pour conserver des amplitudes suffisantes d'effet Purcell, il convient alors d'atteindre des volumes très faibles. Ceci est rendu possible grâce au recours à des cavités plasmoniques.

5.1.2 Dessin de la cavité plasmonique

La cavité plasmonique choisie pour cette étude consiste en la métallisation avec de l'or d'un nanopilier de semi-conducteur. Une fine couche de nitrure (5nm de Si_3N_4) est placée entre le semi-conducteur et l'or, dans l'objectif de limiter les éventuelles recombinaisons non-radiatives à l'interface semiconducteur-métal, et pour composer une couche d'indice optique intermédiaire. La figure (5.1) représente un schéma de la cavité utilisée sur laquelle sont présentés les paramètres géométriques du résonateur :

- r : le rayon de la cavité plasmonique
- h_1 la hauteur entre le fond de la cavité et le plan de boîtes quantiques
- h_2 la hauteur entre la surface d'air et le plan de boîtes quantiques

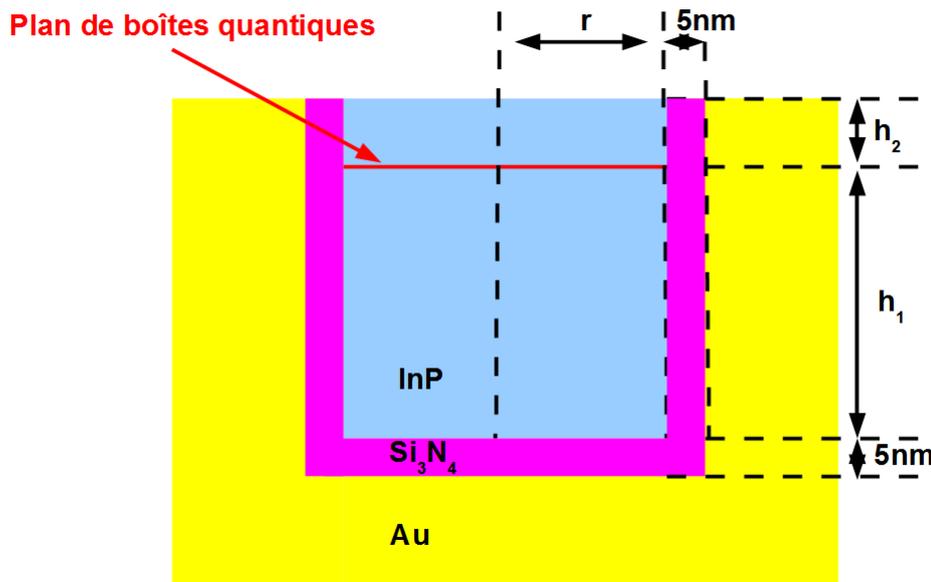


FIGURE 5.1 – Section de la cavité plasmonique de type micropilier métallique. Les indices optiques utilisés sont : $n_{Si_3N_4} = 1.95$, $n_{InP} = 3.17$ et l'indice de l'Au est dépendant de la longueur d'onde ; les indices pris sont ceux répertoriés dans Palik [166].

Afin d'optimiser le taux de collection et l'amplitude de l'effet Purcell, Ph. Lalanne et J.P. Hugonin ont proposé un modèle [95] permettant d'extraire les paramètres géométriques de la cavité.

Les simulations ont été faites sur les deux fenêtres des télécommunications. C'est à dire à 1.3 et $1.55\mu m$.

De telles cavités se caractérisent alors par :

- Une largeur spectrale de $80nm$

| Longueur d'onde visée | Rayon de la cavité | Hauteur h_1 | Hauteur h_2 |
|-----------------------|--------------------|---------------|---------------|
| 1300 nm | 140 nm | 100 nm | 14 nm |
| 1500 nm | 180 nm | 115 nm | 15 nm |

Tableau 5.1 – Paramètres géométriques optimaux pour obtenir un facteur de Purcell de 13 et une extraction de 70% (avec un objectif d'ouverture numérique de 0.4).

- Une extraction $\simeq 70\%$
- Un facteur de Purcell de 13
- un volume modal $\simeq 0.07\left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$

Au vu de la largeur spectrale de la cavité l'accord spectral entre la boîte et la cavité sera une chose aisée à réaliser. L'accord spatial est également facile à obtenir. En effet, d'après la figure(5.2), le champs électromagnétique du mode de la cavité s'étend sur tout le plan de la cavité. Ainsi dès que toute boîte se trouvant dans la cavité, elle se couple automatiquement au mode, assurant ainsi la condition de l'accord spatial.

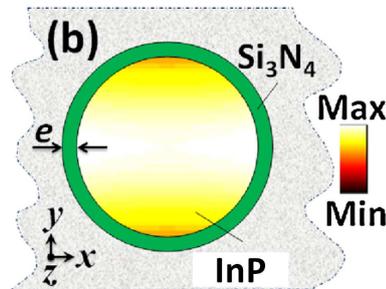


FIGURE 5.2 – Profil de la composante $|E_x|^2$ du champ électromagnétique du mode fondamentale TE_{11} calculé pour la cavité optimale.

Il est donc intéressant de comparer alors les deux types de cavités.

5.1.3 Comparaison entre les deux types de cavités : quel défi à relever ?

| Type de cavité | Largeur spectrale | Extraction | Facteur de Purcell | Accord spatial |
|----------------|-------------------|----------------|--------------------|----------------|
| H_1 | $\simeq 2$ nm | $\simeq 0.4\%$ | $\simeq 10$ | difficile |
| Plasmonique | $\simeq 80$ nm | $\simeq 70\%$ | $\simeq 10$ | Toujours |

Tableau 5.2 – Comparaison des principales caractéristiques des deux cavités : H_1 et plasmonique.

La cavité plasmonique se présente donc comme un choix intéressant (voir tableau (5.2)) car elle permet d'assurer à la fois l'accord spatial et spectral sur une large plage de longueurs d'onde. Les problèmes liés à cette cavité sont d'ordre technologique et notamment la maîtrise de la hauteur $h_1 + h_2$ de gravure.

5.1.4 Fabrication

Les différentes étapes de fabrication sont présentés sur la figure (5.3).

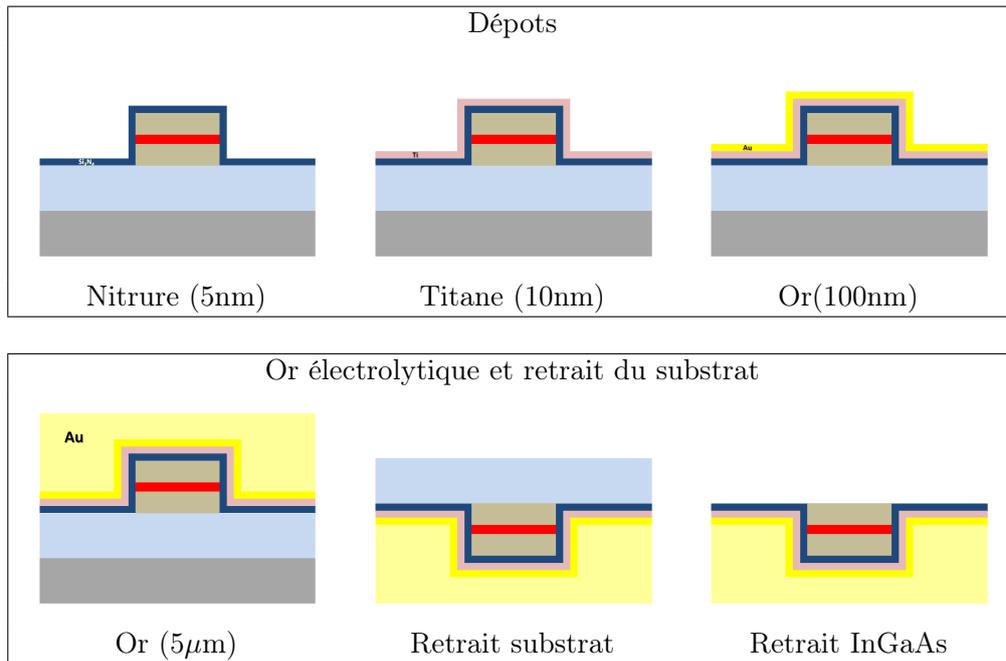


FIGURE 5.3 – Schéma explicatif des différentes étapes de la fabrication des cavités plasmoniques.

La première étape de fabrication est la réalisation de mésas suivant ce procédé développé pour la gravure de piliers. Une différence est l'insertion d'une couche sacrificielle d'InGaAs. Une fois le méso obtenu les étapes technologiques sont : (voir figure 5.3

- Dépôt de 5nm de nitrure (Si_3N_4) sur l'échantillon
- Dépôt d'une couche d'accroche de 10nm de titane (Ti)
- Dépôt de 100nm d'or (Au)
- Dépôt électrolytique de $\simeq 5\mu m$ d'or
- Retrait mécanique puis chimique du substrat initial d'InP
- Retrait chimique de la couche d'InGaAs et d'une partie de la couche d'InP épitaxiée

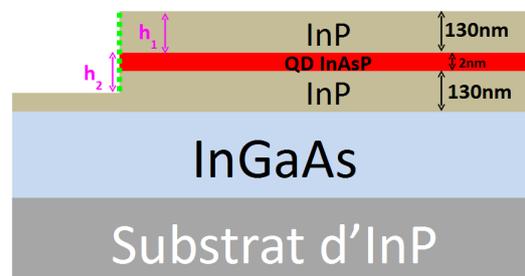


FIGURE 5.4 – Schéma de l'échantillon massif en sortie du bâti et profondeur de gravure influant sur la cavité plasmonique.

Une des difficultés dans ce procédé est le contrôle des valeurs de h_1 et h_2 .

Si h_1 est fixé lors de la croissance (voir figure (5.4)), la valeur de h_2 dépend d'un contrôle très précis de la profondeur de gravure, très difficile à assurer.

5.1.5 Création du premier échantillon

La vitesse de gravure du semiconducteur est très rapide. Lors des premiers essais, la hauteur du pilier gravé était de 600 nm (contre 150nm visé environ).

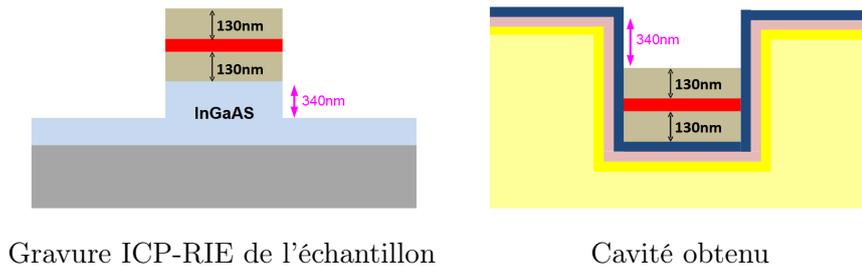


FIGURE 5.5 – Schéma expliquant la première gravure ICP-RIE faite ainsi que la cavité qui en résulte. Il est à noter la présence d'un bourrelet d'or de 340nm de hauteur, au dessus de la cavité.

Cette gravure est responsable de la création d'un bourrelet d'or d'une hauteur de 300nm au dessus de la cavité (voir figure (5.5)) et d'une épaisseur h_2 de 130nm (contre 10nm visé). Afin d'anticiper la réponse optique d'une telle structure, des simulations par FDTD ont été menées pour déterminer notamment la position spectrale des résonances en fonction du rayon r du pilier.

La cavité simulée par FDTD est celle présentée à la figure (5.5). Lors des simulations tous les paramètres sont maintenus fixes sauf le rayon qui est la seule variable. Sur les simulations, un dipôle unique est placé au centre du plan de boîtes quantiques (qui correspond au centre de la cavité dans ce cas) émettant à 1300nm avec une largeur spectrale de 400nm. Une autre série de simulations a été effectuée, en conservant les mêmes paramètres que ceux de la cavité mais en remplaçant l'or par de l'air. Ainsi la normalisation des courbes obtenues sur les cavités par les courbes obtenues sur pilier dans l'air permet de s'affranchir de la forme de l'émission du dipôle. Les résultats des simulations présentés à la figure (5.6) permettent d'identifier des résonances accessibles expérimentalement pour des piliers de rayon de 400, 500, 750 et 1000nm (voir les spectres simulés sur la figure (5.7)).

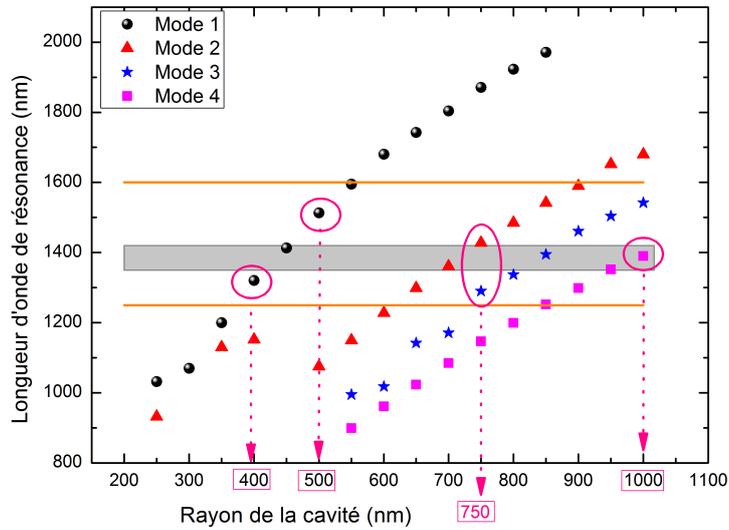


FIGURE 5.6 – Longueur d'onde de résonance des cavités simulées en fonction du rayon de la cavité. Les cavités sont multimodes, les 4 modes visibles sont représentés. Traits horizontaux oranges : limite spectrale de la caméra InGaAs. Rectangle gris : zone d'absorption de l'atmosphère. Cercles roses : modes sélectionnés dans nos mesures.

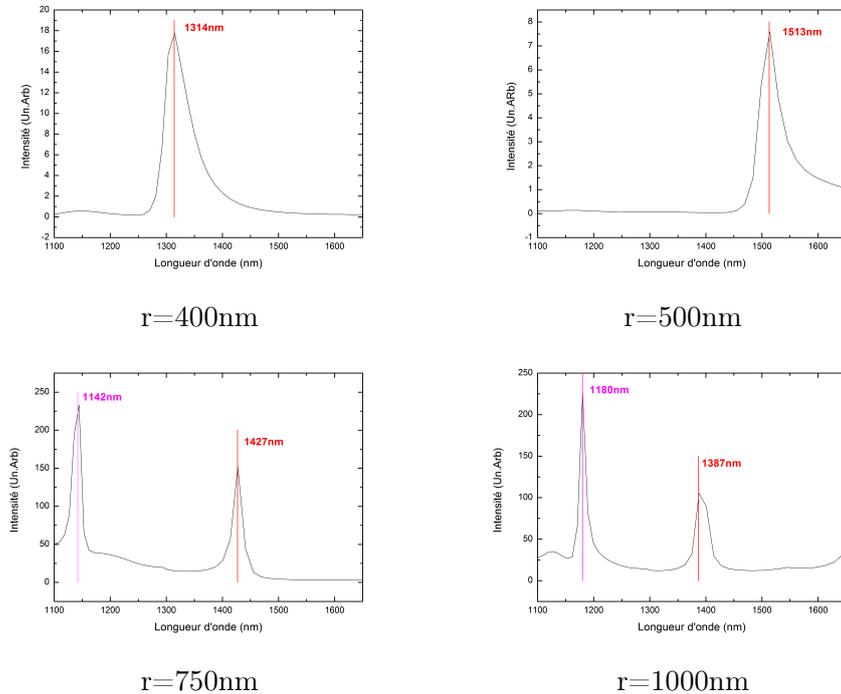


FIGURE 5.7 – Spectres simulés des 4 cavités plasmoniques résonantes dans la plage spectrale de sensibilité du dispositif de mesure et hors de la zone d'absorption de l'atmosphère.

5.2 Caractérisation spectrale des cavités

Il est important de noter que pour la suite de ce manuscrit, la cavité étudiée s'avère avoir des paramètres bien différents que celle de la cavité optimale, ainsi on s'attend à obtenir des valeurs d'extraction et de Purcell inférieur à ceux décrit pour la cavité idéale.

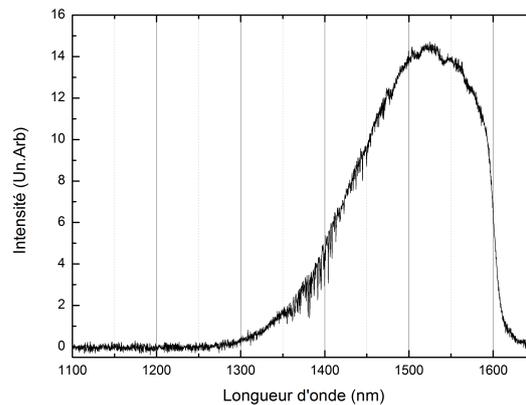


FIGURE 5.8 – Spectre de μ PL de l'échantillon InP977 (identique à l'échantillon d'étude du chapitre 3 mais avec une couche sacrificielle d'InGaAs) à 300K sous excitation continue. Il a été choisi pour la création des premières cavités plasmoniques.

Les cavités plasmoniques ont été réalisées sur l'échantillon InP977. Cet échantillon a une distribution de boîtes centrée à $1.53\mu\text{m}$ avec des boîtes qui peuvent émettre jusqu'à $1.25\mu\text{m}$ (Le spectre de l'échantillon est présenté à la figure (5.8)).

Le procédé technologique de création des cavités est celui expliqué à la section précédente. Les rayons des cavités ont été estimés à partir de clichés sur microscope électronique à balayage. Les clichés de la figure (5.9) permettent d'observer clairement une collerette métallique au dessus des cavités. Il s'agit du bourrelet d'or obtenu par le procédé de fabrication. Afin de connaître précisément la hauteur de ce bourrelet, des mesures AFM (Microscope à Force Atomique) ont été faites. Ainsi la hauteur mesurée est de $340 \pm 5\text{nm}$ (ce résultat est la moyenne effectuée sur une douzaine de collerettes).

5.2.1 Étude spectrale des piliers

L'étude des spectres et résonance de ces cavités a été faite sur le banc de microphotoluminescence en utilisant comme laser d'excitation le Nd :Yag continu et doublé à $\lambda=532\text{nm}$.

L'étude faite sur des mesas sans métallisation à 300K a permis de mettre en évidence le comportement "lampe blanche" des boîtes. En effet l'étude du spectre de μ PL d'un méso de rayon fixe en fonction de la puissance de pompe permet d'observer, à partir d'une certaine puissance d'excitation, un spectre quasi continu entre 1.2 et $1.6\mu\text{m}$. Les spectres de la figures (5.10) illustrent ce comportement. L'explication de ce phénomène est assez simple d'après [123] : lorsque la puissance d'excitation augmente, les boîtes quantiques sont portées dans des états excités puis

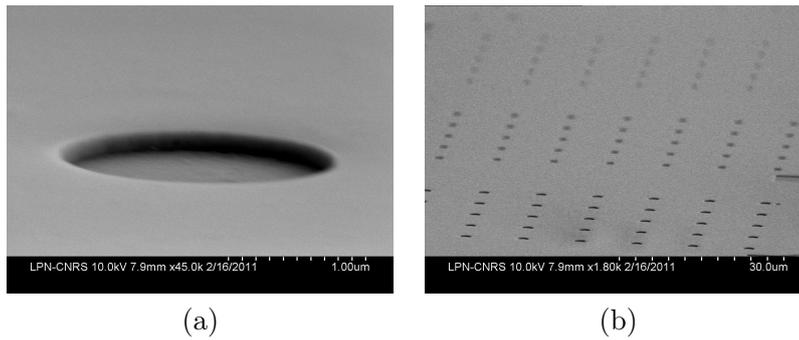


FIGURE 5.9 – Photos MEB (a) Cavité plasmonique de rayon $r=1000\text{nm}$. Nous remarquons la présence d'un bourrelet au dessus du semiconducteur. (b) Champs de trous en or de rayon variable.

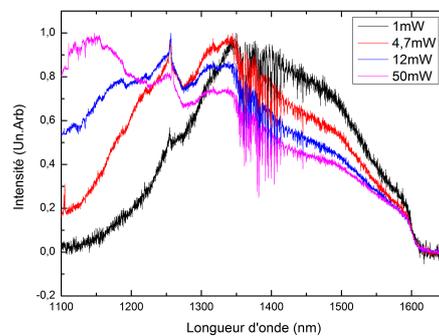


FIGURE 5.10 – Évolution du spectre d'un nanopilier de 500nm de rayon en fonction de la puissance d'excitation continu à 532nm . Il est à remarqué qu'à forte puissance de pompe ($P > 12\text{mW}$) le spectre du pilier se comporte comme une lampe "blanche".

se desexcitent en émettant un photon de plus grande énergie que celui du niveau fondamental. Par conséquent la courbe s'étend vers les plus courtes longueurs d'onde. Ce phénomène permet, en sélectionnant la puissance excitatrice, d'obtenir un spectre de type "lampe blanche" pour tous les piliers jusqu'à des rayons de $2\mu\text{m}$.

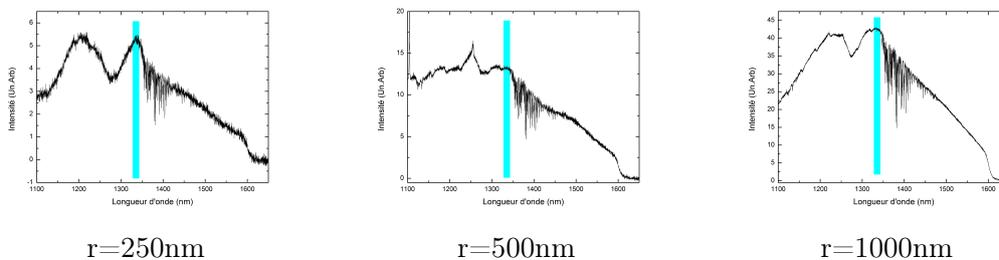


FIGURE 5.11 – Spectres expérimentaux obtenus sur des piliers sans or pour des rayons variables à une puissance de 12mW . Il est repéré en bleu le maximum de la distribution des états excités.

Avant de démarrer l'étude sur les nanocavités plasmoniques il est intéressant de vérifier que les piliers dans l'air ne comportent pas de modes discrets. Ceci permettant d'éviter d'attribuer une résonance à une cavité plasmonique si elle n'est pas liée directement à l'ajout du métal. Les spectres de la figure (5.11) ont été obtenus avec une puissance de 12mW. Ces spectres montrent que les piliers ne sont pas le siège de modes optiques distincts, avec cependant une augmentation relative de l'intensité émise vers 1321nm (zone bleue sur les graphiques). Ce "pic" d'intensité, qui n'apparaît qu'à forte puissance d'excitation (voir figure (5.10)) se situe à 210nm du maximum de la distribution des boîtes, il est probable qu'il s'agisse du maximum de la distribution d'états excités, et en sera tenu compte lors des études sur les cavités.

5.2.2 Étude spectrale des cavités plasmoniques

Étude spectrale

Les spectres obtenus sur les cavités sont présentés à la figure (5.12). Sur chaque spectre est repéré la zone bleue correspondant au maximum de la distribution des états excités. Sur chaque spectre, les modes de résonance sont visibles. Pour chaque cavité ces modes sont repérés par des droites verticales. Sur chacun de ces modes, l'exaltation de la lumière n'est pas la même. Pour les modes des cavités de rayon 400nm et 500nm l'exaltation est d'un facteur 5, alors que pour les deux plus grandes cavités elle est à peine d'un facteur 1.2 ou 1.5.

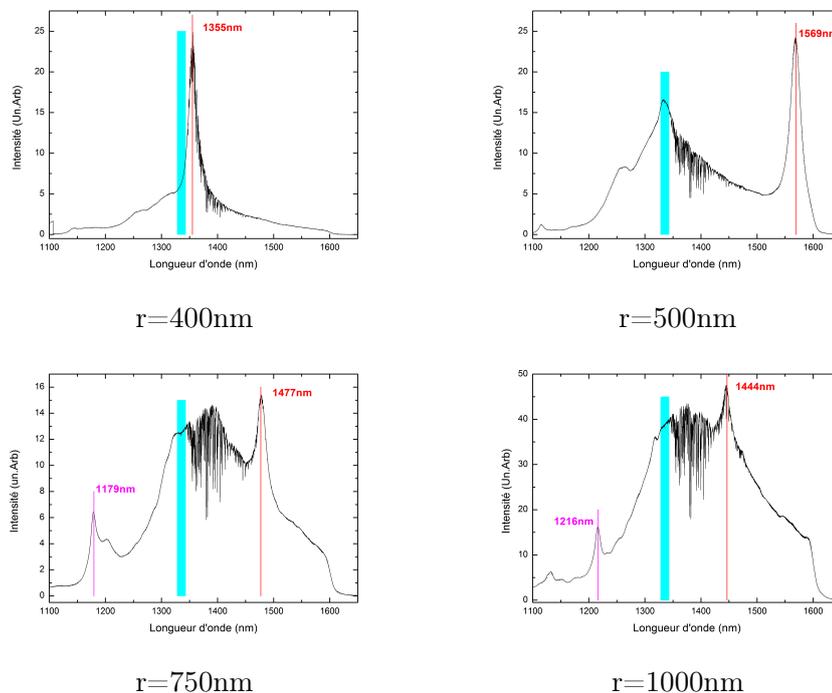


FIGURE 5.12 – Spectres sous excitation continue à 532nm à 12mW obtenus pour des rayons de cavités variables. Sur chaque graphique est repéré par un trait vertical rouge la longueur d'onde du (ou des) mode(s) visible(s) de la cavité. La zone bleue correspond au maximum de la distribution des états excités des boîtes quantiques.

L'étude en puissance des cavités de rayon 400 et 500nm est présentée sur la figure (5.13). A partir d'une certaine puissance d'excitation, des modes à courtes longueurs d'onde apparaissent.

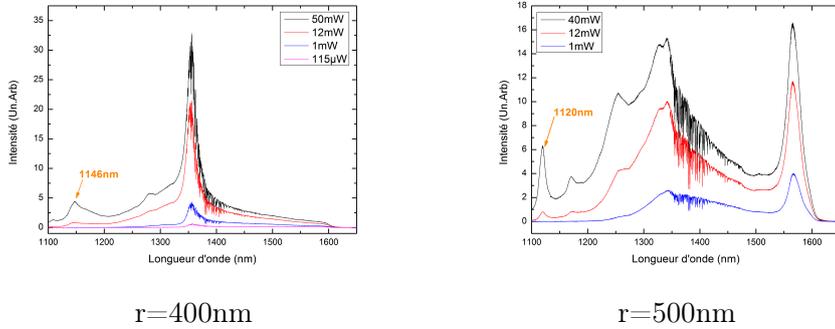


FIGURE 5.13 – Spectres sous excitation continue à 532nm obtenus pour des cavités de rayon 400 et 500nm en fonction de la puissance d'excitation. Lorsque la puissance de pompe devient suffisante les modes à basse longueur d'onde apparaissent, du fait de l'élargissement vers le bleu du spectre d'émission des boîtes.

Comparaison avec les simulations

La comparaison entre les spectres expérimentaux et ceux simulés permet d'identifier les différents modes. On remarque que les modes obtenus expérimentalement sont à la même longueur d'onde que ceux simulés, à 3% près (voir le tableau (5.3)). Le décalage spectral se faisant toujours dans le même sens, il est possible que l'indice optique de l'InP utilisé lors de la simulation ne soit pas exactement le bon. Celui utilisé dans les calculs est fixée à 3.1 à 300K. Cette valeur correspond à celle proposé sur le site de Ioffe Physical-Technical Institute¹. L'objectif est d'identifier les modes de la cavité sur un ensemble de boîtes quantiques où aucun accord spectral n'est à effectuer. En regard de la grande largeur spectrale du mode, cette précision sur la longueur d'onde est suffisante.

| Rayon (nm) | Modes | λ_{Theo} (nm) | λ_{exp} (nm) |
|------------|-------|-----------------------|----------------------|
| 400 | 1 | 1314 | 1355 |
| 500 | 1 | 1513 | 1569 |
| 750 | 1 | 1427 | 1477 |
| | 2 | 1142 | 1179 |
| 1000 | 1 | 1387 | 1444 |
| | 2 | 1180 | 1216 |

Tableau 5.3 – Comparaison entre les longueurs d'onde simulées λ_{Theo} et les longueurs d'onde obtenues expérimentalement λ_{exp} .

1. L'adresse du site est : <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/>

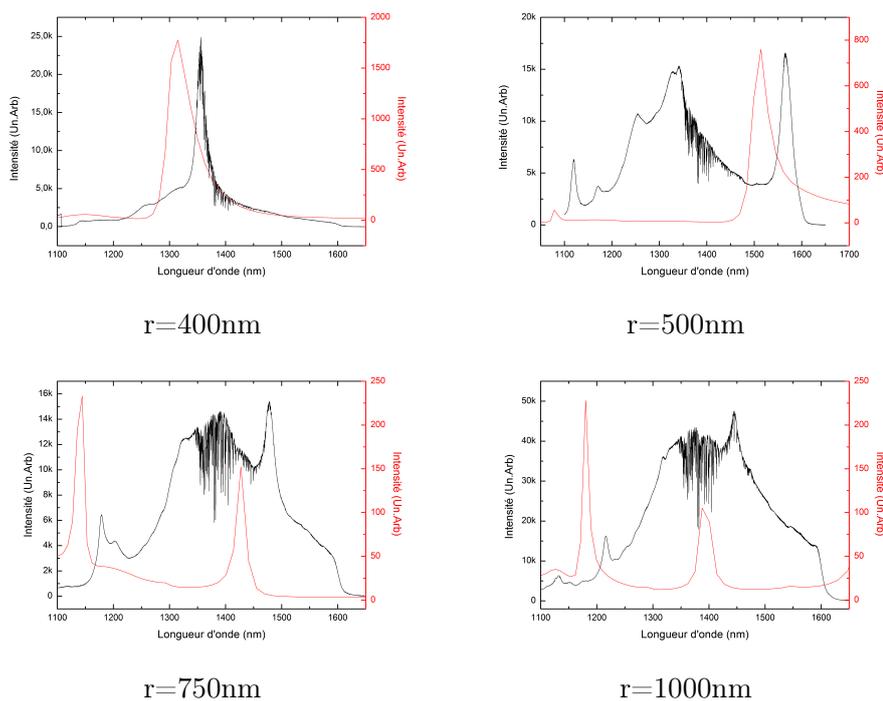


FIGURE 5.14 – Comparaison entre les spectres simulés des cavités vides (rouge) et les spectres expérimentaux (noir). Un relativement bon accord entre les deux est à remarquer. Tous les modes simulés sont observables expérimentalement malgré un décalage en longueur d'onde de 3%.

5.3 Étude à 4K : Un effet Purcell ?

Pour cette étude il a été choisi d'étudier uniquement les cavités de rayon $r=400\text{nm}$. Ce choix s'est fait car le mode est à $1.35\mu\text{m}$; par conséquent il est possible d'étudier une gamme spectrale à $\pm 100\text{nm}$ par rapport à la longueur d'onde du mode.

5.3.1 Dynamique des boîtes sans cavités

L'étude complète sur les boîtes quantiques sur micropilier constitue le sujet du chapitre 3. Cependant afin de mener l'étude sur les cavités plasmoniques il est important de mesurer les durées de vie des boîtes quantiques de cet échantillon en fonction de la longueur d'onde d'émission. Pour ce faire des mesures de durée de vie de toutes les raies présentes sur les spectres de la figure (??) ont été faites. Les mesures ont été faites à une puissance de 210nW , puissance inférieure à la puissance de saturation mesurée au chapitre 3, de sorte à n'exciter que les transitions excitoniques fondamentales. Comme vu à la section 3.2.3 la durée de vie des boîtes quantiques associée aux transitions excitoniques, ne dépend pas de la puissance d'excitation.

L'étude des durées de vie a été menée sur les raies à 1200 , 1300 et 1400nm ² (voir graphique (5.16)). Les durées de vie obtenues sont de $\tau_{1200} = 1.27 \pm 0.05\text{ns}$,

2. Les explications sur les méthodes de mesures des durées de vie sont disponibles à la section 3.2.3.

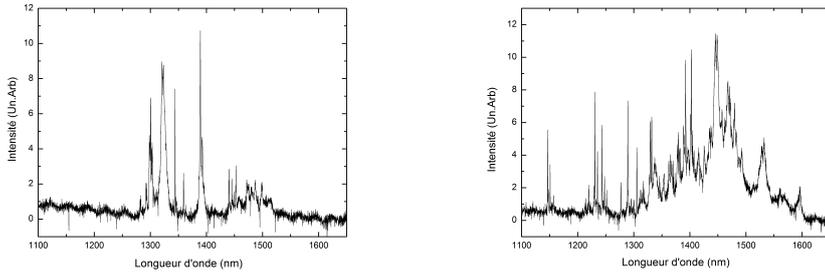


FIGURE 5.15 – Spectres obtenus sur des mésas de 500nm de rayon à une température de 4K sous excitation impulsionnelle à 810nm à une puissance de 210nW.

$$\tau_{1300} = 1.29 \pm 0.03\text{ns} \text{ et } \tau_{1400} = 1.28 \pm 0.06\text{ns}.$$

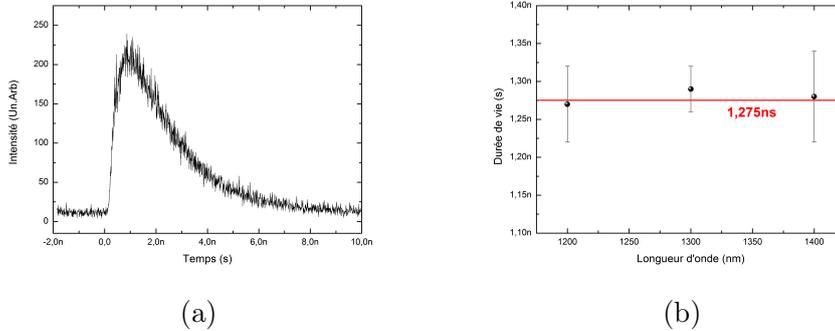


FIGURE 5.16 – (a) Histogramme des temps d'arrivée des photons pour une raie à 1300nm à 4K. Le temps de décroissance est $\tau_{1300} = 1.29 \pm 0.03\text{ns}$. (b) Évolution de la durée de vie des raies en fonction de la longueur d'onde d'émission à 4K.

5.3.2 Dynamique des boîtes en cavités plasmoniques

Les spectres rayonnés par les boîtes en cavité en fonction de la puissance d'excitation sous excitation impulsionnelle sont présentés sur la figure (5.17). On remarque que :

- A forte puissance, le spectre des boîtes est de type "lampe blanche". Par conséquent il est possible d'observer le mode de cavité situé à 1332nm.
- A faible puissance, le spectre est constitué de raies excitoniques dans et hors de la résonance.

La longueur d'onde du mode entre 300K et 4K s'est décalé vers les courtes longueurs d'onde (de 1.6%) en accord avec une contraction du matériau et une diminution de son indice de réfraction. En saturant une raie excitonique émettant dans la résonance de la cavité, il est possible de déterminer, grâce aux nombre de photons détectés, une extraction d'environ 0.8% cette valeur est comparable à celle observé sur méso d'environ 0.4%.

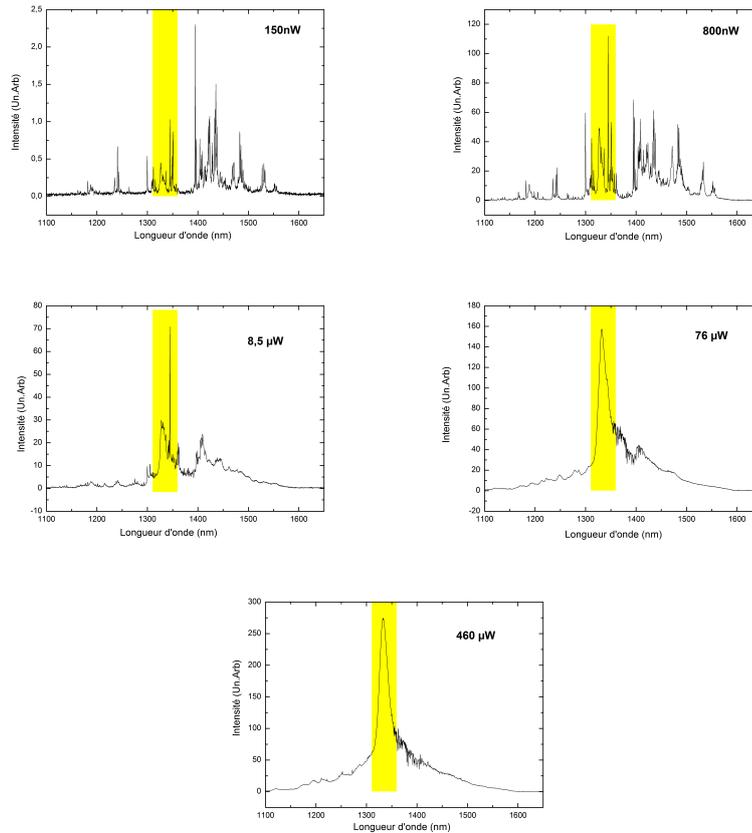


FIGURE 5.17 – Spectres obtenus sur une cavité plasmonique de rayon 400nm à une température de 4K en fonction de la puissance de pompe (Sous excitation impulsionnelle). La zone représentée en jaune sur chaque spectre représente la bande spectrale de la résonance de la cavité.

Les mesures de durées de vie ont été effectuée sur un grand nombre de raies dans une gamme large autour de la résonance. C'est pourquoi plusieurs cavités ont été analysées. La figure 5.18 représente le résultat de la mesure. Chaque cavité étudiée possède sa propre longueur d'onde de résonance, les valeurs fluctuant dans un intervalle de 4nm , les courbes sont tracés en fonction de l'écart à la longueur d'onde de résonance de la cavité.

Nous avons superposé sur la la figure (5.18) (b) le spectre de la cavité à la courbe de l'inverse de la durée de vie en fonction du désaccord entre la longueur d'onde de l'exciton et celle du mode de la cavité. Nous voyons une accélération d'un facteur 3.7 à la résonance ainsi qu'une inhibition d'un facteur 2 hors de la résonance (voir figure (5.19)). La fluctuation de la valeur de la durée de vie dans le mode de cavité est probablement liée au désaccord spatial entre la boîte et le maximum du champ électrique dans la cavité. Le ralentissement de la durée de vie (ou effet Purcell inférieur à 1) a été observé également dans [167]. Il est dû au désaccord spectral de la boîte au mode.

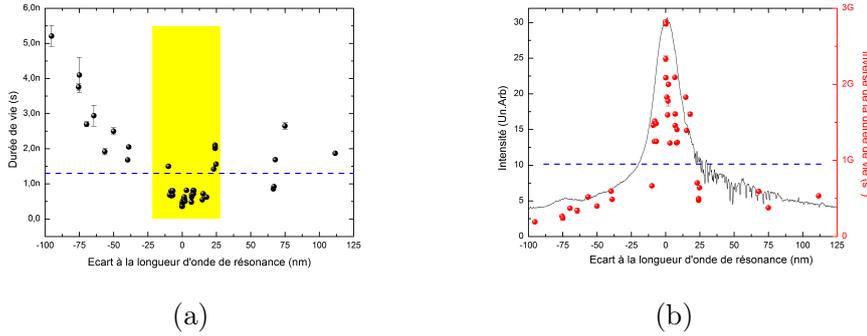


FIGURE 5.18 – (a) Évolution de la durée de vie en fonction du désaccord spectral entre l'exciton et le mode optique, la zone jaune représente la gamme de longueur d'onde de la résonance de la cavité (b) Évolution de l'inverse de la durée de vie en fonction de l'écart à la longueur d'onde de résonance. Le trait bleu sur (a) représente la durée de vie des raies sur un pilier sans métallisation et (b) l'inverse de la durée de vie des boîtes sur méso sans métallisation (voir figure (5.16)(b)). Nous observons clairement une accélération de la durée de vie proche de la résonance et un ralentissement en dehors de la résonance.

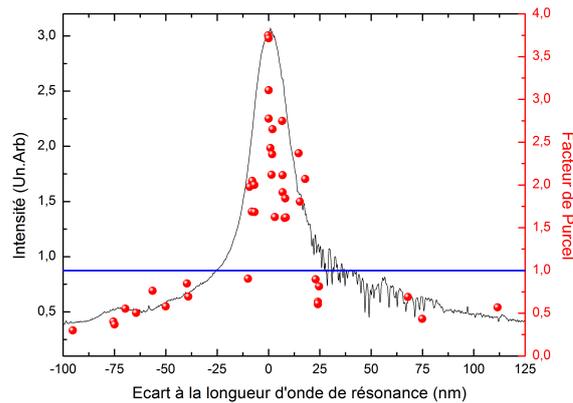


FIGURE 5.19 – Évolution de l'effet Purcell en fonction de l'écart à la longueur d'onde de résonance. Points rouges : facteur de Purcell. Trait noir : spectre d'une cavité plasmonique de rayon $r=400\text{nm}$. Le facteur de Purcell monte à 4 au cœur de la résonance et descend à 0.3 au plus courte longueur d'onde.

5.3.3 Premières simulations

Après l'obtention de ces résultats, des simulations précises ont été faite par Ph. Lalanne et J.P. Hugonin pour estimer l'amplitude de la modification de l'émission spontanée sur les cavités étudiées. Il est a préciser que la cavité d'étude est celle présenté précédement avec un bourrelet d'or ; cette cavité a des paramètres très différent de la cavité optimale présentée au début de ce chapitre.

La figure (5.20) montre une représentation de la cavité simulée. Nous noterons r_s l'écart spatial suivant la direction x entre le dipôle émetteur et le centre de la

cavité.

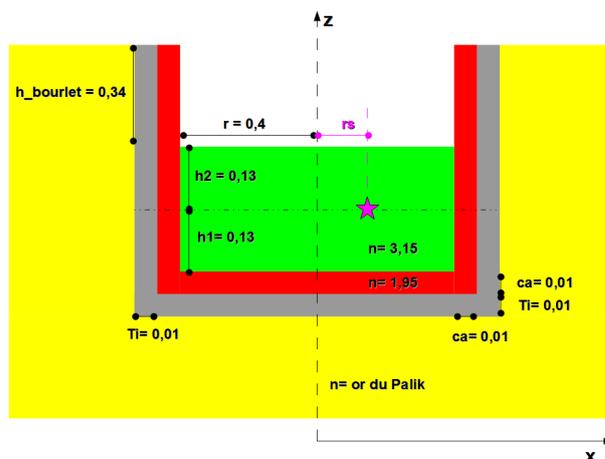


FIGURE 5.20 – Schéma de la cavité simulée.

Les premières simulations considéraient une boîte au centre de la cavité (ie : $r_s=0$). La valeur du facteur de Purcell ainsi que celle du flux sortant sont calculées en fonction de la longueur d'onde (voir figure (5.21)). Le flux sortant correspond à la lumière collectée et prend par conséquent en compte le facteur de Purcell. Pour obtenir l'extraction réelle de la cavité il est indispensable de diviser le flux sortant par la valeur du facteur de Purcell. Ainsi, on note la présence d'un mode à $1.35\mu\text{m}$ qui coïncide avec le mode expérimental observé à $1.33\mu\text{m}$. Ce mode induit un facteur de Purcell de 9 et un flux sortant de 0.07 soit une extraction de 0.78%.

Au pied du mode de la cavité, on observe des valeurs du facteur de Purcell inférieur à 1. De plus, on note aussi la présence d'un second mode à $1.1\mu\text{m}$, ce mode n'a pas été observé expérimentalement à 4K. En effet, la probabilité d'obtenir des boîtes en résonance à cette longueur d'onde est quasi nulle au vu de la distribution des boîtes sur cet échantillon. Rappelons cependant qu'à très forte puissance, lorsque le spectre des boîtes quantiques est assimilable à une "lampe blanche", un mode à 1145nm est observable à 300K (voir figure (5.13)).

Sur les simulations, il est possible d'extraire à 1350nm les valeurs suivantes :

- Facteur maximal de Purcell de 9 avec un un taux d'extraction de 0.78%
- Facteur de Purcell de 0.5 aux longueurs d'onde plus courtes que la résonance
- Facteur de Purcell de 0.3 aux longueurs d'onde plus longues que la résonance

Le facteur de Purcell obtenu expérimentalement à résonance est de 4 et le taux d'extraction estimé est de 0.8%. Par conséquent, la valeur attendue de l'extraction coïncide avec l'expérimentation, mais un écart est observé pour le facteur de Purcell. Il est donc intéressant d'étudier l'impact de la position du dipôle par rapport à l'axe central $r_s \neq 0$.

La figure (5.22) permet de déterminer le facteur de Purcell en fonction du décalage spatial de la boîte par rapport au centre de la cavité et en fonction de la polarisation. La conclusion de ces spectres est une variation importante du facteur de Purcell en fonction des différents cas (voir tableau (5.4)). Au maximum le facteur de Purcell prend la valeur de 5.9 (dans le cas d'un champ polarisé suivant x et

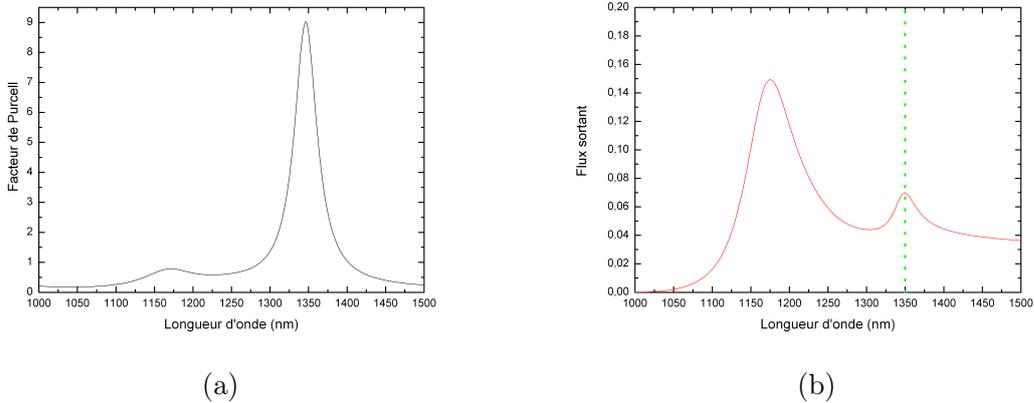


FIGURE 5.21 – (a) Évolution du facteur de Purcell en fonction de la longueur d'onde. (b) Évolution du flux sortant en fonction de la longueur d'onde, en pointillé vert est repéré la longueur d'onde du mode de cavité. Ces figures considèrent pour une boîte au centre de la cavité i.e $r_s=0$.

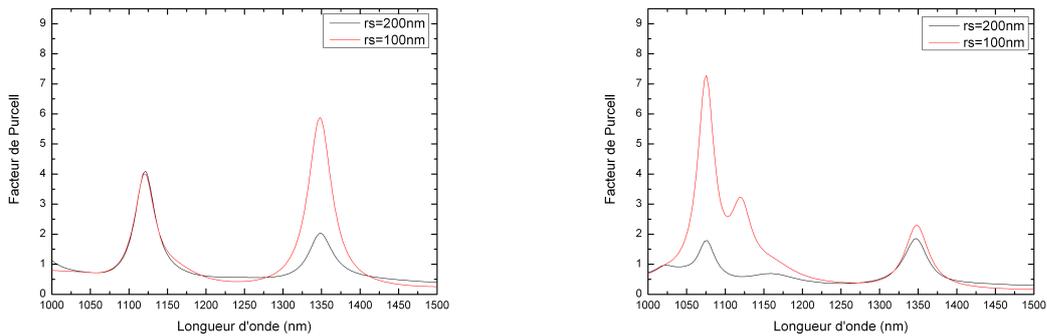


FIGURE 5.22 – Évolution du facteur de Purcell en fonction de la longueur d'onde. En noir : émetteur positionné à 200nm du centre de la cavité. En rouge : émetteur positionné à 100nm du centre de la cavité. (a) Polarisation du dipôle suivant x . (b) Polarisation du dipôle suivant y . Des facteurs de Purcell variant de 2 à 6 au maximum sont prédits à $1.35\mu\text{m}$.

une boîte quantique décalée de 100nm du centre) et décroît jusqu'à 1.9 (dans le cas d'un champ polarisé suivant y et une boîte quantique décalée de 200nm du centre). Comme pour le facteur de Purcell la figure (5.23) permet de définir un intervalle pour le flux sortant, et on peut donc en déduire des valeurs d'extraction (voir tableau (5.4)) variant de 0.95 à 2.9% .

Dès lors il est important de comparer les valeurs obtenues expérimentalement avec les valeurs simulés. Ainsi, la valeur mesurée expérimentalement de l'extraction de 0.8% est comparable au valeur obtenus par simulation allant de 0.78% à 2.9%. Quant au facteur de Purcell, on remarque que les valeurs mesurés sont comparable

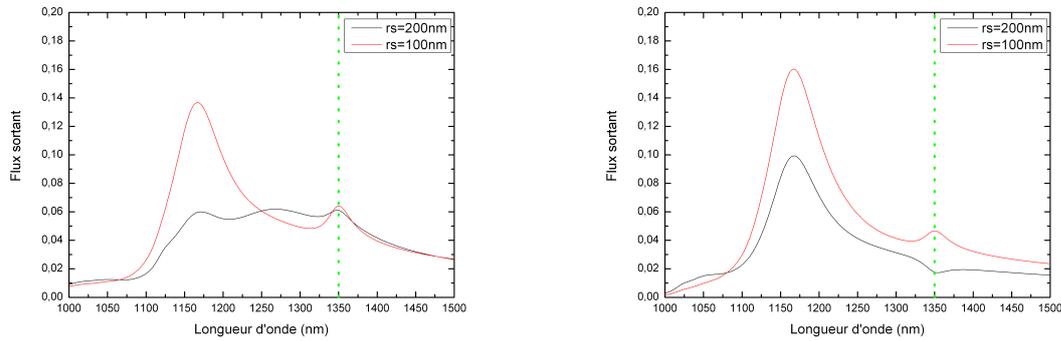


FIGURE 5.23 – Évolution du flux sortant en fonction de la longueur d'onde. En noir : émetteur positionné à 200nm du centre de la cavité. En rouge : émetteur positionné à 100nm du centre de la cavité. (a) Polarisation du dipôle suivant x . (b) Polarisation du dipôle suivant y .

| rs (nm) | Polarisation | Facteur de Purcell | Extraction |
|---------|--------------|--------------------|------------|
| 0 | | 9 | 0.78% |
| 100 | x | 5.9 | 1.08% |
| | y | 2.3 | 2.04% |
| 200 | x | 2.1 | 2.9% |
| | y | 1.9 | 0.95% |

Tableau 5.4 – Valeurs simulées du facteur de Purcell et de l'extraction en fonction de la polarisation et de la position du dipôle dans la cavité.

aux valeurs simulées dans le cas de décalages du dipôle de l'axe. Grâce à la figure (5.24), il est possible de conclure que la variation des valeurs du facteur de Purcell mesurée au sein du mode de cavité correspond à un décalage plus au moins important de la boîte émettrice par rapport au centre de la cavité. notons d'autre part que la boîte, d'un diamètre d'environ 50nm, se trouve à au plus 100nm de l'axe de la cavité, n'est que de 6%

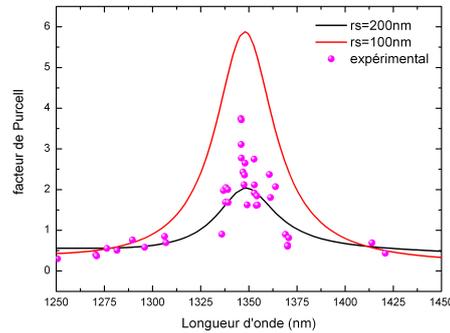


FIGURE 5.24 – Comparaison de l'évolution du facteur de Purcell simulé (en trait plein) et expérimental (points violets) en fonction de la longueur d'onde. En noir : Décalage du dipôle de 100nm. En rouge : Décalage du dipôle de 200nm .

5.4 Conclusion et perspective

Les études menées sur une cavité plasmonique ont permis la mise en évidence d'un effet Purcell large bande, grâce à la grande largeur du pic de résonance de la cavité à 1330nm à 4K, avec des facteurs de Purcell pouvant atteindre 4. Nous avons pu aussi observer, comme attendu, une inhibition significative de l'émission spontanée hors résonance. Grâce à un tel système, les contraintes sur l'accord spectral entre le dipôle et la cavité sont relâchées, tout en offrant des amplitudes de modifications de l'émission spontanée significatives. Quant à l'accord spatial, même si le couplage est optimal pour des dipôles au centre de la cavité, il a été démontré qu'à plus de 200nm du centre du mode du champ électromagnétique, le couplage est encore conservé avec un facteur de Purcell de 2.

Les premières mesures effectués dans le cadre de ce travail de thèse ouvrent des perspectives sur l'utilisation de telle structure, pour la réalisation de photons uniques indiscernables.

Conclusion

L'objectif de ce travail de thèse était l'étude des propriétés optiques et dynamiques des boîtes uniques InAsP/InP réalisées par Épitaxie en Phase Vapeur aux OrganoMétalliques, dans la perspective de réaliser une source de photons uniques ou d'autres états quantiques de la lumière aux longueurs d'onde des télécommunications en vue d'applications pour la cryptographie quantique. Pour cela nous avons développé un montage expérimental de micro-photoluminescence afin d'étudier les propriétés de boîtes quantiques uniques dans cette plage de longueur d'onde. Ce travail a été mené en étroite collaboration avec les équipes d'épitaxie, de caractérisation structurale ainsi que les technologues en salle blanche pour la réalisation des structures nanométriques : mesas, cavités à cristaux photoniques et cavités plasmoniques.

Dans un premier temps, à travers l'analyse spectroscopique des échantillons, nous avons contribué à l'étude de l'influence des paramètres de croissance sur la longueur d'onde d'émission des boîtes quantiques. Ces études ont permis de réaliser des boîtes quantiques InAsP/InP non seulement aux longueurs d'onde des télécommunications, mais aussi à des longueurs d'onde allant jusqu'à $2.3\mu\text{m}$ ouvrant la possibilité d'utilisation de ces boîtes pour de nouvelles d'applications, comme notamment la détection de gaz.

Nous avons étudié trois boîtes quantiques uniques en les isolant sur leurs plaques de croissance par la gravure de micropiliers. Des analyses spectrales ont permis d'identifier des raies avec un comportement excitonique et biexcitonique en fonction de la puissance incidente. En particulier l'étude de l'évolution de ces raies suite à une excitation impulsionnelle à différentes puissances nous a permis de démontrer la présence d'une cascade radiative due à l'émission séquentielle des paires électron-trou se recombinant dans la boîte quantique. Ainsi grâce à la mise au point d'un modèle théorique il a été possible de déterminer le nombre de paires de porteurs présent dans la boîtes. Cette étude a démontrée qu'au moins une dizaine de niveaux multi-excitoniques sont présents dans ces boîtes. Ces résultats ont été corroborés par des études des fonctions d'ondes dans les boîtes quantiques par microscopie à effet tunnel. cette émission en cascade permet de produire des photons uniques comme nous l'avons démontré par des mesures de dégroupement de photons sur boîte unique à 4K et $1.3\mu\text{m}$. De plus nous avons démontré que contrairement au système InGaAs/GaAs, le système InAsP/InP conserve un comportement excitonique jusqu'à 80K permettant d'envisager de l'utiliser pour des sources de photons uniques refroidies à l'azote liquide. Nous avons aussi étudié la spectroscopie de ce système à température ambiante ouvrant la voie à l'utilisation de ces boîtes comme milieu à gain pour des nanolasers.

Dans cette perspective nous avons étudié le caractère homogène ou inhomogène de l'émission des boîtes à 300K en les plaçant dans des cavités à cristaux photoniques. En étudiant le nombre de modes pouvant atteindre le seuil laser dans des cavités monomodes ou multimodes, nous avons démontré qu'à partir d'une température seuil à 130K l'émission des boîtes devient homogène avec un seul mode lasant. La raison de ce changement de comportement n'étant pas encore identifié nous avons émis l'hypothèse d'un couplage entre toutes les boîtes présentes via la couche de mouillage. Des études complémentaires vont être menées au laboratoire pour confirmer cette hypothèse. Par ailleurs, nous avons observé que la statistique de photons des nanolasers à boîtes quantiques était sur-Poissonienne même à une puissance quatre fois celle du seuil. Des études complémentaires au sein du laboratoire explorent la raison de cette déviation par rapport à la statistique Poissonienne attendue pour un laser.

Enfin, nous avons cherché à accélérer le processus d'émission des boîtes quantiques, en mettant en œuvre des effets d'électrodynamique quantique en cavité. Cet étape est indispensable pour produire des états indiscernables ou intriqués à partir de photons uniques. Pour cela nous avons choisi d'utiliser des cavités plasmoniques. Ces cavités présentent une accélération importante de l'émission spontanée sur une large gamme spectrale tout en étant peu sensibles au positionnement exact de la boîte au sein de la cavité. En étroite relation avec les technologues nous avons mis au point des premières cavités qui nous ont permis de mettre en évidence un effet Purcell sur une plage spectrale de 20nm, avec une accélération maximale de 4. Ces premières mesures sont encourageantes avec des marges d'amélioration importantes pour ces dispositifs. Ces études se poursuivent actuellement au sein du laboratoire.

Annexe A

La microscopie électronique en transmission

L'objectif de cette annexe est de décrire très brièvement les fonctionnalités du microscope électronique en transmission [109] afin de comprendre les clichés obtenus.

Le TEM (Microscope Electronique en Transmission) que possède le laboratoire est un JEOL 2200 FS corrigé sonde. Cela signifie que la divergence du faisceau électronique est corrigée afin d'obtenir une meilleure résolution. Tous les clichés TEM présentés dans ce travail ont été faits sur ce microscope.

Deux modes de fonctionnement ont été utilisés :

Le premier est le mode parallèle qui permet de faire des images en vue plane. Ces images mesurent les champs de contraintes permettant ainsi d'avoir une image de la morphologie latérale et de la densité des boîtes quantiques présents sur l'échantillon (voir figure A.1 (a)). Les boîtes observées avaient une forme parallélépipédique (voir figure A.1 (b)). Une statistique sur les diagonales (a) et (b) a été effectuée. Les dimensions latérales des boîtes évoquées dans ce manuscrit correspondent à la valeur moyenne de la mesure sur les deux diagonales.

Le deuxième mode de fonctionnement appelé mode balayage STEM-HAADF, consiste en un balayage de l'échantillon par une sonde électronique convergente. L'image formée est construite point par point et le contraste est donné par le Z (numéro atomique) moyen de la colonne atomique illuminée par le faisceau électronique. Afin de connaître la hauteur et la composition des boîtes, ce mode de fonctionnement est utilisé sur des échantillons préparés pour des vues en coupe. Ces images permettent également d'étudier la composition des boîtes quantiques grâce au mode EDX du microscope (voir figure A.2).

La mesure EDX consiste en la focalisation du faisceau électronique en un point de l'échantillon. Ce faisceau arrache les électrons de cœur des atomes présents dans le cône de focalisation du faisceau. Les électrons des atomes ainsi ionisés repeuplent les niveau de cœur en émettant des rayons X caractéristiques de la nature de l'atome. La figure A (a) représente une image d'une boîte en surface, et la figure A (b) représente une mesure de composition de cette boîte suivant les deux axes. Il

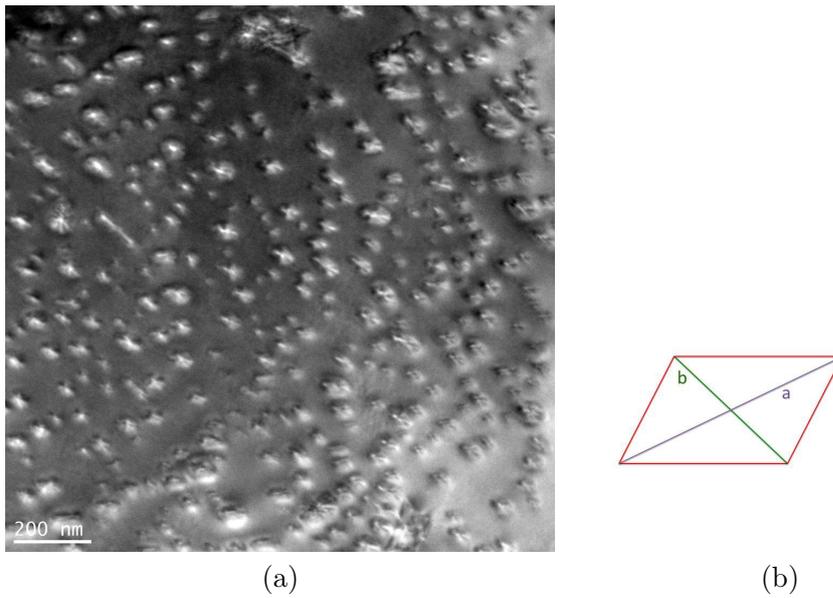


FIGURE A.1 – (a) Image TEM en mode parallèle offrant une vue plane de l'échantillon InP 220. (b) Schéma représentant la forme d'une boîte quantique ainsi que les axes de mesure de sa dimension latérale.

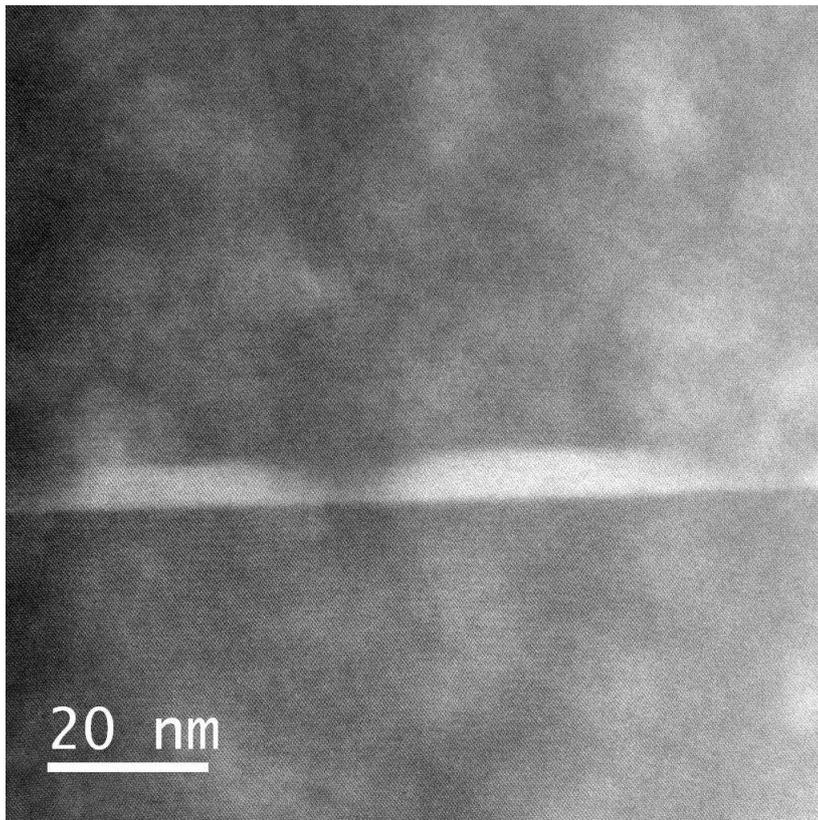


FIGURE A.2 – Image TEM en mode balayage HAADF offrant une vue en coupe de l'échantillon InP220. Les rangées d'atomes sont clairement identifiables.

est à remarquer que la concentration en arsenic dans la boîte est constante dans le plan. De plus, la présence de phosphore au sein de la boîte permet d'affirmer que la boîte n'est pas faite en InAs pur mais possède du phosphore d'où l'appellation InAsP.

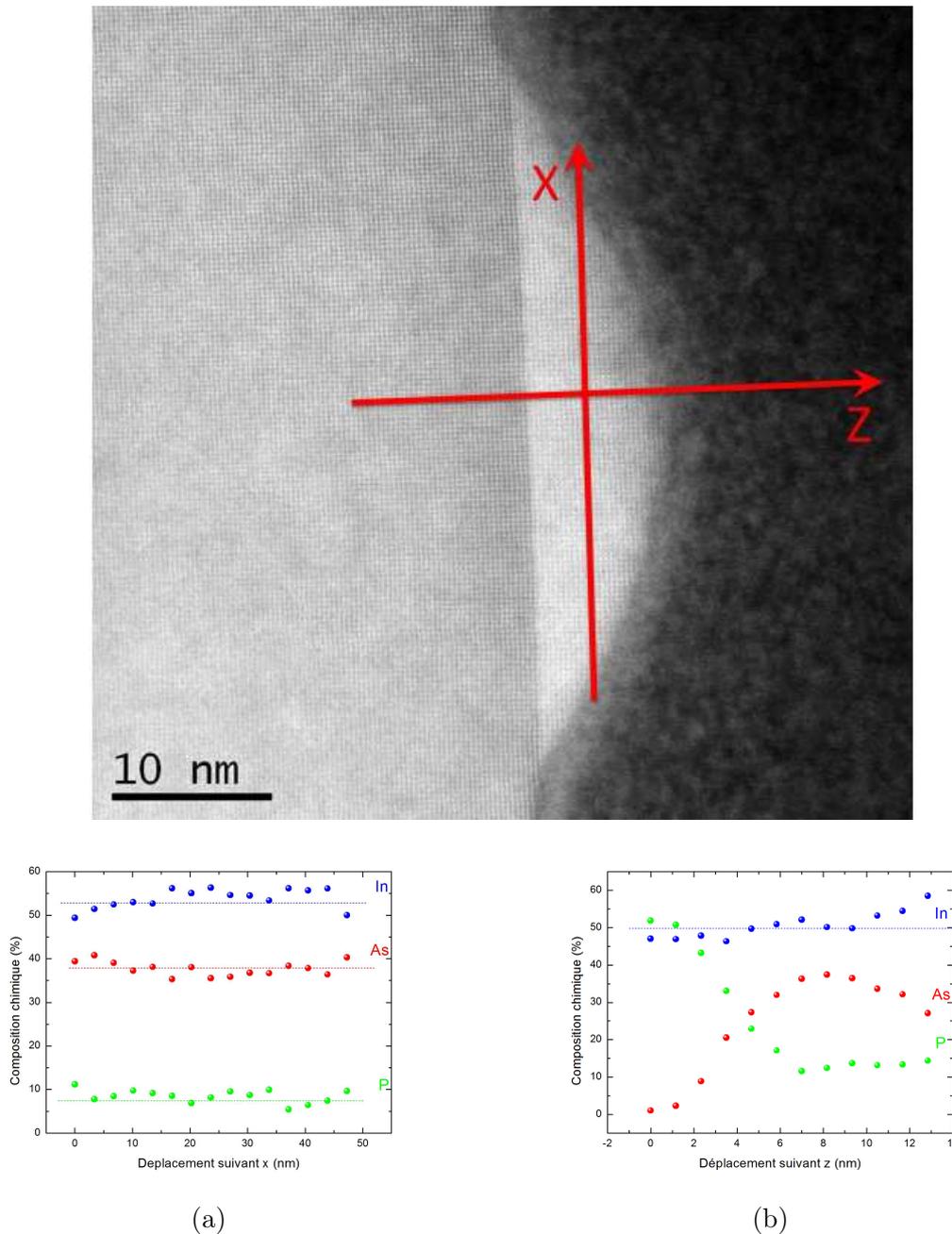


FIGURE A.3 – En haut : image TEM d'une boîte de surface sur laquelle est effectué une analyse STEM-HAADF/EDX afin d'obtenir la composition chimique de la boîte. Les deux axes de mesure sont représentés. En bas : (a) graphique de l'évolution de l'Indium, Arsenic et Phosphore suivant l'axe x . Les concentrations de chacune de ces trois espèces est constante. (b) : évolution des trois espèces chimique en fonction de la position en z sur la boîte. Dans la couche tampon, il n'y a pas d'Arsenic, puis l'arsenic apparaît. La forme de la boîte est clairement visible sur ce profil. Du phosphore est observé au cœur de la boîte. Par conséquent, les boîtes ont un cœur d'InAsP. Cette mesure permet de déterminer que 20% de phosphore s'incorpore dans la boîte.

Annexe B

Présentation des modèles

Cette annexe a pour rôle de développer le modèle utilisé dans le chapitre 3. Nous expliciterons chaque étape de leur construction.

B.1 Évolution de l'intensité en fonction du nombre de charge dans la boîte : développement du modèle.

B.1.1 Construction du modèle

Le point de départ du développement du modèle est l'équation différentielle suivante :

$$\frac{d}{dt}P^n(t) = \gamma_{n+1}P^{n+1} - \gamma_n P^n(t) \quad (\text{B.1})$$

avec $n \in \mathbb{N}$, $P^n(t)$ la probabilité d'avoir n paires électron-trou (excitons) dans la boîte et γ_n le taux de déclin de l'état à n excitons. Dans cette analyse, nous ne considérons en effet que des états multiexcitonique. Pour résoudre cette équation, considérons que la boîte quantique contienne initialement N excitons. Nous cherchons alors la probabilité que après relaxation séquentielle des $N - 1$ excitons la boîte ne contienne qu'un seul exciton. Au cours de la recombinaison séquentielle des N paires, $N - 2$ paires émettront en cascade des photons avant de projeter la boîte sur l'état à 2 excitons. En notant τ_B le temps de recombinaisons de chacune des $N - 2$ nous pouvons écrire :

$$\gamma_n = \frac{n}{\tau_B} \quad (\text{B.2})$$

La solution du système d'équation (B.1) donne alors la probabilité d'être dans l'état à 2 excitons et d'émettre un photon comme :

$$P_N^2(t) = \frac{N(N-1)}{2} e^{-\frac{2t}{\tau_B}} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}}\right)^{N-2} \quad (\text{B.3})$$

En émettant un photon cet état projette la boîte dans l'état à un seul exciton qui lui peut se recombinaison avec un temps caractéristique τ_X . La probabilité d'être dans l'état exciton et d'émettre un photon peut alors s'écrire comme :

$$P_N^1(t) = \int_0^t e^{-\frac{(t-\tau)}{\tau_X}} \frac{N(N-1)}{2} e^{-\frac{2\tau}{\tau_B}} \left(1 - e^{-\frac{\tau}{\tau_B}}\right)^{N-2} d\tau \quad (\text{B.4})$$

En utilisant la formule du binôme de Newton :

$$(1-x)^N = \sum_{k=0}^N \frac{N!}{k!(N-k)!} (-1)^k x^k \quad (\text{B.5})$$

cette intégrale peut s'écrire :

$$P_N^1(t) = N(N-1)e^{-\frac{t}{\tau_X}} \sum_{k=0}^{N-2} \frac{(N-2)!}{k!(N-2-k)!} (-1)^k \frac{1}{k+2-\frac{\tau_B}{\tau_X}} \left(e^{-\frac{t}{\tau_B} \left(k+2-\frac{\tau_B}{\tau_X}\right)} - 1 \right) \quad (\text{B.6})$$

Cette somme ne correspond pas à une solution simple sauf dans deux cas particuliers $\tau_B/\tau_X = 0$ ou 1. Nous allons donc traiter ces deux cas.

Cas $\tau_B \approx \tau_X$

Dans ce cas l'équation (B.6) se réduit à :

$$P_N^1(t) \approx N e^{-\frac{t}{\tau_X}} (1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}})^{N-1} \quad (\text{B.7})$$

Cas $\tau_B \ll \tau_X$

Dans ce cas l'équation B.6 devient :

$$P_N^1(t) \approx e^{-\frac{t}{\tau_X}} \left((1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}})^N + N e^{-\frac{t}{\tau_B}} (1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}})^{N-1} \right) \quad (\text{B.8})$$

A présent nous avons nos deux modèles nous pouvons en déduire l'évolution du maximum de chacune de ces fonctions mais aussi l'évolution de l'intensité en fonction du temps.

B.1.2 Évolution de l'intensité en fonction du temps.

Pour une distribution Poissonnienne de moyenne μ du nombre d'exciton dans la boîte, l'évolution de l'intensité de la raie excitonique en fonction du temps peut s'écrire :

$$I_X(t) = \sum_{k=0}^N \frac{e^{-\mu} \mu^k}{k!} P_k^1(t) \quad (\text{B.9})$$

Nous avons deux fonctions bien différentes en fonction de la valeur de τ_B et τ_X . Nous devons par conséquent séparer les 2 cas.

Cas $\tau_B \approx \tau_X$

Dans ce cas nous avons P_k^1 qui prend la forme de l'équation (B.7) nous pouvons donc réécrire $I_X(t)$ ainsi :

$$I_X(t) = \sum_{k=0}^N \frac{e^{-\mu} \mu^k}{k!} k e^{-\gamma \frac{t}{\tau_X}} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}}\right)^{k-1} \quad (\text{B.10})$$

Ce qui donne :

$$I_X(t) = \mu e^{-\frac{t}{\tau_X}} \exp\left(-\mu e^{-\frac{t}{\tau_B}}\right) \quad (\text{B.11})$$

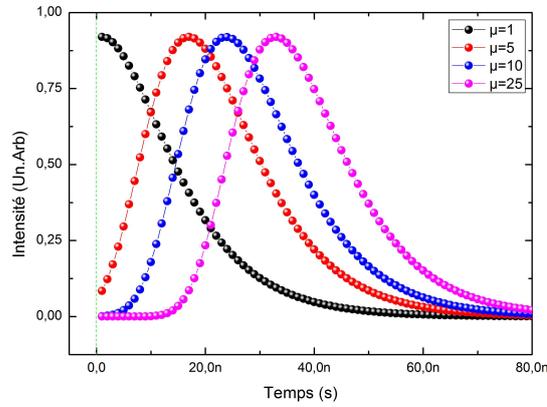


FIGURE B.1 – Simulation de l'évolution de l'intensité de la raie excitonique en fonction du temps. Chaque courbe représente une valeur de μ , avec $\tau_X = \tau_B = 1\text{ns}$. Un décalage temporel du maximum en fonction de la charge de la boîte est observable.

L'équation (B.11) permet de tracer l'évolution de $I_X(t)$ en fonction du temps pour différentes valeurs de μ , comme présenté sur la figure (B.1). Le maximum de la courbe se décale temporellement en fonction de μ : pour une boîte piégeant μ paires, il faut attendre que $\mu - 1$ paires se recombinent avant d'observer le signal de luminescence de l'exciton. Ce décalage temporel est une première signature indirecte de cette émission en cascade. L'évolution du maximum est donné par :

$$\xi = \tau_B \ln \left(\mu \frac{\tau_X}{\tau_B} \right) \quad (\text{B.12})$$

Cas $\tau_B \ll \tau_X$

Dans ce cas nous avons P_k^1 qui prend la forme de l'équation (B.8). Nous pouvons donc réécrire $I_X(t)$ ainsi :

$$I_X(t) = e^{-\mu} e^{-\frac{t}{\tau_X}} \left(\sum_{k=0}^N \frac{\mu^k}{k!} (1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}})^k + \sum_{k=0}^N \frac{\mu^k}{k!} k e^{-\frac{t}{\tau_B}} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_B}}\right)^{k-1} \right) \quad (\text{B.13})$$

ce qui donne :

$$I_X(t) = e^{-\frac{t}{\tau_X}} \left(\exp(-\mu e^{-\frac{t}{\tau_B}}) (1 + \mu e^{-\frac{t}{\tau_B}}) - e^{-\mu} \right) \quad (\text{B.14})$$

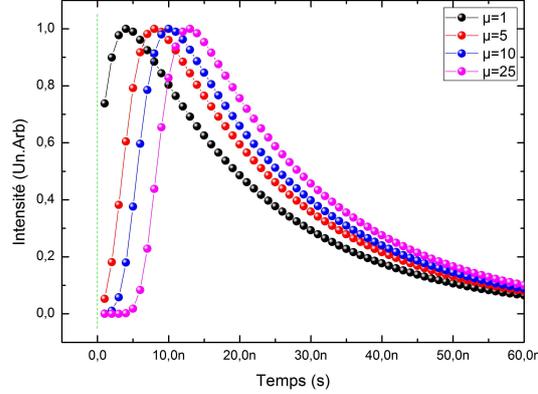


FIGURE B.2 – Simulation de l'évolution de l'intensité de la raie excitonique en fonction du temps. Chaque courbe représente une valeur de μ , pour $\tau_X=2ns$ et $\tau_B=300ps$. Nous constatons un décalage temporel en fonction de la charge de la boîte.

La figure (B.2) représente l'évolution de l'intensité de l'exciton en fonction du temps, obtenue à partir de l'équation (B.14). Un décalage temporel du maximum de l'intensité est visible lorsque le nombre de charges dans la boîte augmente donné par :

$$\xi(\mu) = \tau_B \ln \left(\mu \sqrt{\frac{\tau_X}{\tau_B}} \right) \quad (\text{B.15})$$

B.2 Évolution de la capture des porteurs dans la boîte quantique.

L'évolution du nombre de porteurs dans la boîte peut être établi à partir du nombre de porteurs disponibles dans la couche de mouillage. Lorsqu'une impulsion lumineuse est absorbée par notre échantillon, des paires de porteurs sont générés sous excitation non résonante. Elles seront tout d'abord piégées dans la couche de mouillage, avant de relaxer dans la boîte. Penchons nous sur l'équation de l'évolution du nombre de paire électron-trou dans la couche de mouillage :

$$\frac{dn}{dt} = -An - Bn^2 \quad (\text{B.16})$$

avec $n(t)$ la densité de porteurs dans le puits. A est le terme de capture et recombinaison monomoléculaire et B celui de recombinaison bimoléculaire. L'équation (B.16) correspond à une équation différentielle de Bernoulli. Dont la solution est :

$$n(t) = \frac{An_0 \exp(-At)}{A + n_0 B (1 - \exp(-At))} \quad (\text{B.17})$$

où n_0 est la densité de porteurs initiale. A présent nous pouvons en déduire le taux de capture des paires électrons-trous dans la boîte quantique grâce à l'équation suivante :

$$\frac{d\mu}{dt} = VCn(t) \quad (\text{B.18})$$

avec V le volume de la boîte quantique, C la section de capture de la boîte quantique et μ le nombre moyen de paires dans la boîte quantique. Nous pouvons donc calculer l'évolution temporelle de μ :

$$\mu = VC \int_0^\infty \frac{An_0 \exp(-At)}{A + n_0B(1 - \exp(-At))} dt \quad (\text{B.19})$$

soit :

$$\mu = \frac{VC}{B} \ln \left(1 + \frac{n_0B}{A} \right) \quad (\text{B.20})$$

Dans notre cas nous n'avons pas accès directement à la valeur n_0 . Nous savons juste que cette valeur doit être proportionnelle à P_{in} , puissance de pompe incidente. Prenons le cas limite où $n_0 \rightarrow 0$. Par conséquent le terme $\frac{n_0B}{A} \rightarrow 0$ également nous pouvons donc faire un développement limité de l'équation (B.20) et nous obtenons :

$$\mu_{n_0 \rightarrow 0} = \frac{VC}{B} \frac{n_0B}{A} \Rightarrow n_0 = \frac{A\mu_{n_0 \rightarrow 0}}{VC} \quad (\text{B.21})$$

le nombre moyen d'excitons est donnée par :

$$\mu_{n_0 \rightarrow 0} = \frac{P_{in}}{P_{Sat}} \quad (\text{B.22})$$

où P_{Sat} est la puissance à laquelle l'intensité de la raie excitonique sature. Ce qui donne donc pour n_0 :

$$n_0 = \frac{AP_{in}}{VCP_{Sat}} \quad (\text{B.23})$$

En réinjectant la valeur de n_0 dans l'équation (B.21) nous obtenons donc la relation liant la puissance de pompe au nombre moyen de charge dans la boîte via la relation suivante :

$$\mu = \frac{VC}{B} \ln \left(1 + \frac{B}{VC} \frac{P_{In}}{P_{sat}} \right) \quad (\text{B.24})$$

Nous venons donc de démontrer la manière dont nous sommes parvenus à obtenir les modèles que nous utilisons dans le chapitre 3.

Annexe C

Communications

C.1 Publications régulières

Higher-order Photon correlations in pulsed photonic crystal nanolasers, D. Elvira, X. Hachair, V.B. Verma, R. Braive, G. Beaudoin, I. Robert-Philip, I. Sagnes, B. Baek, S.W. Nam, E.A. Dauler, I.A. Abram, M.J. Stevens and A. Beveratos, Phys. Rev. A. **84**, 061802(R) (2012)

Structural analysis of site-controlled InAs/InP quantum dots, B. Fain, D. Elvira, L. Le Gratiet, L. Largeau, G. Beaudoin, D. Troadec, I. Abram, A. Beveratos, I. Robert-Philip, G. Patriarche and I. Sagnes, J. Cryst. Growth **334**, 37 (2011)

Identification of the stimulated-emission threshold in high- β nanoscale lasers through phase-space reconstruction, X. Hachair, R. Braive, G.L. LIPPI, D. Elvira, L. Le Gratiet, A. Lemaitre, I. Abram, I. Sagnes, I. Robert-Philip, and A. Beveratos, Phys. Rev. A **83**, 053836 (2011)

Single InAs_{1-x}P_x/InP quantum dots as telecommunications-band photon sources, D. Elvira, R. Hosten, B. Fain, L. Monniello, A. Michon, G. Beaudoin, R. Braive, I. Robert-Philip, I. Abram, I. Sagnes and A. Beveratos, Phys. Rev. B **84**, 195302 (2011)

Electronic structure of cleaved InAsP/InP(001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, D. Elvira, C. David, G. Beaudoin, A. Beveratos, I. Robert-Philip, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, Appl. Phys. Lett. **97**, 171903 (2010)

Time-resolved spectroscopy of InAsP/InP(001) quantum dots emitting near 2 μ m, D. Elvira, A. Michon, B. Fain, G. Patriarche, G. Beaudoin, I. Robert-Philip, Y. Vachtomin, A. Divochiy, K. V. Smirnov, G. Gol'tsman, I. Sagnes, and A. Beveratos, Appl. Phys. Lett. **97**, 131907 (2010)

C.2 Publications de *proceedings*

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP(001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, A. Beveratos, D. Elvira, I. Robert-Philip, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, 23rd International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM), Berlin, Allemagne (2011)

One Step Nano-Selective Area Growth of Localized InAs/InP Quantum Dots For Single Photon Source Applications, N. Gogneau, L. Le Gratiet, R. Hostein, L. Largeau, G. Patriarche, G. Beaudoin, D. Elvira, B. Fain, A. Beveratos, I. Robert-Philip, and I. Sagnes, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **1228**, KK12-07 (2009)

Etude des propriétés optiques des Boîtes Quantiques (BQs) InAsP/InP en vue de la réalisation d'une source de photon unique émettant à 1.55 μm , R. Hostein, N. Gogneau, D. Elvira, B. Fain, L. Le Gratiet, L. Largeau, G. Beaudoin, G. Patriarche, I. Robert-Philip, I. Sagnes, and A. Beveratos, Congrès de la Société Française de Physique, Palaiseau (2009)

C.3 Présentations orales

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP (001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, 23rd International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM), Berlin, Allemagne (2011)(oral)

Mapping electronic wave functions of InAsP/InP quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, A. Beveratos, I. Robert-Philip, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, France-Japan workshop, Cachan (2011)(oral)

Mapping electronic wave functions of InAsP/InP quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, A. Beveratos, I. Robert-Philip, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, France-Japan workshop, Cachan (2011)(poster)

Atomic-scale characterization of InAs(P)/InP(001) site-controlled quantum dots by scanning transmission electron microscopy, B. Fain, D. Elvira, G. Beaudoin, L. Le Gratiet, D. Troadec, L. Largeau, A. Beveratos, I. Robert-Philip, G. Patriarche and I. Sagnes, European Workshop MOVPE, Wroklaw, Pologne (2011)(poster)

Towards a single photon source at telecommunication wavelength using InAsP/InP quantum dots, D. Elvira, R. Hostein, B. Fain, L. Le Gratiet, L. Largeau, G. Beaudoin, G. Patriarche, I. Robert-Philip, I. Abram, A. Beveratos and I. Sagnes, French-Israeli Symposium on Nano-optics, Aussois (2011)(poster)

Mapping electronic wave functions of InAsP/InP quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, A. Beveratos, I. Robert-Philip, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, French-Israeli Symposium on Nanooptics, Aussois (2011)(oral)(poster)

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP (001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, rencontre du groupe de recherche 24-26 Physique Quantique Mésooscopique - session "champ proche", Paris (2010)(oral)

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP (001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, 12^{èmes} journées de la matière condensée, Troies (2010)(oral)

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP (001) quantum dots, J.C. Girard, B. Fain, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, 18th International Vacuum Congress, Pékin, Chine (2010)(oral)

Towards a deterministic entangled and single photon source at telecommunication wavelength using InAsP/InP quantum dots, D. Elvira, R. Hostein, B. Fain, R. Braive, G. Beaudoin, L. Le Gratiet, I. Abram, I. Robert-Philip, I. Sagnes, and A. Beveratos, 12^{èmes} journées de la matière condensée, Troies (2010)(oral)

Site-controlled InAs/InP quantum dots grown by selective area MOVPE growth for single photon source applications, N. Gogneau, L. Le Gratiet, B. Fain, G. Patriarche, L. Largeau, G. Beaudoin, C. Ulysse, D. Elvira, R. Hostein, A. Beveratos, I. Robert-Philip and I. Sagnes, ESPS-NIS, Como, Italie (2010)(oral)

Structural and optical properties of site-controlled InAs/InP quantum dots grown by selective area MOVPE growth for single photon source applications, N. Gogneau, L. Le Gratiet, B. Fain, G. Patriarche, L. Largeau, G. Beaudoin, C. Ulysse, D. Elvira, R. Hostein, A. Beveratos, I. Robert-Philip and I. Sagnes, ICMOVPE XV, Nevada, Etats-Unis (2010)(oral)

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP (001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, Forum 2010 des microscopies à sonde locale, Mittelwihr (2010)(oral)

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of long wavelength InAsP/InP (001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, 13^{èmes} journées de la micro-nano-opto-électronique, Les Issambres (2010)(poster)

Towards a single photon source at telecommunication wavelength using InAsP/InP quantum dots, D. Elvira, R. Hostein, B. Fain, L. Le Gratiet, L. Largeau,

G. Beaudoin, G. Patriarche, I. Robert-Philip, I. Abram, A. Beveratos and I. Sagnes, 13^{èmes} journées de la micro-nano-opto-électronique, Les Issambres (2010) (*poster*)

Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of InAsP/InP (001) quantum dots, B. Fain, J.C. Girard, C. David, G. Patriarche, L. Largeau, D. Elvira, I. Robert-Philip, A. Beveratos, G. Beaudoin, I. Sagnes, and Z.Z. Wang, 7th assembly of SANDiE, Valence, Espagne (2010) (*oral*)

Towards a deterministic entangled and single photon source at telecom wavelength using InAsP/InP quantum dots, R. Hostein, M. Larque, D. Elvira, B. Fain, N. Gogneau, G. Beaudoin, I. Robert-Philip, I. Sagnes, and A. Beveratos, Workshop on Single and Entangled Photons, Boulder, Etats-Unis (2009) (*oral*)

Coupling Quantum Dots with Photonic Crystal Cavities : from single photon and entangled photon sources to thresholdless, large modulation bandwidth nanolasers, R. Hostein, R. Braive, S. Barbay, N. Gogneau, A. Lemaître, T. Karle, D. Elvira, B. Fain, L. Le Gratiet, G. Beaudoin, G. Patriarche, I. Robert-Philip, I. Sagnes, and A. Beveratos, Congrès de la Société française de Physique, Palaiseau (2009) (*oral*)

Localisation précise et déterministe de boîtes quantiques sélectives InAs/InP, N. Gogneau, L. Le Gratiet, G. Beaudoin, R. Hostein, D. Elvira, B. Fain, G. Patriarche, A. Beveratos, I. Robert-Philip, and I. Sagnes, Société française de Physique, Palaiseau (2009) (*poster*)

Coupling quantum dot with photonic crystal cavity, A. Beveratos, R. Hostein, R. Braive, S. Barbay, N. Gogneau, A. Lemaitre, O. Krebs, T. Karle, D. Elvira, B. Fain, L. Le Gratiet, L. Largeau, E. Cambril, G. Beaudoin, G. Patriarche, P. Voisin, I. Robert-Philip, and I. Sagnes, Journée des Boîtes Quantiques, Grenoble (2009) (*oral*)

Self-Organized and deterministically-grown single quantum dots at telecommunication wavelength, R. Hostein, N. Gogneau, D. Elvira, B. Fain, L. Le Gratiet, L. Largeau, G. Beaudoin, G. Patriarche, I. Robert-Philip, A. Beveratos, and I. Sagnes, Journée des Boîtes Quantiques, Grenoble (2009) (*poster*)

Bibliographie

- [1] L.GOLDSTEIN, F.GLAS, J.Y.MARZIN, M.N.CHARASSE and G.LE ROUX
Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices
Applied Physics Letters, **47**, 1099 (1985)
- [2] J.Y.MARZIN, J.M.GERARD, A.IZRAEL, D.BARRIER et G.BASTARD
Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs
Physical Review Letters, **73**, 716 (1994)
- [3] M.GRUNDMANN, J.CHRISTEN, N.N.LEDENTSOV, J.BOHRER and D.BIMBERG
Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots
Physical Review Letters, **74**, 4043 (1995)
- [4] J.M.GERARD, O.CABROL and B.SERMAGE
InAs quantum boxes : Highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si
Applied Physics Letters, **68**, 3123 (1996)
- [5] J.M.GERARD
in *Confined electrons and photons : new physics and applications*
Prospects of high efficiency quantum boxes obtained by direct epitaxial growth, p357 voir [6]
- [6] E.BURSTEIN and C.WEISBUCH
confined electrons and photons : new physics and applications
NATO Asi series, B240, Plenum, New York (1995)
- [7] K.BRUNNER, G.ABSTREITER, G.BOHM, G.TRANKLE and G.WEIMANN
Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure
Physical Review Letters, **73**, 1138 (1994)
- [8] J.J.FINLEY, A.D.ASHMORE, A.LEMAITRE, D.J.MOWBRAY, M.S.SKOLNICK, I.E.ITSKEVICH, P.A.MAKSYN, M.HOPKINSON and

T.F.KRAUSS

Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots

Physical Review B, **63**, 073307 (2001)

- [9] L.LANDIN, M.MILLER, M.E.PISTOL, C.E.PRYOR and L.SAMUELSON
Optical of individual InAs quantum dots in GaAs : few particle effects
Science, **280**, 262 (1998)
- [10] J.M.GERARD, B.SERMAGE, B.GAYRAL, B.LEGRAND, E.COSTARD and V.THIERRY-MIEG
Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity
Physical Review Letters, **81**, 1110 (1998)
- [11] 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.
Physical Review Letters, **72**, 210 (1994)
- [12] H.J.KIMBLE, M.DAGENAIS and L.MANDEL
Photon antibunching in resonance fluorescence.
Physical Review Letters, **39**, 691 (1977)
- [13] P.GRANGIER; G.ROGER and A.Aspect
Experimental evidence for a photon a photon anticorrelation effect on a beam splitter : a new light on single-photon interferences.
Europhysical Letters, **1**, 173 (1986)
- [14] A.ASPECT, G.ROGER, S.REYNAUD, J.DALIBARD and COHEN-TANNOUDJI
Time correlation between the two sidebands of the resonance fluorescence triplet.
Physical Review Letters, **45**, 617 (1980)
- [15] A.ASPECT, P.GRANGIER and G.ROGER
Experimental tests of realistic local theories via Bell's theorem.
Physical Review Letters, **47**, 460 (1981)
- [16] P.GOY, J.M.RAIMOND, M.GROSS and S.HAROCHE
Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission.
Physical Review Letters, **50**, 1903 (1983)
- [17] J.M.GERARD and B.GAYRAL
Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state

- microcavities.*
J.Lightwave Technol, **17**, 2089 (1999)
- [18] C.SANTORI, M.PELTON, G.SOLOMON, Y.DALE and Y.YAMAMOTO
Triggered single photons from a quantum dot.
Physical Review Letters, **86**, 1502 (2001)
- [19] E.MOREAU, I.ROBERT, L.MANIN, V.THIERRY-MIEG, J.M.GERARD and I.ABRAM
Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots
Physical Review Letters, **87**, 183601 (2001)
- [20] P.MICHLER, A.KIRAZ, C.BECHER, W.V.SCHOENFELD, P.M.RETROFF, L.ZHANG, E.HU and I.IMAMOGLU
A Quantum dot single photon turnstile device
Science, **290**, 1171 (2000)
- [21] A.KIRAZ, S.FALTH, C.BECHER, B.GAYRAL, W.V.SCHOENFELD, P.M.PETROFF, L.ZHANG, E.HU and I.IMAMOGLU
Photon correlation spectroscopy of a single quantum dot
Physical Review B, **65**, 161303 (2002)
- [22] A.IMAMOGLU, D.D.AWSCHALOM, G.BURKARD, D.P.VINCENZO, D.LOSS, M.SHERWIM and A.SMALL
Quantum information processing using quantum dot spins and cavity QED
Physical Review Letters, **83**, 4204 (1999)
- [23] P.CHEN, C.PIERMAROCCHI and L.J.SHAM
Control of exciton dynamics in nanodots for quantum operations
Physical Review Letters, **87**, 67401 (2001)
- [24] C.H.BENNET, F.BESSETTE, G.BRASSARD, L.SALVAIL and J.SMOLIN
Experimental quantum cryptography
Journal of Cryptology, **5**, 3 (1992)
- [25] D.P.DI.VICENZO
Quantum computation
Science, **270**, 255 (1995)
- [26] R.BROURI, A.BEVERATOS, J.P.POIZAT and P.GRANGIER
Single photon génération by pulsed excitation of a single dipole
Physical Review A, **62**, 063814 (2000)
- [27] A.MULLER, J.BREGUET and N.GISIN
Experimental demonstration of quantum cryptography using polarized photons

- in optical fiber over than 1Km*
Europhysical Letters, **23**, 383 (1993)
- [28] P.D.TOWNSEND, J.G.RARITY and P.R.TAPSTER
Single photon interference in 10Km long optical fibre interferometer
Elec. Lett., **29**, 634 (1993)
- [29] C.KURTSIEFER, S.MAYER, P.ZARDA and H.WEINFURTER
Stable solid-state source of single photons
Physical Review Letters, **85**, 290 (2000)
- [30] A.BEVERATOS, R.BROURI, T.GACOIN, J-P.POIZAT and P.GRANGIER
Non-classical radiation from diamond nanocrystals
Physical Review A, **64**, 061802 (2001)
- [31] T.BASCHE, W.E.MOERNER, M.ORRIT and H.TALON
Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid
Physical Review Letters, **69**, 1516 (1992)
- [32] B.LOUMIS and W.E.MOERNER
Single photons on demand from a single molecule at room temperature
Nature, **407**, 491 (2000)
- [33] L.FLEURY, J-M.SEGURA, G.ZUMOFEN, B.HECHT and U.P.WILD
Non-classical photon statistics in single-molecule fluorescence at room temperature
Physical Review Letters, **84**, 1148 (2000)
- [34] E.MOREAU, I.ROBERT, L.MANIN, V.THIERRY-MIEG, J.M.GERARD and I.ABRAM
A single-mode solid-state source of single photons based on isolated quantum dots in a micropillar
Applied Physics Letter, **79**, 2865 (2001)
- [35] A.T.ROSENBERGER, L.A.OROZCO and H.J.KIMBLE
Observation of absorption bistability with two level atoms in a ring cavity
Physical Review A, **28**, 2569 (1983)
- [36] F.DIEDRICH, E.PEIK, J.MCHEN, W.QUINT and H.WALTER
Observation of a phase transition of stored Laser Cooled ions
Physical Review Letters, **59**, 2931 (1987)
- [37] C.BRUNEL, B.LOUNIS, P.TAMARAT and M.ORRIT
Triggered source of single photons based on controlled single molecule fluorescence

- Physical Review Letters, **83**, 2722 (1999)
- [38] F.DE MARTINI, G.DI GIUSEPPE and M.MARROCCO
Single-mode generation of quantum photon states by excited single molecules in a microcavity trap
Physical Review Letters, **76**, 900 (1996)
- [39] R.BROURI, A.BEVERATOS, J.P.POIZAT and P.GRANGIER
Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond
Optics Letters, **25**, 1294 (2000)
- [40] A.GRUBER, A.DRABENSTEDT, C.TIETZ, L.FLEURY, J.WRACHTRUP, C.BORCZYSKOWSKI and C.VON BORCZYSKOWSKI
Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect center
Science, **276**, 2012 (1997)
- [41] A.DRABENSTEDT, L.FLEURY, C.TIETZ, F.JELEZKO, S.KILIN, A.NIZOVITZEV and J.WRACHTRUP
Low-temperature microscopy and spectroscopy on single defect centers in diamond
Physical Review B, **60**, 11503 (1999)
- [42] Alexios BEVERATOS
Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés individuels dans le diamant : application à la cryptographie quantique
Thèse de doctorat, Université Paris XI (2002)
- [43] A.BEVERATOS, R.BROURI, T.GACOIN, A.VILLING, J.P.POIZAT and P.GRANGIER
Single photon quantum cryptography
Physical Review Letters, **89**, 187901 (2002)
- [44] G.MESSIN, J.P.HERMIER, E.GIACOBINO, P.DESBIOLLES and M.DAHAN
Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals
Optics Letters, **26**, 1891 (2001)
- [45] M.NIRMAL, B.O.DABBOUSI, M.G.BAWENDI, J.J.MACKLIN, J.K.TRAUTMAN, T.D.HARRIS and L.E.BRUS
Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals
Nature, **383**, 802 (1996)
- [46] AL and M.ROSEN
Random telegraph signal in the photoluminescence intensity of a single quantum

dot

Physical Review Letters, **78**, 1110 (1997)

- [47] F.CICHOS, C.VONBORCZYSKOWSKI and M.ORRIT
Power-law intermittency of single emitters
Current Opinion in Colloid and Interface Science, **12**, 272 (2007)
- [48] B.MAHLER, P.SPINICELLI, S.BUIL, X.QUELIN, J.P.HERMIER and B.DUBERTRET
Towards non-blinking colloidal quantum dots
Nature Materials, **7**, 659 (2008)
- [49] Céline VION
Couplage de nanocristaux colloïdaux à des structures photoniques, contrôle de l'émission spontanée
Thèse de doctorat, Université Paris VI (2009)
- [50] 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 micro-disk structure
Applied Physics Letters, **78**, 3932 (2001)
- [51] M.Winger, T.Volz, G.Tarel, S.Portolan, A.Badolato, K.Hennessy, E.Hu, A.Beveratos, J.Finley, V.Savona and A.Imamoglu
Explanation of photonic correlation in the far-off resonance optical emission from a quantum dot cavity system.
Physical Review Letters, **103**, 207403 (2009)
- [52] P.J.VAN VELDHOVEN, N.CHAUVIN, A.FIORE and R.NOTZEL
Low density 1.55 μ m InAs/InGaAsP/InP (100) quantum dots enabled by an ultrathin GaAs interlayer.
Applied Physics Letters, **95**, 113110 (2009)
- [53] K.TAKEMOTO, Y.SAKUMA, S.HIROSE, T.USUKI, N.YOKOYAMA, T.MIYAZAWA, M.TAKATSU and Y.ARAKAWA
Single InAs/InP quantum dot spectroscopy in 1.3-1.5 μ m telecommunication band.
Physica E, **26**, 185 (2005)
- [54] T.KURODA, Y.SAKUMA, K.SAKODA, K.TAKEMOTO and T.USUKI
Single-photon interferography in InAs/InP quantum dots emitting at 1300nm wavelength.
Applied Physics Letters, **91**, 223113 (2007)

- [55] G.SEK, P.PODEMSKI, A.MUSIAL, J.MISIEWICZ, S.HEIN, S.HOFLING and A.FORCHEL
Exciton and biexciton emission from a single InAs/InP quantum dash.
Journal of Applied Physics, **105**, 086104 (2009)
- [56] M.GENDRY, C.MONAT, J.BRAULT and al
From large to low height dispersion for self organised InAs quantum sticks emitting at 1.55 μ m on InP(001).
Journal of Applied Physics, **95**, 4761 (2004)
- [57] G.SAINT GIRONS, A.MICHON, I.SAGNES, G.BEAUDOIN and G.PATRIARCHE
InAs/InP(001) quantum dots and quantum sticks grown by MOVPE : Shape, anisotropy and formation process
AIP Conference Proceeding, **893**, 71 (2007)
- [58] A.MICHON, R.HOSTEIN, G.PATRIARCHE, N.GOGNEAU, G.BEAUDOIN, A.BEVERATOS, I.ROBERT-PHILIP, S.LAURENT, S.SAUVAGE, P.BOUCAUD and I.SAGNES
Metal organic vapor phase epitaxy of InAsP/InP(001) quantum dot for 1.55 μ m applications : Growth, structural and optical properties
Journal of Applied Physics, **104**, 043504 (2008)
- [59] S.LAURENT, S.VAROUTSIS, L.LE GRATIET, A.LE MAITRE, I.SAGNES, F.RAINERI, I.ROBERT-PHILIP and I.ABRAM
Indistinguishable single photons from a single InAs Quantum dot in a photonic crystal slab cavity
Physica E : Low-dimensional systems and nanostructures, **32**, 480 (2006)
- [60] A.ZRENNER, L.V.BUTOV, M.HAGN, G.ABSTREITER, G.BOHM and G.WEIMANN
Quantum dots formed by interface fluctuations in AlAs/GaAs coupled quantum well structures
Physical Review Letters, **72**, 3382 (1994)
- [61] Emmanuelle PETER
Couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique de GaAs en microdisque
Thèse de doctorat, Université Paris XI (2006)
- [62] J.M.GERARD and B.GAYRAL
Strong purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid state microcavities
J.Lightwave Technol., **17**, 2089 (1999)
- [63] 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**, 5552 (2002)

- [64] T.H.STIEVATER, X.LI, D.G.STEEL, D.Gammon, D.S.KATZER, D.PARK, C.PIERMAROCCHI and L.J.SHAM
Rabi oscillation of excitons in single quantum dots
Physical Review Letters, **87**, 133603 (2001)
- [65] Mark FOX
Quantum optics : an introduction
Édition : Oxford (2006)
- [66] E.M.PURCELL, H.C.TORREY and R.V.POUND
Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid
Physical Review, **69**, 37 (1946)
- [67] Y.HALIOUA, A.BAZIN, P.MONNIER, T.J.KARLE, G.ROELKENS, I.SAGNES, R.RAJ and F.RAINERI
Hybrid III-V semiconductor/silicon nanolaser
Optics Express, **19**, 9221 (2011)
- [68] E.YABLONOVITCH
Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics.
Physical Review Letters, **58**(20), 2059-2062 (1987)
- [69] S.John
Strong localisation of photons in certain disordered dielectric superlattices.
Physical Review Letters, **58**(23), 2486-2489 (1987)
- [70] A.SCHWOOB-VIASNOFF
Propagation et émission dans des guides multimodes à cristaux photoniques bidimensionnels.
Thèse de doctorat, Université Paris XI (2004)
- [71] A.BLANCO, E.CHOMSKI, S.GRABTCHAK, M.IBISATE, S.JOHN, S.W.LEONARD, C.LOPEZ, F.MESEGUER, H.MIGUEZ, J.P.MONDIA, G.A.OZIN, O.TOADER and H.M.VAN DRIEL
Large-scale synthesis of a silicon photonic crystal with a complete three-dimensional bandgap near 1.5micrometers.
Nature, **405**(6785), 437-440 (2000)
- [72] R.D.MEADE, K.D.BROMMER, A.M.RAPPE and J.D.JOANNOPOULOS
Existence of a photonics band gap in two dimensions.
Applied Physics Letters, **61**(4), 495-497 (1992)

- [73] Y.AKAHANE, T.ASANO, B.S.SONG and S.NODA
High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal.
Nature, **425**(6961), 944-947 (2003)
- [74] C.SAUVAN, P.LALANNE and J.P.HUGONIN
Slow-wave effect and mode-profile matching in photonic crystal microcavities.
Physical Review B, **71**(16), 165118 (2005)
- [75] C.SAUVAN, P.LALANNE and J.P.HUGONIN
Photonics : Tuning holes in photonic-crystal microcavities.
Nature, **429**(6988), (2004)
- [76] J-M.GERARD
Topics of applied physics
Editeur P.Michler, Springer Verlag, Heidelberg, (2003)
- [77] J.P.REITHMAIER, G.SEK, A.LOFFLER, C.HOFMANN, S.KUHN,
S.REITZENSTEIN, L.KELDYSH, V.KULAKOVSKII, T.L.REINECKE
and A.FORCHEL
Strong coupling in a quantum dot micropillar cavity system
Nature, **432**, 197 (2004)
- [78] J.M.GERARD, D.BARRIER, J.Y.MARZIN, R.KUSZELEWICZ,
E.COSTARD, V.THIERRY-MIEG and T.RIVERA
*Quantum boxes as active probes for photonic microstructures : the pillar
microcavity case*
Applied Physics Letters, **69**, 449 (1996)
- [79] T.RIVERA, J.P.DEBRAY, J.M.GERARD, B.LEGRAND, L.MANIN-
FERLAZZO and J.L.ODAR
*Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection
spectroscopy*
Applied Physics Letters, **74**, 911 (1999)
- [80] J.M.GERARD, B.SERMAGE, B.GAYRAL, B.LEGRAND, E.COSTARD and
V.THIERRY-MIEG
*Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical
microcavity*
Physical Review Letters, **81**, 1110 (1998)
- [81] E.PETER, P.SENELLART, D.MARTROU, A.LEMAITRE, J.HOURS,
J.M.GERARD and J.BLOCH
*Exciton-photon strong coupling regime for a single quantum dot embedded in a
microcavity*
Physical Review Letters, **95**, 067401 (2005)

- [82] B.GAYRAL, J.M.GERARD, A.LEMAITRE, C.DUPUIS, L.MANIN and J.L.PELOUARD
High-Q wetched GaAs microdisks containing InAs quantum boxes
Applied Physics Letters, **75**, 1908 (1999)
- [83] B.S.SONG, S.NODA, T.ASANO and Y.AKAHANE
Ultra-high-Q photonic double heterostructure nanocavity
Nature materials, **4**, 207 (2005)
- [84] S.LAURENT, S.VAROUTSISI, L.LE GRATIET, A.LEMAITRE, I.SAGNES, F.RAINERI, J.A.LEVENSON, I.ROBERT-PHILIP and I.ABRAM
Indistinguishable single photons from a single quantum dot in two dimensional photonic crystal cavity
Applied Physics Letters, **87**, 163107 (2005)
- [85] O.J.PAINTER, A.HUSSAIN, A.SCHERER, J.D.O'BRIEN, I.KIM and P.D.DAPKUS
Room temperature photonic crystal defect lasers at near-infrared wavelengths in InGaAsP
J.Lightwave Technol, **17**, 2082 (1999)
- [86] T.YOSHIE, J.VUSCKOVIC, A.SCHERER, H.CHEN and G.DEPPE
High quality two-dimentional photonic crystal slab cavities
Applied Physics Letters, **79**, 4289 (2001)
- [87] Y.GONG and J.VUCKOVIC
Design of plasmon cavities for solid-state cavity quantum electrodynamics applications
Applied Physics Letters, **90**, 033113 (2007)
- [88] M.K.KIM, S.H.LEE, M.CHOI, B.H.AHN, N.PARK, Y.H.LEE and B.MIN
Low loss surface-plasmonic nanobeam cavities
Optics Express, **18**, 11089 (2010)
- [89] J.J.GREFFET
Nanoantennas for light emission
Sciences, **308**, 1561 (2005)
- [90] P.J.SCHUK, D.P.FROMM, A.SUNDARAMURTHY, G.S.KINO and W.E.MOERNER
Improving the mismatch between light and nanoscale objects with gold bowtie nanoantennas
Physical Review Letters, **94**, 017402 (2005)
- [91] P.MUHLSCHEGEL, H.J.EISLER, O.J.F.MARTIN, B.HECHT and D.W.POHL

- resonant optical antennas*
Sciences, **308**, 1607 (2005)
- [92] S.KHUN, U.HAKANSON, L.ROGOBETE and V.SANDOGHDAR
Enhancement of single-molecule fluorescence using a gold nanoparticle as an optical nanoantenna
Physical Review Letters, **97**, 017402 (2006)
- [93] A.G.CURTO, G.VOLPE, T.H.TAMINIAU, M.P.KREUZER, R.QUIDANT and N.F.VAN HULST
Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna
Sciences, **329**, 930 (2010)
- [94] O.GAZZANO, S.MICHAELIS DE VASCONCELLOS, K.GAUTHRON, C.SYMONDS, J.BLOCH, P.VOISIN, J.BELLESA, A.LEMAIRE and P.SENELLART
Evidence for confined Tamm plasmon modes under metallic microdisks and application to the control of spontaneous optical emission
Physical Review Letters, **107**, 247402 (2011)
- [95] I.S.MAKSYMOM, M.BESBES, J.P.HUGONIN, J.YANG, A.BEVERATOS, I.SAGNES, I.ROBERT-PHILIP and P.LALANNE
Metal-coated nanocylinder cavity for broadband nonclassical light emission.
Physical Review Letters, **105**, 180502 (2010)
- [96] Alfred CHO.
Molecular Beam Epitaxy.
American institute of physics (1994)
- [97] A.PONCHET, A.LE CORRE, H.L'HARIDON, B.LAMBERT and S.SALAUN.
Relationship between self-organization and size of InAs island on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy.
Applied physics Letters **67** 1850 (1995)
- [98] M.GENDRY, C.MONAT, J.BRAULT, P.REGRENY, G.HOLLINGER, B.SALEM, G.GUILLOT, T.BENYATTOU, C.BRU-CHEVALLIER, G.BREMOND and O.MARTY .
From large to low height dispersion for self-organized InAs quantum sticks emitting at 1.55 μ m on InP (001).
Journal of applied physics **95** 4761 (2004)
- [99] W.H JIANG, H.Z.XU, B.XU, X.L.YE, H.Y.LIU, W.ZHOU, Z.Z.SUN, Y.F.LI, J.B.LIANG and Z.G.WANG.
Fabrication of InGaAs quantum dots with an underlying InGaAlAs layer on GaAs (100) and high index substrates by molecular beam epitaxy.

Journal of Crystal Growth **205** 607 (1999)

- [100] T.MANO, K.WATANABE, S.TSUKAMOTO, H.FUJIOKA, M.OSHIMA and N.KOGUCHI.
Fabrication of InGaAs quantum dots on GaAs (001) by droplet epitaxy.
Journal of Crystal Growth **209** 504 (2000)
- [101] T.J.KRZYZEWSKI and T.S.JONES.
Nanostructure formation in InAs/InP(001) heteroepitaxy : Importance of surface reconstruction.
Physical Review B **78**, 155307 (2008)
- [102] S.FRECHENGUES, N.BERTRU, V.DROUOT, B.LAMBERT, S.ROBINET, S.LOUALICHE, D.LACOMBE and A.PONCHET.
Wavelength tuning of InAs quantum dots grown on (311)B InP.
Applied physics Letters **74** 3356 (1999)
- [103] G.SAINT-GIRONS, A.MICHON, I.SAGNES, G.BEAUDOIN and G.PATRIARCHE.
Thermodynamic description of the competition between quantum dots and quantum dashes during metalorganic vapor phase epitaxy in the InAs/InP(001) system : Experiment and theory.
Physical Review B **74**, 245305 (2006)
- [104] G.B.STRINGFELLOW
Organometallic vapor-phase epitaxy : theory and practice.
Ouvrage de référence sur la MOVPE, (Academic press)
- [105] Guillaume SAINT-GIRONS
Épitaxie en phase vapeur aux organométalliques et caractérisations structurales et optiques de boîtes quantiques d'In(Ga)As pour l'émission autour de 1.3 μ m sur substrat de GaAs
Thèse de doctorat, Université Paris VI (2002)
- [106] Adrien MICHON
Étude de la croissance de boîtes quantiques InAs/InP(001) par épitaxie en phase vapeur aux organométalliques pour des applications à 1.55 μ m
Thèse de doctorat, Université Paris VI (2007)
- [107] M.BERTI, A.V.DRIGO, A.GIULIANI, M.MAZZER, A.CAMPORESSE, G.ROSSETTO and T.TORZO
High power 1.3 μ m InAs/GaInAs/GaAs QD laser grown in a multiwafer MBE production system
Journal of Applied Physics **80**, 1931 (1996)

- [108] T.R.RAMACHANDRAN, A.MADHUKAR, I.MUKHAMETZHANOV, R.HEITZ, A.KALBURGE, Q.XIE, and P.CHEN
Nature of Stranski-Krastanow growth of InAs on GaAs (001)
Sci. Technol. 16, 1330 (1997)
- [109] Bruno FAIN
Etude de boîte quantique InAsP/InP (001) par microscopie électronique en transmission et microscopie à effet tunnel.
Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2012)
- [110] G.N.GOL'TSMAN, O.OKUNEV, G.CHULKOVA, A.LIPATOV, A.SEMENOV, K.SMIRNOV, B.VORONOV, A.DZARDANOV, C.WILLIAMS and R.SOBOLEWSKI.
Picosecond supraconducting single-photon optical detector
Applied physics letters **79** (6), 705-707 (2001)
- [111] A.VEREVKIN, J.ZHANG, R.SOBOLEWSKI, A.LIPATOV, O.OKUNEV, G.CHULKOVA, A.KORNEEV, K.SMIRNOV, G.N.GOL'TSMAN and A.SEMENOV.
Detection efficiency of large active area NbN superconducting single photon detector in the ultraviolet to near infrared range
Applied physics letters **80** (25), 4687-4689 (2002)
- [112] A.VEREVKIN, A.PEARLMAN, W.SLYSZ, J.ZHANG, M.CURRIER, A.KORNEEV, G.CHULKOVA, O.OKUNEV, P.KOUMINOV, K.SMIRNOV, B.VORONOV, G.N.GOL'TSMAN and R.SOBOLEWSKI.
Ultrafast supraconducting single photon detectors for near infrared wavelength quantum communications.
Applied physics letters **51** (9), 1447-1458 (2004)
- [113] H.K.CHOI and S.J.EGLASH.
High-power multiple quantum well GaInAsSb/AlGaAsSb diode lasers emitting at 2.1 μ m with low threshold current density.
Applied Physics Letter **61**, 1154 (1992)
- [114] L.CERUTTI, A.GARNACHE, F.GENTY, A.OUVRARD and C.ALIBERT.
Low threshold, room temperature laser diode pumped Sb-based VECSEL emitting around 2.1 μ m.
Electronics Letters **39**, Issue 3, p 290-292 (2003)
- [115] D.DONETSKY, G.KIPSHIDZE, L.SHTERENGAS, T.HOSODA and G.BELENKY.
2.3 μ m type-I quantum well GaInAsSb/AlGaAsSb/GaSb laser diodes with quasi-CW output power of 1.4 W.
Electronics Letters **43**, Issue 15, p 810-812 (2007)

- [116] M.ORTSIEFER, G.BOHM, M.GRAU, K.WINDHORN, E.RONNEBERG, J.ROSSKOPF, R.SHAU, O.DIER, and M-C.AMANN.
Electrically pumped room temperature CW VCSELs with 2.3 μ m emission Wavelength.
Electronics Letters **42**, Issue 11, p 640-641 (2006)
- [117] Y.KAWAMURA, T.NAKAGAWA and N.INOUE.
Lasing characteristics of InGaAsSbN quantum well laser diodes at 2 μ m wavelength region on InP substrates.
Japanese Journal of applied physics **44** 6000 (2005)
- [118] V.M.USTINOV, A.E.ZHUKOV, A.Yu.EGOROV, A.R.KOVSH, S.V.ZAITSEV, N.Yu.GORDEEV, V.I.KOPCHATOV, N.N.LEDENTSOV, A.F.TSATSUL'NIKOV, B.V.VOLOVIK, P.S.KOP'EV, Z.I.ALFEROV, S.S.RUVIMOV, Z.LILIENTAL-WEBER and D.BIMBERG.
Low threshold quantum dot injection laser emitting at 1.9 μ m.
Electronics Letters **34**, Issue 7, p 670-672 (1998)
- [119] Z.YIN, X.TANG, W.LIU, D.ZHANG and A.DU.
Effects of In_xGa_{1-x} matrix layer on InAs quantum dot formation and their emission wavelength.
Journal of applied physics **100** 033109 (2006)
- [120] R.HOSTEIN, A.MICHON, G.BEAUDOIN, N.GOGNEAU, G.PATRIARCHE, J-Y.MARZIN, I.ROBERT-PHILIP, I.SAGNES and A.BEVERATOS.
Time resolved characterization of InAsP/InP quantum dots emitting in the C-band telecommunication window.
Applied physics letters **93**, 073106 (2008)
- [121] J.HOURS, P.SENELLART, E.PETER, A.CAVANNA and J.BLOCH.
Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot.
Physical Review B **71**, 161306(R) (2005)
- [122] Charles CORNET
Propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP.
Thèse de doctorat, INSA Rennes (2006)
- [123] Richard HOSTEIN
Etude des propriétés optiques et dynamiques des boîtes quantiques InAsP/InP [001]. Application à la réalisation de sources de photons uniques et lasers à cristaux photoniques émettant à 1.5 μ m.
Thèse de doctorat, Université Paris VII (2009)

- [124] V.B.VERMA, M.JSTEVENS, K.LSILVERMAN, N.L.DIAS, A.GARG, J.J.COLEMAN and R.P.MIRIN.
Photon antibunching from a single lithographically defined InGaAs/GaAs quantum dot.
Optics Express, **19**, 4182 (2011)
- [125] V.G.Dorogan, YU.I.Mazur, E.Marega JR., G.G.Tarasov, M.E.Ware and G.J.Salamo
Hybridized quantum dot-wetting layer states in photoluminescence of In(Ga)As/GaAs dot chain sample
Journal of applied physics **105**, 124304 (2009)
- [126] Emmanuel MOREAU
Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semi-conductrice dans une cavité optique
Thèse de doctorat, Université paris Sud VI (2002)
- [127] J.J.FINLEY, A.D.ASHMORE, A.Lemaitre, D.J.MOWBRAY, M.S.SKOLNICK, I.E.ITSKEVICH, P.A.MAKSYM, M.HOPKINSON and T.F.KRAUSS
Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots.
Physical Review B, **63**, 073307 (2001)
- [128] M.GONG, W.ZHANG, G.C.GUO and L.HE
Atomistic pseudopotential theory of optical properties of exciton complexes in InAs/InP quantum dots.
Applied Physics Letters, **99**, 231106 (2011)
- [129] E.MOREAU, I.ROBERT, L.MANIN, V.THIERRY-MIEG, J.M.GERARD and I.ABRAM
Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots.
Physical Review Letter, **87**, 183601 (2001)
- [130] D.ELVIRA, R.HOSTEIN, B.FAIN, L.MONNIELLO, A.MICHON, G.BEAUDOIN, R.BRAIVE, I.ROBERT-PHILIP, I.ABRAM, I.SAGNES and A.BEVERATOS
Single InAsP/InP quantum dots as telecommunications-band photon .
Physical Review B, **84**, 195302 (2011)
- [131] A.FIORE, P.BORRI, W.LANGBEIN, J.M.HVAM, U.OESTERLE, R.HOUDRE, R.P.STANLEY and M.LLEGEMS.
Time-resolved optical caractérisation of InAs/InGaAs quantum dots emitting at 1.3 μ m.
Applied Physics Letters, **76**, 3430 (2000)

- [132] B.FAIN, I.ROBERT-PHILIP, A. BEVERATOS, C. DAVID, Z. Z. WANG, I. SAGNES, and J. C. GIRARD
Discretization of Electronic States in Large InAsP/InP Multilevel Quantum Dots Probed by Scanning Tunneling Spectroscopy.
Physical Review Letter, **108**, 126808 (2012)
- [133] Y.VARSHNI
Temperature dependance of the energy gap in semiconductors
Physica, 34(1) : 149-154 (1967)
- [134] I.VURGAFTMAN, J.R.MEYER and L.R.RAM-MOHAN
Band parameters for III-V compound semiconductor and their alloys.
Journal of Applied Physics, **89**, 5815-5875 (2001)
- [135] YU.I.MAZUR, S.NODA, G.G.TARASOV, V.G.DOROGAN, G.J.SALAMO, O.BIERWAGEN, W.T.MASSELINK, E.A.DECUIR.JR and M.O.MANASREH
Excitonic band edges and optical anisotropy of InAs/InP quantum dot structures.
Journal of Applied Physics, **103**, 054315 (2008)
- [136] L.BESOMBES, K.KHENG, L.MARSHAL and H.MARIETTE
Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission.
Physical Review B, **63**, 155307 (2001)
- [137] P.BORRI, W.LANGBEIN, S.SCHNEIDER, U.WOGGON, R.L.SELLIN, D.OUYANG and D.BIMBERG
Ultralong dephasing time in InGaAs quantum dots.
Physical Review Letter, **87**, 157401 (2001)
- [138] I.FAVERO, A.BERTHELOT, G.CASSABOIS, C.VOISIN, C.DELALANDE, PH.R.FERREIRA and J.M.GERARD
Temperature dependance of the zero-phonon linewidth in quantum dots : An effect of the fluctuating environment
Physical Review B, **75**(7), 073308 (2007)
- [139] M.BAYER and A.FORCHEL
Temperature dependance of the exciton homogeneous linewidth in InGaAs/GaAs quantum dots
Physical Review B, **65**, 041308 (R) (2002)
- [140] A.BERTHELOT, G.CASSABOIS, C.VOISIN, C.DELALANDE, R.FERREIRA, PH.ROUSSIGNOL, J.SKIBA-SZYMANSKA, R.KOLODKA, A.TARTAKOVSKI, M.HOPKINSON and M.S.SKOLNICK
Voltage controlled motional narrowing in a semiconductor quantum dot
New Journal of Physics, **11**, 093032 (2009)

- [141] A.BERTHELOT, I.FAVERO, G.CASSABOIS, C.VOISIN, C.DELALANDE, PH ROUSSIGNOL, R.FERREIRA and J.M.GERRARD
Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot.
Nature Physics, **2**(11), 759-764 (2006)
- [142] C.KAMMERER, G.CASSABOIS, C.VOISIN, C.DELANDE, PH.ROUSSIGNOL, A.LEMAITRE and J.M.GERARD
Efficient acoustic phonon broadening in self-assembled InAs/GaAs quantum dots.
Physical Review B, **65**, 033313 (2001)
- [143] Spyridon VAROUTSIS
Génération de photons uniques indiscernables par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique
Thèse de doctorat, Université paris Sud XI (2005)
- [144] S.LAURENT, S.VAROUTSIS, L.LE 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 Letter, **87**, 163107 (2005)
- [145] C. KAMMERER, C. VOISIN, G. CASSABOIS, C. DELALANDE, PH. 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.
Physical Review B, **66**, 041306 (2002)
- [146] R.HANBURY BROWN and R.Q.TWISS
A Test of a New Type of Stellar Interferometer on Sirius.
Nature, **178**, 1046-1048 (1956)
- [147] R.BRAIVE, L.Le GRATIET, S.GUILET, G.PATRIARCHE, A.LEMAITRE, A.BEVERATOS, I.ROBERT-PHILIP and I.SAGNES
Inductively coupled plasma etching of GaAs suspended photonic crystal cavities.
Journal of vacuum science & technology B, **27**, 1909-1914 (2009)
- [148] Stéphane LAURENT
Cavités à bande interdite photonique bidimensionnelle et application à une source de photons uniques indiscernables.
Thèse de doctorat, Université Paris VI (2006)
- [149] B.S.SONG, S.NODA, T.ASANO and Y.AKAHANE
Ultra-high-Q photonic double-heterostructure nanocavity.

Nature Mater, **4**(3), 207-210 (2005)

- [150] R.HERMANN, T.SUNNER, T.HEIN, A.LOFFLER, M.KAMP and A.FORCHEL

Ultrahigh-quality photonic crystal in GaAs.

Optics Letters, **31**(9), 1229-1231 (2006)

- [151] E.WEIDNER, S.COMBRIE, N.V.Q.TRAN, A.DE ROSSI, J.NAGLE, S.CASSETTE, A.TALNEAU and H.BENISTY

Achievement of ultra-high quality factors in GaAs photonic crystal membrane nanocavity.

Applied Physics Letters, **89**(22), 221104 (2006)

- [152] G.Vecchi, F.RAINERI, I.SAGNES, A.YACOMOTTI, P.MONNIER, T.J.KARLE, K-H.LEE, R.BRAIVE, L.LE GRATIET, S.GUILET, G.BEAUDOIN, A.TALNEAU, S.BOUCHOULE, A.LEVENSON and R.RAJ.

Continuous-wave operation of photonic band-edge laser near 1.55 μ m on silicon wafer.

Optics Express, **15**, 7551 (2007)

- [153] Rémy BRAIVE

Contrôle de l'émission spontanée dans les cristaux photoniques.

Thèse de doctorat, Université Paris VII (2008)

- [154] U.MOHIDEEN, R.E.SLUSHER, F.JAHNKE and S.W.KOCH

Semiconductor microlaser linewidths.

Physical Review Letters, **73**(13), 1785-1788 (1994)

- [155] G.BJORK, A.KARLSSON and Y.YAMAMOTO

Definition of a laser threshold.

Physical Review A, **50**, 1675-1680 (1994)

- [156] Mathieu LARQUE

Vers la génération de sources de paires de photons intriquées à partir de boîtes quantiques en cavité à cristal photonique.

Thèse de doctorat, Université Paris VI (2009)

- [157] R.HOSTEIN, A.MICHON, G.BEAUDOIN, N.GOGNEAU, G.PATRIARCHE, J-Y.MARZIN, I.ROBERT-PHILIP, I.SAGNES and A.BEVERATOS

Time-resolved characterization of InAsP/InP quantum dots emitting in the C-band telecommunication window.

Applied Physics Letters, **93**, 073106 (2008)

- [158] P.R.RICE and H.J.CARMICHAEL

Photon statistics of a cavity-QED laser : A comment on the laser-phase

- transition analogy.*
Physical Review A, **50**, 1675 (1994)
- [159] R.LOUDON
The quantum theory of light.
Third edition Oxford university press, oxford (2000)
- [160] M.J.STEVENS, B.BAEK, E.A.DAULER, A.J.KERMAN, R.J.MOLNAR,
S.A.HAMILTON, K.K.BERGGREN, R.P.MIRIN and S.W.NAM
High-order temporal coherences of chaotic and laser light.
Optics Express, **18**, 1430 (2010)
- [161] D.ELVIRA, X.HACHAIR, V.B.VERMA, R.BRAIVE, G.BEAUDOIN,
I.ROBERT-PHILIP, I.SAGNES, B.BAEK, S.W.NAM, E.A.DAULER,
I.ABRAM, M.J.STEVENS and A.BEVERATOS.
Higher-order photon correlations in pulsed photonic crystal nanolasers.
Physical Review A, **84**, 061802(R) (2011)
- [162] B.FAIN, D.ELVIRA, L.Le GRATIET, L.LARGEAU, G.BEAUDOIN,
D.TROADEC, I.ABRAM, A.BEVERATOS, I.ROBERT-PHILIP,
G.PATRIARCHE and I.SAGNES
Structural analysis of site-controlled InAs/InP quantum dots.
Journal of Crystal Growth, **334**, 37-39 (2011)
- [163] M.H.BAIER, S.WATANABE, E.PELUCCHI and E.KAPON
*High uniformity of site-controlled pyramidal quantum dots grown on prepatter-
ned substrates*
Applied Physics Letters, **84**, 1943 (2004)
- [164] D.CHITHRANI, R.L.WILLIAMS, J.LEFEBVRE, P.J.POOLE and
G.C.AERS
*Optical spectroscopy of single, site-selected, InAs/InP self assembled quantum
dots*
Applied Physics Letters, **84**, 978 (2004)
- [165] S.KIRAVITTAYA, A.RASTELLI and O.G.SCHMIDT
*Photoluminescence from seeded three dimensional InAs/GaAs quantum dot
crystals*
Applied Physics Letters, **88**, 043112 (2006)
- [166] E.D.PALIK
Handbook of optical constants of solids.
Academic Press, New York (1985)
- [167] O.GAZZANO, S.MICHAELIS DE VASCONCELLOS, K.GAUTHRON,
C.SYMONDS, J.BLOCH, P.VOISIN, J.BELLESA, A.LEMAITRE and

P.SENELLART

Evidence for confined tarnn plasmon modes under metallic microdisks and application to the control of spontaneous optical emission .

Physical Review Letters, **107**, 247402 (2011)