HAL
open science

Spectroscopie optique de nanostructures GaN/AlN insérées dans des microcavités planaires et des microdisques

Julien Selles

To cite this version:

Julien Selles. Spectroscopie optique de nanostructures GaN/AlN insérées dans des microcavités planaires et des microdisques. Autre [cond-mat.other]. Université Montpellier, 2015. Français. NNT : 2015MONTS236 . tel-02068182

HAL Id: tel-02068182

https://theses.hal.science/tel-02068182v1

Submitted on 14 Mar 2019

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de Docteur

Délivré par **l'Université de Montpellier**

Préparée au sein de l'école doctorale **Informations, Structures et Systèmes**
Et de l'unité de recherche **Laboratoire Charles Coulomb**

Spécialité : **Physique**

Présentée par **Julien Sellés**

Spectroscopie optique de nanostructures GaN/AlN en microcavités planaires et en microdisques

Soutenue le 7 décembre 2015 devant le jury composé de

M. Carlo SIRTORI	Rapporteur
Mme Eva MONROY	Rapporteur
M. Fabrice SEMOND	Examinateur
Mme Maria TCHERNYCHEVA	Examinatrice
M. Jean-Louis BANTIGNIES	Président du jury
M. Guillaume CASSABOIS	Directeur de thèse
M. Thierry GUILLET	Directeur de thèse
Mme Christelle BRIMONT	Membre invitée

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au laboratoire Charles Coulomb, unité mixte de recherche du CNRS et l'Université de Montpellier, et financé par le labex GaNeX. Je tiens à remercier les directeurs successifs du laboratoire, Jean-Louis Sauvajol et Pierre Lefebvre, ainsi que Jean-Yves Duboz, coordinateur national du labex GaNeX.

Je tiens également à remercier Carlo Sirtori et Eva Monroy pour avoir accepté de juger mes travaux, ainsi que Maria Tchernycheva, Fabrice Semond et Jean-Louis Bantignies pour leur participation au jury.

Mes plus sincères et profonds remerciements vont à mes deux directeurs de thèse, Guillaume Cassabois et Thierry Guillet. Merci Thierry de m'avoir initié et appris à apprécier l'optique expérimentale dès la licence. Merci Guillaume de m'avoir fait découvrir le monde de l'optique des semi-conducteurs lors de mon stage de M1 et de m'avoir renouvelé ta confiance par deux fois, en particulier pour cette thèse. J'ai eu la chance d'apprendre énormément de choses à vos côtés et de profiter pendant trois ans de votre pédagogie, de votre rigueur scientifique et votre bienveillance. J'espère partir en étant (un peu) imprégné de toutes ces qualités.

Un grand merci à Pierre Valvin pour son aide, son soutien et sa passion communicante de l'astronomie. Optiquement parlant, j'ai énormément appris à tes côtés aussi bien sur le fonctionnement d'un laser impulsionnel que sur la façon d'observer les étoiles. Je garderais un très bon souvenir de la semaine à San Francisco et plus particulièrement de la marche sans fin depuis le Golden Gate !

Merci à Christelle Brimont pour sa présence et sa bonne humeur dans l'obscurité de la salle de manip. Les débriefs de Top Chef et du Meilleur pâtissier en micro-PL vont me manquer ! Merci également d'avoir lu, re-lu et re-re-lu, avec l'aide de Samuel, ce manuscrit et d'avoir trouvé les coquilles les mieux cachées.

Merci à Fabrice Semond pour la fabrication des échantillons. Sans toi et Meletis, les travaux que j'ai pu faire pendant ma thèse n'auraient pas eu le même impact. Merci également de m'avoir permis de participer à la croissance des boîtes quantiques et à leurs caractérisations. Merci à Aimeric Courville pour l'aide lors des mesures AFM et à Olivier Tottereau pour les mesures au MEB. La partie concernant les microdisques n'aurait pas vu le jour sans l'équipe de Philippe Boucaud. Merci à Iannïs Roland, Yijia Zeng et Xavier Checoury pour la fabrication des nombreux microdisques, qu'il a (presque) suffit à mettre sous le faisceau laser pour les voir fonctionner. Merci également à Bruno Gayral pour ses conseils et remarques, et pour avoir mené

les mesures de luminescence complémentaires.

Merci à Bernard Gil pour toute les choses que j'ai pu apprendre à son contact concernant les nitrures et pour m'avoir permis de participer à ma première conférence internationale. Plus important que ces considérations scientifiques, un grand merci à toi pour tous les Midols et les l'Equipe que j'ai pu trouver sur mon bureau et pour les matchs du MHR !

Merci à Pierre Lefebvre pour les nombreuses discussions concernant l'effet Stark et pour l'intérêt qu'il a porté à mes travaux tout au long de ces trois années et ce malgré sa fonction chronophage de directeur de laboratoire.

Merci à tous les doctorants que j'ai pu côtoyer ces trois années. Merci à Léo Colombier avec qui j'ai pu effectuer mes débuts expérimentaux sur son sujet de thèse et pour tous les coups de main qu'il a pu me donner aussi bien en manip que pour les TDs. Merci à Rereao Hahe, Daniel Rosales, Mohammed Mohammed Ali et Huong Ngo Thi pour la bonne humeur existante dans notre bureau et lors des pauses repas. Merci à Valentin Crépel, stagiaire de licence lors de ma dernière année de thèse, qui a mené à bien les dernières expériences sur les microdisques.

Merci à Brahim Guizal pour son aide lors des simulations numériques. Sans toi les échantillons de boîtes quantiques n'aurait pas vu le jour. Merci également pour toutes les discussions hautement philosophiques que nous avons pu avoir avec Mauro dans la cafétéria ! Merci également à Emmanuel Rousseau et Laetitia Doyennette qui, bien que travaillant de l'autre côté du spectre électromagnétique, se sont toujours intéressés de près à mes travaux.

Merci à Christian Lhénoret pour la conception des nombreuses pièces mécaniques du microscope et à Sébastien Rousset pour son aide en cryogénie.

Merci à Thierry Bretagnon, grâce à qui j'ai pu enseigner ces trois années, et pour les discussions concernant les mesures de luminescence résolue temporellement.

Je tiens également à remercier l'ensemble des personnels administratifs du laboratoire. Merci à Christelle Eve pour son aide inestimable dans le traitement des missions, pour m'avoir souvent assisté sur l'obscur site du CNRS SIMBAD et pour s'être occupé de la venue du jury. Merci également à Patrick Ejarque pour ses mails toujours très originaux et à Régine Pauzat.

Pour finir, merci à tous ceux qui m'ont entourés hors du laboratoire, famille et amis, et en particulier à Clara qui a su me supporter durant la rédaction.

Table des matières

Remerciements **3**

Introduction **8**

1 Semi-conducteurs et hétérostructures de composés III-V nitrures **11**

1.1 Croissance des composés III-N 12

1.1.1 Principe de l'Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM) 12

1.1.2 Choix du substrat 13

1.1.3 Défauts et contraintes relatifs à l'hétéro-épitaxie 14

1.2 Propriétés générales des semi-conducteurs wurtzite 17

1.2.1 Propriétés structurales 17

1.2.2 Structure de bande 19

1.2.3 Propriétés optiques 21

1.3 Hétérostructures de semi-conducteurs nitrures 27

1.3.1 Champ électrique interne dans les hétérostructures III-N 27

1.3.2 Confinement des porteurs dans des nanostructures 31

1.3.3 Effet du champ électrique sur le confinement 33

1.3.4 Ecrantage du champ électrique interne 36

1.4 Conclusion 38

2 Propriétés optiques des boîtes quantiques GaN/AlN **40**

2.1 Problématique et état de l'art 41

2.2 Etudes des propriétés optiques d'ensembles de boîtes quantiques GaN/AlN . . . 42

2.2.1 Présentation de l'échantillon étudié 42

2.2.2 Expériences de photoluminescence résolue temporellement 44

2.2.3 Etude du déclin de la luminescence en fonction de la puissance d'excitation 47

2.3 Microcavités nitrures pour l'étude de boîtes quantiques uniques 48

2.3.1 Confinement de la lumière dans une microcavité planaire 49

2.3.2 Modification du diagramme de rayonnement d'une boîte quantique 54

2.3.3 Présentation des différentes microcavités 58

2.3.4 Fabrication et caractérisation des échantillons 69

2.4 Spectroscopie de boîtes quantiques uniques en microcavité planaire 76
2.4.1 Boîtes quantiques GaN en microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ 76
2.4.2 Boîtes quantiques GaN en microcavité AlN 79
2.5 Conclusion 83

3 Micro-lasers UV à base de microdisques AlN à puits quantiques GaN/AlN 85
3.1 État de l'art 86
3.2 Microcavités à modes de galerie pour le contrôle de l'émission spontanée. 91
3.2.1 Contrôle de l'émission spontanée et effet laser dans une microcavité . . . 91
3.2.2 Confinement de la lumière dans un microdisque 94
3.2.3 Description analytique des modes de galerie 96
3.2.4 Caractéristiques des modes de galerie 102
3.3 Fabrication des échantillons 103
3.3.1 Croissance des couches actives 103
3.3.2 Fabrication des microdisques 104
3.4 Études des propriétés optiques linéaires 106
3.4.1 Caractérisation de la couche active 106
3.4.2 Caractérisation des microdisques GaN/AlN 113
3.4.3 Spectroscopie des microdisques 116
3.5 Études des propriétés optiques non-linéaires 119
3.5.1 Expériences de photoluminescence sous forte injection optique 119
3.5.2 Caractéristiques du micro-laser 124
3.5.3 Influence de la passivation de surface 129
3.6 Conclusion et perspectives 132

Conclusion et perspectives 134

A Dispositif de micro-photoluminescence UV 136

B Simulation numérique : émetteur intégré en microcavité planaire 141
B.1 Transmission et réflectivité d'une microcavité 141
B.2 Source à l'intérieur d'une microcavité 144
B.3 Réalisation des calculs numériques d'optimisation 145

C Résumé des échantillons de boîtes quantiques en microcavités planaires 147
C.1 La microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ 147
C.2 La microcavité AlN 148
C.3 La microcavité AlN/air 148

Bibliographie 149

Introduction

Depuis la percée technologique réalisée en 1991 par Shuji Nakamura, Isamu Akasaki et Hiroshi Amano, récompensés par le prix Nobel de physique en 2014, l'intérêt pour les semi-conducteurs nitrures tels que GaN, AlN, InN et leurs alliages, n'a cessé de croître. A l'époque, le développement de dispositifs lumineux à base de semi-conducteurs est en pleine expansion, notamment grâce à la découverte de la diode électroluminescente (DEL) rouge par Nick Holonyak en 1962 [1] suivie de la DEL verte quelques années plus tard. Dès lors, l'ensemble de la communauté scientifique cherche à obtenir une DEL bleue afin de pouvoir obtenir du blanc en combinant les trois couleurs primaires. Trois matériaux semi-conducteurs à large bande interdite, émettant dans le bleu et le proche ultra-violet, sont alors au centre des attentions. Le carbure de silicium SiC, ayant un gap indirect et un rendement radiatif de l'ordre $0,2\%$, le séléniure de zinc ZnSe, de gap direct mais très fragile, et le nitrure de gallium GaN, considéré comme sans espoir à cause de l'absence de dopage de type p et de l'importante densité de défauts structuraux, supérieure à 10^{13} cm^{-2}, dû au manque de substrat ayant le même paramètre de maille.

Malgré ces obstacles, la persévérance de S. Nakamura, I. Akasaki et H. Amano a permis la réalisation de couches de GaN ayant des densités de défauts de l'ordre de 10^8 cm^{-2}. Le premier a accompli cette prouesse en modifiant un réacteur d'épitaxie aux organo-métalliques [2] pendant que les deux derniers ont utilisé une couche tampon en AlN [3]. C'est dans ce contexte que S. Nakamura, alors employé chez Nichia, créé la première diode laser bleue à base d'InGaN et lance par la même occasion l'industrie des semi-conducteurs nitrures qui se situe à l'heure actuelle en seconde position en terme de volumes annuels produits, derrière le silicium.

Depuis, les semi-conducteurs nitrures se sont révélés être très utiles dans de nombreux domaines connexes aux nano-technologies. La nature polaire des composés III-N en fait des matériaux piézoélectriques et conduit à l'existence d'un gaz d'électrons bi-dimensionnel à l'interface $GaN/Al_xGa_{1-x}N$. Ces particularités permettent de réaliser des capteurs extrêmement sensible, à la fois de pression et de composés chimiques, à partir d'une simple structure de transistor à haute mobilité électronique [4]. L'observation de la croissance d'un fibroblaste de souris sur du GaN non-traité a également permis de mettre en évidence la biofonctionnallité des nitrures [5], ce qui laisse espérer de nombreuses applications en biologie. De part leur caractère piézoélectrique, les nitrures sont très prometteurs dans d'autres domaines comme l'opto-mécanique. Les travaux de Ghosh *et al.*, effectués sur des microdisques en AlN, ont démontré qu'il été possible de moduler un signal optique à partir d'un courant électrique [6]. De plus, grâce à l'importante

bande interdite électronique de l'AlN, qui vaut environ $6,3\ eV$, la perte de lumière liée au phénomène d'absorption à deux photons est beaucoup moins importante que dans des structures basés sur des semi-conducteurs à faible gap [7]. Pour finir, le nitrure de gallium et ses dérivés sont à l'origine de nombreux dispositifs optoélectroniques fonctionnant à température ambiante. Ainsi, il a récemment été démontré que les boîtes quantiques GaN/$Al_xGa_{x-1}N$ conservent leur propriétés quantiques d'émission de lumière à température ambiante [8]. L'utilisation de GaN massif crû sur un substrat silicium à également permis la réalisation d'un micro-laser à base de microdisque [9], ouvrant la voie au développement d'une photonique intégrée UV sur silicium. Cette approche, utilisée dans nos travaux, permet de bénéficier de la maturité technologique du silicium et par conséquent de faciliter le transfert vers l'industrie de dispositifs impliquant des nanostructures nitrures. Boîtes et puits quantiques en GaN/AlN sont effectivement des systèmes prometteurs pour des dispositifs de cryptographie quantique à température ambiante ou la réalisation de micro-lasers émettant dans l'UV profond à $300K$. Les travaux effectués au cours de cette thèse s'inscrivent dans ces deux dernières thématiques et portent donc aussi bien sur des phénomènes fondamentaux de l'interaction lumière-matière que sur des aspects plus applicatifs.

Les propriétés optiques de boîtes quantiques GaN/AlN, qui sont des systèmes modèles pour l'étude des effets de confinement excitonique grâce à l'important décalage des bandes interdites entre le GaN et l'AlN, environ $2,8\ eV$, et la forte énergie de liaison de l'exciton ($27\ meV$), restent à ce jour mal connues. Ce n'est, par exemple, que très récemment que le couplage aux phonons acoustiques a été étudié [10]. Ceci est principalement dû à la nature polaire des hétérostructures utilisés, qui sont le siège d'un important champ électrique interne qui modifie profondément les propriétés optiques des boîtes. Ainsi, il a été observé que les temps de vie radiatif de boîtes quantiques émettant à basses énergies sont fortement augmentés, atteignant la milli-seconde [11], ainsi que la largeur à mi-hauteur de leur luminescence, limitant la résolution de la structure fine de l'exciton aux boîtes quantiques émettant vers $4\ eV$. Le comportement des complexes multi-excitoniques, comme le bi-exciton, est également affecté par le champ interne. Pour les boîtes les plus épaisses, le champ électrique aligne les dipôles des deux excitons, ce qui confère une énergie de liaison négative au bi-exciton [12]. Ce sont donc les boîtes quantiques émettant au dessus de $4\ eV$, pour les systèmes GaN/AlN, qui présentent le plus d'intérêt pour de futures applications. En effet, c'est dans ces dernières que le confinement quantique est le plus important et que l'influence du champ électrique interne peut être considérée comme une simple perturbation sur les niveaux d'énergie et les temps de vie radiatifs.

Du côté des dispositifs, les recherches actuelles se portent sur les émetteurs à courtes longueurs d'ondes. Les rayonnements dans l'UV profond ont de nombreux avantages, notamment pour des applications bactéricides, puisque l'ultra-violet profond, aux alentours de $270\ nm$, empêche la reproduction de l'ADN en modifiant sa structure. Les premiers lasers de tailles millimétriques et émettant à de telles longueurs d'onde ont été réalisés au début des années 2010 [13, 14, 15]. Ces réalisations n'ont pu se faire qu'au prix d'importants efforts technologiques pour réduire la densité de défauts structuraux, qui limite fortement le gain des hétérostructures

nitrures, de sorte à ce qu'elle ne dépasse pas les 10^8 défauts par cm^2. La miniaturisation de tels dispositifs pourrait laisser espérer la création de laboratoire sur puce,ou *lab-on-chip* en anglais, servant à détecter ou détruite des molécules précisément ciblées. Jusqu'à maintenant, les micro-lasers développés émettent du bleu au proche ultra-violet et sont essentiellement composés d'hétérostructures à base d'InGaN [16, 17]. Bien que présentant une densité de défauts importantes, ces dispositifs tirent parti de l'existence de clusters d'indium, qui favorisent la localisation des porteurs et limitent ainsi la diffusion vers les centres de recombinaison non-radiative [18]. En ce qui concerne la partie spectrale de l'UV profond, la seule réalisation notable est celle d'un laser à microdisque à base de boîtes quantiques GaN/AlN, émettant à 303 nm et fonctionnant seulement à $10K$ [19], bien loin des conditions requises pour une intégration dans un dispositif fonctionnel.

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont pour point commun d'utiliser l'interaction lumière-matière à l'échelle du rayonnement tout en ayant des finalités différentes. L'utilisation d'une microcavité de type Fabry-Pérot va nous permettre d'améliorer la collection de lumière émise par une boîte quantique alors que le tandem puits quantiques/microdisque va nous servir à augmenter le couplage lumière-matière pour obtenir un effet laser.

Le premier chapitre est consacré à la présentation du nitrure de gallium et de ses propriétés générales. Nous décrirons la croissance des composés III-N ainsi que les problèmes rencontrés liés à l'absence de substrat ayant un paramètre de maille similaire à celui du GaN. Nous présenterons également les propriétés structurales et optiques, pour ensuite finir sur la grande particularité des hétérostructures nitrures, qui est l'existence d'un important champ électrique interne.

Nous étudierons, dans le second chapitre, les propriétés optiques d'ensemble de boîtes quantiques GaN/AlN, émettant à haute énergie, à l'aide d'expériences de photoluminescence résolue en temps. Nous verrons que la compréhension du déclin de luminescence de ces nanostructures ne peut se faire qu'en effectuant le même type de mesure sur des boîtes quantiques uniques. Pour cela, l'utilisation de microcavités planaires, où le mode photonique est spectralement accordé avec l'émission des boîtes quantiques, va nous permettre d'augmenter significativement la collection des photons émis par une seule boîte. Nous présenterons les microcavités réalisées, préalablement optimisées à l'aide de simulations numériques développées pendant ma thèse, ainsi que les mesures effectuées sur des boîtes quantiques uniques.

Pour finir, nous nous intéresserons dans le dernier chapitre à la réalisation d'un micro-laser, opérant à 275 nm et à température ambiante, à base de puits quantiques GaN/AlN dans des microdisques en AlN. Nous décrirons dans un premier temps les propriétés optiques d'une cavité à microdisque, pour ensuite exposer leur fabrication. Les propriétés fondamentales de nos micro-lasers, comme le facteur de qualité de nos microdisques ou l'efficacité quantique de nos puits quantiques, seront traités dans la quatrième partie. Nous présenterons dans la dernière partie les caractéristiques de nos dispositifs, à savoir la puissance seuil pour obtenir un effet laser et le facteur de couplage de l'émission spontanée β, pour finir sur une étude de l'influence du diamètre et de la passivation de surfaces sur ces paramètres caractéristiques.

Chapitre 1

Semi-conducteurs et hétérostructures de composés III-V nitrures

Ce chapitre présente les particularités des semi-conducteurs III-N étudiés au cours de cette thèse. Dans la partie 1.1 nous introduirons les bases de la croissance des composés nitrures. Nous discuterons, entre autres, du choix du substrat et de ses conséquences sur la qualité structurale des matériaux. La partie 1.2 traite des propriétés générales des semi-conducteurs III-N. Nous exposerons ici la structure cristalline de la wurtzite, la structure de bande qui en découle et les propriétés optiques du nitrure de gallium. Les hétérostructures à base de GaN/AlN seront l'objet de la partie 1.3. Nous détaillerons l'origine du champ électrique interne existant dans les nano-structures type puits et boîtes quantiques ainsi que son effet sur le confinement des porteurs. Nous parlerons également d'un phénomène très important lorsqu'il s'agit d'interpréter des mesures optiques : l'écrantage du champ électrique interne.

Sommaire

1.1 Croissance des composés III-N 12

1.1.1 Principe de l'Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM) 12

1.1.2 Choix du substrat 13

1.1.3 Défauts et contraintes relatifs à l'hétéro-épitaxie 14

1.2 Propriétés générales des semi-conducteurs wurtzite 17

1.2.1 Propriétés structurales 17

1.2.2 Structure de bande 19

1.2.3 Propriétés optiques 21

1.3 Hétérostructures de semi-conducteurs nitrures 27

1.3.1 Champ électrique interne dans les hétérostructures III-N 27

1.3.2 Confinement des porteurs dans des nanostructures 31

1.3.3 Effet du champ électrique sur le confinement 33

1.3.4 Ecrantage du champ électrique interne 36
1.4 Conclusion 38

1.1 Croissance des composés III-N

L'ensemble de nos échantillons étant conçu par Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM), nous donnerons dans cette partie les principes de la technique et nous présenterons les différents choix possibles de substrats pour la croissance de semi-conducteurs III-N. Nous ferons également un point sur les défauts structuraux et les contraintes qu'implique l'hétéro-épitaxie. Pour plus d'informations concernant la croissance des puits et boîtes quantiques utilisés dans ce travail de thèse, et sur la croissance par épitaxie par jets moléculaires d'hétérostructures nitrures plus généralement, la thèse de Sylvain Sergent [1] fait office de référence [20].

1.1.1 Principe de l'Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM)

Développée au Bell Labs dans les années 1970 par A. Cho et J. Arthur [21], la croissance par EJM permet de contrôler la quantité de matière déposée à la couche atomique près. La figure 1.1 présente le schéma de principe d'un bâti de croissance d'EJM.

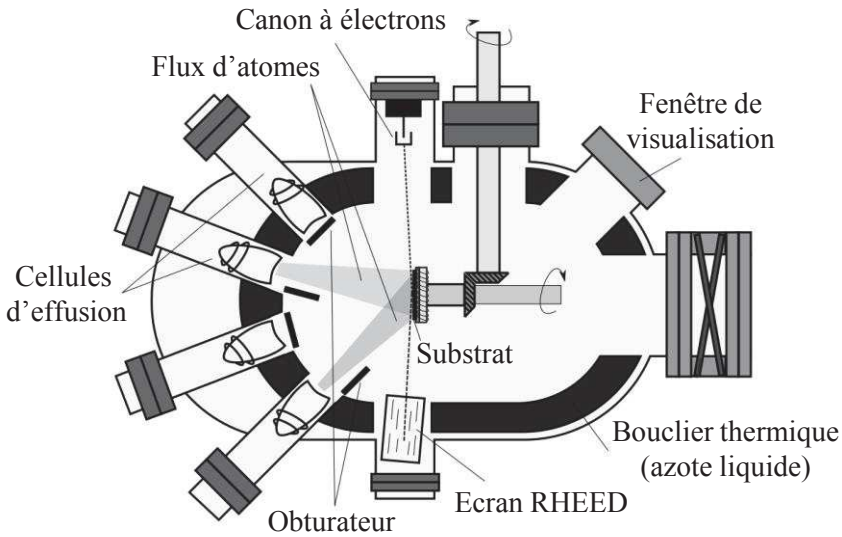


FIGURE 1.1 – *Schéma de principe d'un réacteur d'épitaxie par jets moléculaires. D'après [22].*

Les atomes de la colonne III (Al, Ga ou In) sont envoyés sur le substrat à l'aide de cellules d'effusion (ou cellules de Knudsen), qui une fois chauffées projettent un jet d'atomes. Pour les atomes d'azote, deux techniques sont possibles :

1. Thèse de doctorat effectuée au Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications, sous la direction de Fabrice Semond.

— Le craquage d'ammoniac, où l'azote est amené par craquage thermique de NH_3. C'est par cette technique que nos échantillons sont épitaxiés (EJM assistée ammoniac).
— La dissociation d'un plasma de N_2 par radio-fréquence, dans le cadre d'une EJM assistée plasma.

Les deux techniques conduisent à une qualité cristalline similaire et diffèrent essentiellement par le fait que les échantillons crûs à partir d'une EJM plasma ne nécessitent pas de recuit pour l'activation du dopage p.

La pression à l'intérieur du bâti est de l'ordre de 10^{-10} Torr afin de réduire les interactions des atomes projetés avec leur environnement et diminuer l'incorporation d'autres espèces susceptibles de se trouver au sein du réacteur. La température de croissance doit être suffisamment haute pour que les atomes adsorbés sur le substrat aient assez de mobilité pour se lier chimiquement et ainsi former des couches minces.

Le contrôle de l'état de surface et du front de croissance se fait par la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (Reflection High Energy Electron Diffraction ou RHEED en anglais) et permet également de savoir à quel moment la transition entre couches minces 2D et îlots 3D a lieu dans le cas d'une croissance de boîtes quantiques. Nous reviendrons sur ce procédé de croissance dans le chapitre 2.

1.1.2 Choix du substrat

L'absence de substrat GaN de bonne qualité et à coût modéré ne permet pas actuellement d'envisager l'homo-épitaxie de façon viable à grande échelle. Pour cette raison, les hétérostructures nitrures sont crûes par hétéro-épitaxie, sur substrat silicium, saphir, ou carbure de silicium. Le tableau 1.1 liste une partie des avantages et inconvénients de chacun de ces substrats.

Caractéristique \ Substrat	Si	Al_2O_3	6H-SiC
Désaccord de maille avec AlN/GaN (%)	-19/-17	13/16	1/3,5
Type de dopage	n,p	isolant	n,p
Coefficient d'atténuation optique à 300 nm (cm^{-1})	$1{,}9.10^6$ [23]	$1{,}3.10^3$ [24]	2.10^3 [25]

Tab. 1.1 – *Quelques propriétés des substrats utilisés pour la croissance de nitrures.*

Malgré le désaccord de maille existant entre le silicium et AlN ou GaN, et l'importante absorption optique dans l'UV, le choix de F. Semond s'est porté vers ce type de substrat dès 1999. Dans notre cas, le principal avantage du silicium face aux autres substrats est la grande sélectivité existante entre le silicium et les nitrures lors de gravures chimiques. Comme nous le verrons au chapitre 3 avec les micro-disques, la fabrication de structures à interface AlN/air pour le confinement de la lumière est relativement simple et bien maitrisée avec un substrat silicium. L'autre atout du silicium réside dans la maturité technologique de ce matériau. La bonne maitrise

du dopage de type n et p pour l'injection électrique, la disponibilité des substrats et leur faible coût en font un candidat idéal pour le transfert vers l'industrie de dispositifs à base de nitrures.

1.1.3 Défauts et contraintes relatifs à l'hétéro-épitaxie

Contrairement aux semi-conducteurs III-As, les nitrures sont des matériaux où les densités de défauts structuraux sont très importantes et peuvent atteindre des valeurs de l'ordre de 10^{12} cm^{-2}. Les causes principales sont le manque de substrat à faible désaccord de maille avec GaN ou AlN et les différences existantes entre les coefficients de dilatation thermique de GaN, AlN et Si, qui sont de l'ordre de 40 %, qui entrainent la création de fissures surfaciques lors du refroidissement de l'échantillon depuis la température de croissance, à environ 980 °C jusqu'à température ambiante.

Les défauts présents dans les composés III-N peuvent être classés en deux catégories :

— Les défauts ponctuels, comme l'absence d'atomes métalliques (Ga ou Al) et d'atomes d'azote ou bien l'incorporation d'autres espèces chimiques telles que le silicium, le carbone ou l'oxygène. Dans GaN, les défauts ponctuels les plus courants sont des lacunes d'azote comblées par de l'oxygène, qui conduisent à un dopage résiduel de type n de l'ordre de 10^{16} cm^{-3}. Comme nous le verrons dans la partie 1.2.3, ces défauts ponctuels introduisent également un nombre important de nouvelles transitions optiquement actives [26].

— Les défauts étendus, dont les plus courants sont les *dislocations traversantes* (*threading dislocations* en anglais) et dont l'origine se trouve dans la formation de colonnes lors de la croissance ayant une dimension caractéristique allant de la dizaine à la centaine de nanomètres. Ce phénomène est représenté figure 1.2. Chaque colonne présente une désorientation selon l'axe de croissance, appelée *tilt* et présentée sur le panneau (a) de la figure 1.2, et une désorientation dans le plan, appelée *twist* et schématisée sur la figure 1.2 (b). Ces dislocations sont à l'origine de dégradations des propriétés de luminescence puisqu'elles introduisent des canaux non-radiatifs pour la relaxation des porteurs [27].

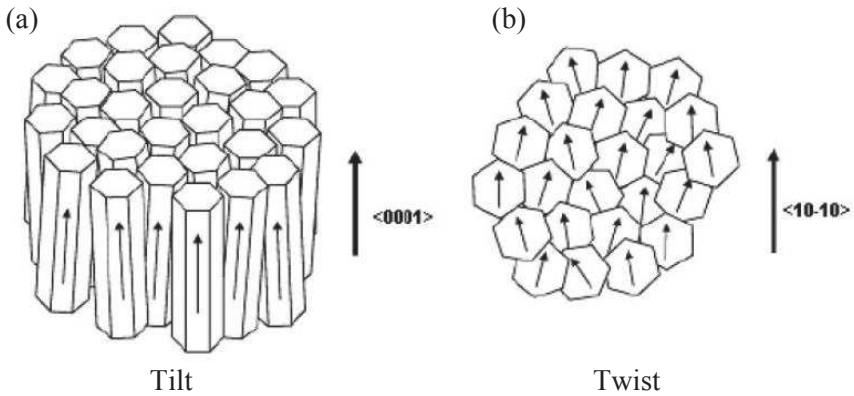


FIGURE 1.2 – *Schéma d'une couche de nitrure présentant le phénomène de tilt et twist des grains. D'après [20].*

Le nombre de défauts ponctuels dépend peu de la nature du substrat utilisé. Ainsi, les valeurs du dopage non-intentionnel sont les mêmes pour une homo-épitaxie sur GaN que pour une hétéro-épitaxie sur saphir [28]. Par contre, les défauts étendus y sont très sensibles. La génération de dislocations traversantes provient essentiellement du fait que les paramètres de maille entre GaN ou AlN et Si sont très différents, ce qui introduit des contraintes sur la couche épitaxiée.

Contrainte mécanique

Les contraintes mécaniques ont pour origine l'énergie élastique emmagasinée localement lors de la croissance, qui provient de l'adaptation du paramètre de maille des nitrures à celui du substrat.

À l'heure actuelle, les meilleures hétéro-épitaxies conduisent à une densité de dislocations de l'ordre de $10^6 - 10^7$ cm^{-2}. L'obtention de telles valeurs nécessite cependant la mise en place de techniques de croissance particulières comme l'épitaxie par croissance latérale [29] ou l'utilisation de couches tampons suffisamment épaisses [30]. La figure 1.3 présente des micrographies en coupe au microscope électronique à transmission de couches de GaN. Le panneau (a) correspond à une couche de GaN crûe sur substrat saphir au début des études sur GaN, dans les années 1980. Le panneau (b) présente quant à lui une image analogue pour une couche de GaN crûe sur substrat silicium en 2013. Nous pouvons voir qu'en presque trente ans, la qualité structurale des couches de nitrures a pu être considérablement améliorée grâce aux progrès effectués sur les techniques de croissance. L'utilisation de substrat GaN ou AlN permet également de réduire ces densités de défauts. Les travaux de Grzegory *et al.* [31] présentent des substrat de GaN de 1 cm^2 où les densités de défauts sont de l'ordre de 100 cm^{-2}. Ces valeurs font toutefois figures d'exceptions et les substrats nitrures commercialisés ont des densités de dislocations qui sont plutôt de l'ordre de 10^5 cm^{-2}.

Paradoxalement, ces dislocations, qui agissent comme centres de recombinaison non-radiative, impactent peu les propriétés de luminescence des matériaux. À titre d'exemple, les rendements quantiques externes de diodes électroluminescentes bleues, ayant des densités de défauts de quelques 10^8 cm^{-2}, atteignent les 65%, valeur proche des rendements observés dans les arséniures où la densité de défauts est de l'ordre de 10^2 cm^{-2}. L'origine d'une telle efficacité en dépit des nombreux défauts reste à ce jour sujette à controverse.

Il est important de noter que les densités de défauts données ici sont valables pour des couches relativement épaisses, dépassant le micromètre. Les travaux présentés au chapitre 3 sont effectués sur des couches très fines, dont l'épaisseur se situe aux alentours de 200 nm. Le nombre de défauts traversants est alors bien plus important que 10^6 cm^{-2} et atteint des valeurs de l'ordre de $10^{10} - 10^{11}$ cm^{-2} comme nous pouvons le voir sur le panneau (b) de la figure 1.3.

La contrainte mécanique peut changer les propriétés optiques du matériau épitaxié. Lorsque l'énergie élastique stockée n'est pas suffisante pour relaxer en dislocations, la contrainte change légèrement la position des atomes au sein du cristal. La structure de bande du matériau, et donc

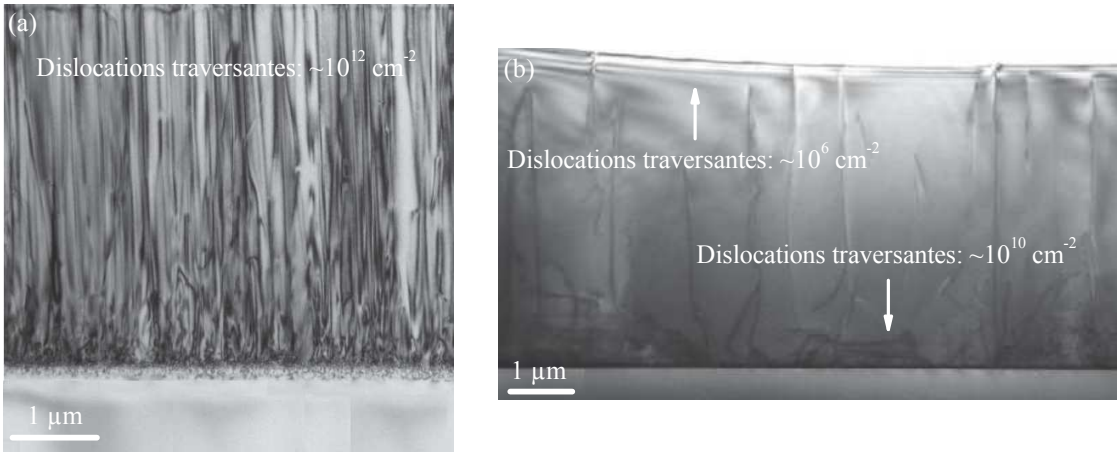


FIGURE 1.3 – *(a) Mise en évidence des dislocations traversantes dans une couche de GaN crûe sur saphir dans les années 1980 [32] et (b) pour une couche de GaN crûe sur silicium en 2013 [30]. Les deux images sont des micrographies en coupe au microscope électronique à transmission. Les deux échantillons ont été crûs par épitaxie par jets moléculaire.*

ses propriétés optiques, sont alors perturbées et nous verrons par la suite que les énergies de transitions et la position relative des bandes de valence sont modifiées.

Contrainte thermique

Les composés nitrures et le silicium présentent une grande différence en ce qui concerne leurs coefficients d'expansion thermique (tableau 1.2). La croissance se faisant aux alentours de 1000 $°C$, les couches épitaxiées et le substrat vont voir leurs paramètres de maille changer lors du refroidissement à température ambiante de l'échantillon. Ce phénomène va conduire à la création d'un nombre important de fissures en surface qui peuvent également se propager dans le volume du cristal.

Matériaux	Désaccord de coefficient de dilatation thermique avec Si (%)
GaN	40
AlN	-38

Tab. 1.2 – *Valeurs du désaccord de dilatation thermique entre GaN, AlN et Si.*

La figure 1.4 illustre ce phénomène de fissures dues à la dilatation thermique. Nous pouvons voir des fissures macroscopiques créées lors du refroidissement de l'échantillon. De tels défauts surfaciques sont préjudiciables pour des études de spectroscopie ou pour des dispositifs nécessitant une directionnalité puisqu'ils participent à la diffusion de la lumière émise dans toutes les directions de l'espace.

Nous verrons au chapitre 2 que dans le cas d'une épitaxie de structures multi-couches sur

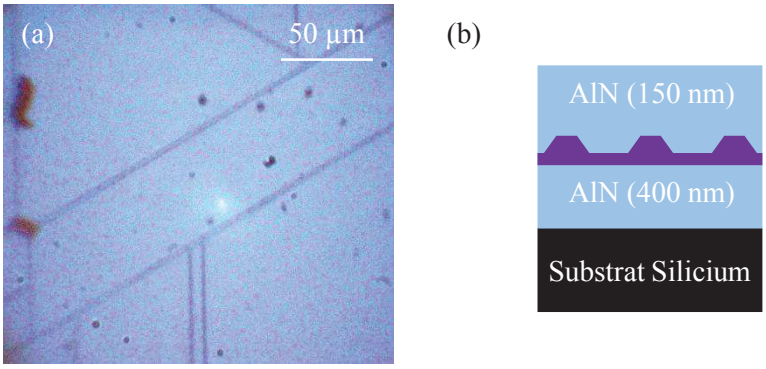


FIGURE 1.4 – *(a) Observation de fissures en surface pour l'échantillon A1831 de boîtes quantiques GaN, encapsulées dans une matrice en AlN, crûes sur substrat silicium (micrographie au microscope optique en champ clair). (b) Représentation schématique de l'échantillon étudié.*

silicium, dans notre cas des miroirs de Bragg, la densité de fissures surfaciques est beaucoup plus importante que celle présentée figure 1.4. Cela est en partie dû au nombre important de couches épitaxiées et à la différence de paramètres de maille entre les matériaux utilisés. Nous montrerons cependant qu'une structuration du substrat en carrés de 200 μm par 200 μm permet de supprimer totalement ces fissures de surfaces sur environ 50 % de la surface totale du substrat.

Pour finir, notons que cette différence entre les coefficients de dilatation thermiques peut se changer en avantage puisque c'est grâce à elle que sont obtenus les pseudosubstrats de GaN [33]. Lors de la croissance de couches très épaisses, supérieures à 100 μm, des morceaux de GaN ayant une surface de l'ordre de 1 cm^2 peuvent se détacher du substrat et être réutilisés pour de l'homo-épitaxie.

1.2 Propriétés générales des semi-conducteurs wurtzite

Les semi-conducteurs III-N étudiés pendant cette thèse ayant pour phase cristallographique la phase wurtzite, nous décrirons ici les propriétés structurales, électroniques et optiques en lien avec cette structure cristalline.

1.2.1 Propriétés structurales

Structure cristallographique

Les composés nitrures peuvent cristalliser sous deux formes : la forme wurtzite, de symétrie hexagonale, qui est thermodynamiquement stable, ou la forme blende de zinc, de symétrie cubique, qui est métastable. Le GaN en phase wurtzite est constitué de deux sous-réseaux hexagonaux d'atomes de gallium et d'azote. Comme le montre la figure 1.5 (a), ces deux sous-réseaux forment un empilement de type Ga-N-Ga-N arrangé suivant la direction cristallographique [0001].

La wurtzite est caractérisée par ses deux paramètres de maille a et c. Pour une structure idéale, les deux sous-réseaux hexagonaux sont décalés de $\frac{5}{8}$ de *maille élémentaire* selon l'axe

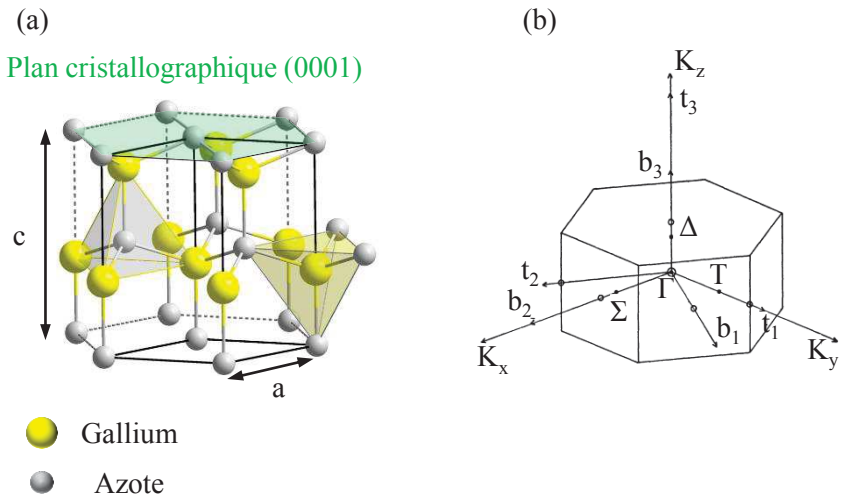


FIGURE 1.5 – *(a) Schéma de la structure wurtzite où le plan vert représente le plan cristallographique (0001). (b) Première zone de Brillouin de la structure wurtzite (d'après [34]).*

[0001]. La maille élémentaire représente le plus petit motif nécessaire à la reproduction de la structure cristalline. Le tableau 1.3 donne les paramètres de maille a et c pour GaN et AlN.

Paramètre	GaN	AlN
a (Å)	3,189	3,112
c (Å)	5,185	4,982

Tab. 1.3 – *Paramètres de maille pour GaN et AlN en phase wurtzite. Valeurs extraites de [35].*

Espace réciproque

L'espace pertinent pour décrire les états électroniques, et donc la structure de bande du matériau, est l'espace réciproque. Cet espace est directement relié à l'espace réel et est accessible expérimentalement par des techniques de diffraction comme la diffraction de rayon X pour les atomes. La *première zone de Brillouin* de la structure wurtzite, qui est la maille de Wigner-Seitz du réseau réciproque [36], est représentée sur la figure 1.5 (b). Cette zone est capitale puisqu'elle permet de caractériser les fonctions d'onde électroniques en n'importe quel point d'un solide cristallin pourvu que le potentiel électrostatique ressenti par les électrons soit périodique. Le point de symétrie Γ est également essentiel puisque la compréhension des propriétés optiques d'un semi-conducteur à gap direct nécessite seulement la connaissance des états électroniques au voisinage de ce point.

Polarité de la structure

Le groupe de symétrie auquel appartient la wurtzite est le groupe C_{6v} dans la notation de Schoenflies. Le cristal n'est pas centrosymétrique et les directions [0001] et [000-1] ne sont, par conséquent, pas équivalentes. Cela nous amène à introduire la notion de *polarité*. Une croissance selon l'axe [0001] conduit à un cristal de polarité gallium, où les atomes de gallium terminant la surface sont liés à trois atomes d'azote chacun. La polarité azote est obtenue lorsque le cristal est crû selon l'axe [000-1]. Les atomes de gallium en surface ne présentent alors qu'une seule liaison avec les atomes d'azote. Comme le montre la figure 1.6, la polarité de surface ne donne pas la nature des atomes en surface.

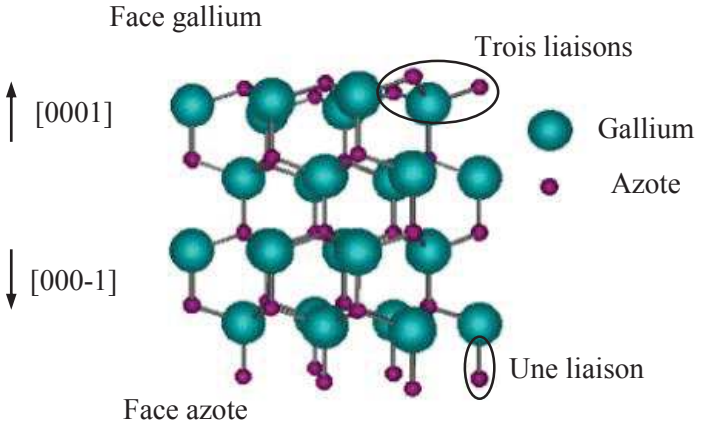


FIGURE 1.6 – *Représentation schématique des deux polarités du nitrure de gallium (extrait de [37]).*

La nature de la polarité a plusieurs conséquences sur les structures épitaxiées puisqu'il a été montré que nombres de paramètres comme la morphologie de surface [38] ou la densité de dislocations [39] sont dépendants de la polarité du matériau épitaxié. Cette notion de polarité est également importante dans d'autres domaines comme celui de l'optique non-linéaire. L'alternance périodique de la polarité d'une couche mince de GaN permet de changer périodiquement le signe de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 ($\chi^{(2)}$) et est donc intéressante dans la génération de seconde harmonique par quasi-accord de phase [40].

1.2.2 Structure de bande

Dans un semi-conducteur, les états de la bande de conduction sont formés à partir d'orbitales anti-liantes de type s alors que les états des bandes de valence proviennent d'orbitales liantes de type p.

Les études de structure de bande pour des semi-conducteurs wurtzites remontent aux années 60 et aux premières études spectroscopiques du sulfure de cadmium CdS et du sulfure de zinc ZnS [41, 42]. Le point de départ de ces calculs effectués au point Γ de la première zone de

Brillouin est de considérer la maille élémentaire de la wurtzite comme cubique, mais avec une anisotropie selon l'axe z, comme présentée figure 1.7. C'est sur cette base que J.J. Hopfield développa le modèle quasi-cubique au début des années 60 [43]. L'anisotropie selon l'axe z de la maille élémentaire de ce modèle est contenue dans le terme Δ_{cr} (appelé *champ cristallin* ou *crystal field* en anglais) qui lève la dégénérescence entre les états (p_x, p_y) et p_z.

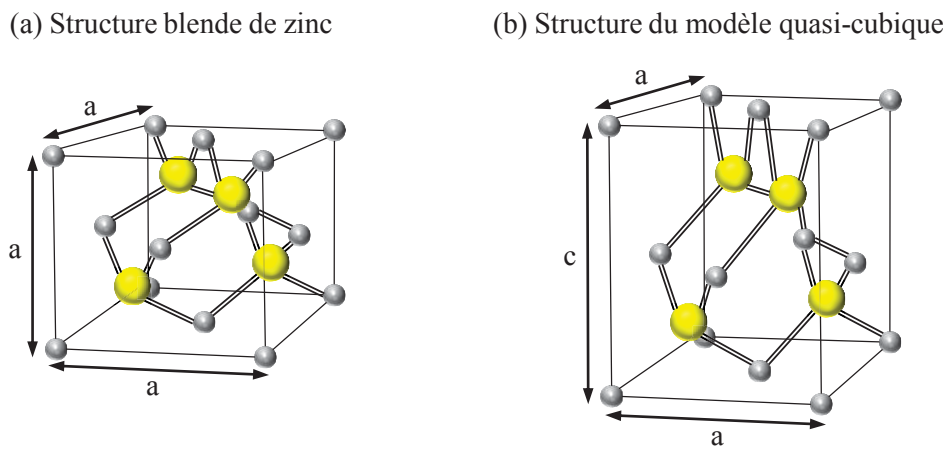


FIGURE 1.7 – *(a) Représentation schématique de la structure blende de zinc à la base du modèle quasi-cubique. (b) Représentation schématique de la structure utilisée dans le cadre de l'approximation quasi-cubique.*

La description complète de la structure de bande passe par la prise en compte de l'interaction relativiste du spin de l'électron et de son propre mouvement. Cet effet, appelé couplage spin-orbite et noté Δ_{SO}, couple le moment cinétique orbital de l'électron avec son moment cinétique de spin et permet une levée de dégénérescence supplémentaire entre les états p_x et p_y. Une description plus détaillée des calculs permettant de tracer la structure de bande de GaN en n'importe quel point de la zone de Brillouin peut être trouvée dans la référence [44].

Le diagramme de bande du GaN au point Γ de la première zone de Brillouin est représenté figure 1.8. Contrairement à la structure blende de zinc où les bandes composant les états de valences sont appelées trous lourds, trous légers et split-off, elles prennent la dénomination A, B et C dans le cas de la wurtzite. L'écart entre la bande de conduction et la bande A est appelé *bande interdite* ou *gap* en anglais. La lumière émise par chacun des excitons A, B et C est polarisée linéairement. Les photons provenant de la bande A sont purement σ, c'est-à-dire que leurs champs électrique $\mathbf{E}$ est perpendiculaire à l'axe de croissance [0001]. Les excitons B et C émettent quant à eux de la lumière polarisée σ et π, ce dernier cas étant caractérisé par un champ électrique $\mathbf{E}$ parallèle à l'axe c.

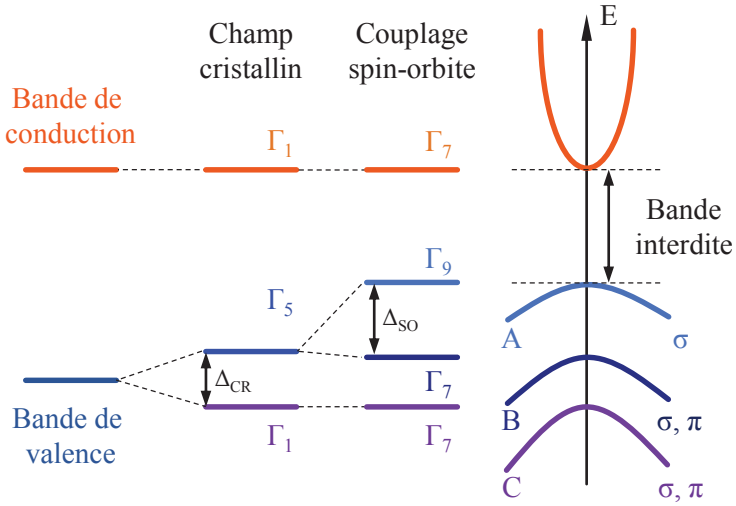


FIGURE 1.8 – *Schéma de la structure de bande de GaN non contraint au point* Γ *de la première zone de Brillouin. Les symétries de chaque bande sont également indiquées ainsi que leurs polarisations.*

1.2.3 Propriétés optiques

Exciton dans GaN

En fournissant une énergie au moins égale à la bande interdite aux électrons de valence, ces derniers passent dans la bande de conduction laissant ainsi une vacance dans la bande de valence. Les $N-1$ électrons sont alors considérés comme un nouvel état appelé *trou* et ayant une charge positive. L'interaction Coulombienne entre l'électron et le trou conduit à la création d'une quasi-particule, *l'exciton*. Son énergie de liaison vaut :

$$E_X^b = -\frac{\mu_x R_y}{m_0 \epsilon_r^2} \tag{1.1}$$

avec μ_x la masse réduite de l'ensemble électron-trou, m_0 la masse de l'électron, R_y la constante de Rydberg et ϵ_r la constante diélectrique du matériau considéré.

L'extension spatiale de l'exciton ou *rayon de Bohr* s'écrit :

$$a_X^B = -\frac{m_0 \epsilon_r a_0}{\mu_x} \tag{1.2}$$

où a_0 est le rayon de Bohr de l'hydrogène.

Le tableau 1.4 résume l'énergie de liaison et le rayon de Bohr de l'exciton pour les semi-conducteurs GaN, AlN et GaAs.

Selon le spin du trou et de l'électron formant l'exciton, ce dernier peut être optiquement actif, si la somme du spin du trou et de l'électron vaut ± 1, ou bien être considéré comme "noir" si son spin est égal à ± 2. Cela provient des règles de conservation du moment cinétique angulaire, qui font que pour pouvoir se recombiner radiativement, la paire électron-trou doit avoir un spin

Paramètre	GaN [45]	AlN [46]	GaAs [47]
E_X^b (meV)	28	44	5,1
a_X^B (nm)	2,8	1,9	11,3

Tab. 1.4 – *Valeurs de l'énergie de liaison de l'exciton et son extension spatiale dans GaN, AlN et GaAs.*

identique à celui du photon, soit ±1.

Dans un cristal infini parfait, l'interaction lumière-matière ne donne pas lieu à une recombinaison radiative de l'exciton mais à l'existence d'un état stationnaire mixte exciton-photon appelé *exciton-polariton* [48]. En réalité, la présence d'une interface cristal-air agit comme un "défaut" brisant la symétrie du milieu de propagation et permettant l'observation de photons, signature optique des excitons.

Une des propriétés intéressantes des nitrures est la grande énergie de liaison des excitons, supérieure à l'énergie thermique $k_B T_{300K} = 25\ meV$, qui leur permet d'être stables à température ambiante. La contrepartie de cette tenue en température est la faible extension spatiale de l'exciton. Contrairement aux arséniures, où la taille de l'exciton est environ 50 fois plus importante que le paramètre de maille a et où les fluctuations de potentiel électrostatique dues aux imperfections du cristal auront peu d'effet, les excitons dans les III-N sont très sensibles à ces fluctuations et au désordre d'alliage pour les ternaires (Al,In,Ga)N car le rapport $\frac{a_X^B}{a}$ est de l'ordre de 5. Ainsi, pour un ternaire $Al_{0,45}Ga_{0,55}As$ le désordre d'alliage contribuera pour environ 7 meV à l'élargissement inhomogène [49] alors que cette contribution sera de 60 meV pour une couche de $Al_{0,45}Ga_{0,55}N$ [44].

Effet de la contrainte sur les transitions excitoniques

Comme nous l'avons vu, la contrainte mécanique subie par les nitrures hétéro-épitaxiés introduit de profondes modifications sur les transitions excitoniques. La figure 1.9 présente les variations de l'énergie d'émission et de la *force d'oscillateur* des excitons A, B et C en fonction de la contrainte subie. La force d'oscillateur est une grandeur sans dimension qui représente la probabilité qu'un électron et un trou se recombinent en émettant un photon ; elle est proportionnelle au carré de l'intégrale de recouvrement entre leurs fonctions d'onde.

La figure 1.9 (a) présente la variation des énergies d'émission des trois excitons pour une couche mince de GaN épitaxiée sur différents substrats afin de faire varier la contrainte. La variation de ces énergies est tracée en fonction de l'émission de l'exciton A. Cette représentation permet d'obtenir la position relative des trois bandes de valence en fonction de la contrainte. Il n'est alors pas nécessaire de connaitre précisément la contrainte dans le matériau pour obtenir les positions énergétiques des bandes B et C mais seulement l'énergie d'émission de l'exciton

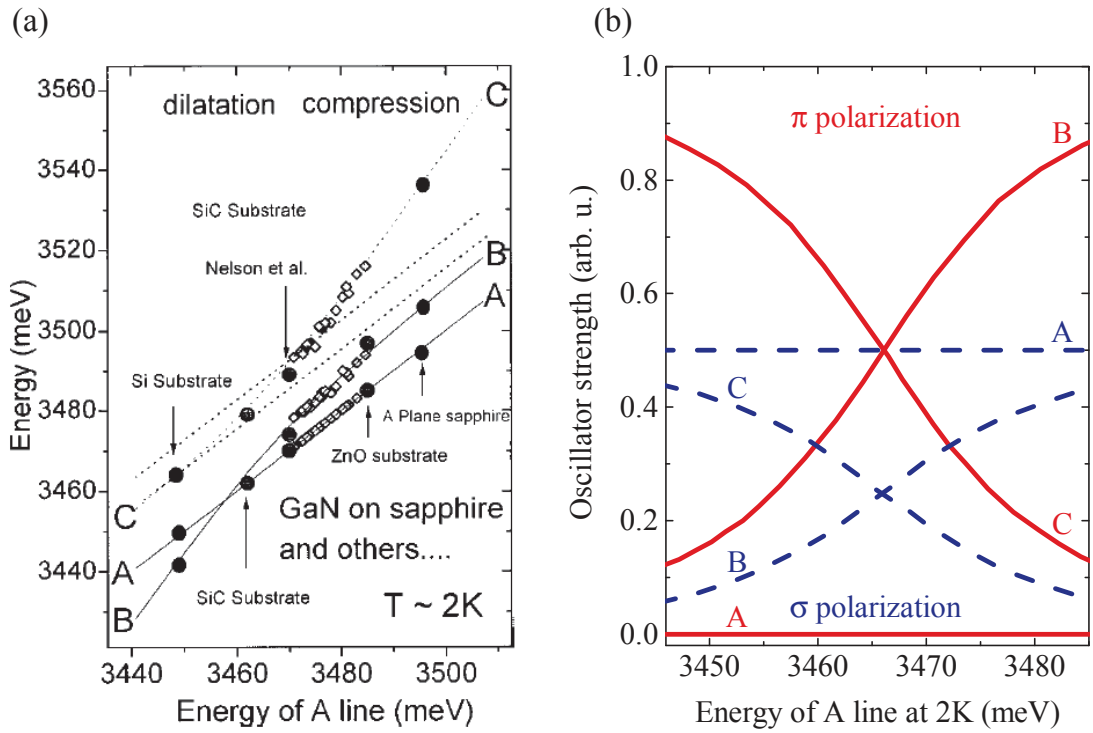


FIGURE 1.9 – *(a) Variation de l'énergie des excitons A,B et C pour différentes contraintes extensives ou compressives (d'après [50]). (b) Variation des forces d'oscillateurs des excitons A, B et C en fonctions de la contrainte pour deux polarisations (d'après [44]).*

A. Cette grandeur est beaucoup plus facilement accessible expérimentalement que la contrainte car la lumière émise par l'exciton A est polarisée purement TE et la discrimination entre les excitons A et B et C se fait donc sans ambiguïté. Ces travaux mettent en évidence l'influence de la contrainte sur la position des bandes de valence et permettent de voir un changement de symétrie de bande pour la transition de bord de bande de plus basse énergie lors d'une contrainte extensive.

L'évolution de la force d'oscillateur des excitons A, B et C en fonction de l'énergie d'émission de l'exciton A, et donc de la contrainte, est tracée sur le panneau (b). Nous pouvons observer un transfert de force d'oscillateur entre les excitons B et C lorsque la contrainte varie alors que la force d'oscillateur de la transition A reste constante. Cet échange entre les bandes B et C résulte du couplage entre ces deux bandes de valence lié au fait qu'elles ont la même symétrie.

Transitions optiques dans GaN

Les trois transitions excitoniques A, B et C sont visibles sur la figure 1.10. La courbe du haut présente un spectre de photoluminescence et celle du bas correspond à un spectre de réflectivité pour une couche mince de nitrure de gallium crûe sur substrat GaN.

La mesure de réflectivité permet de mettre en évidence les excitons A, B et C dans leur niveau

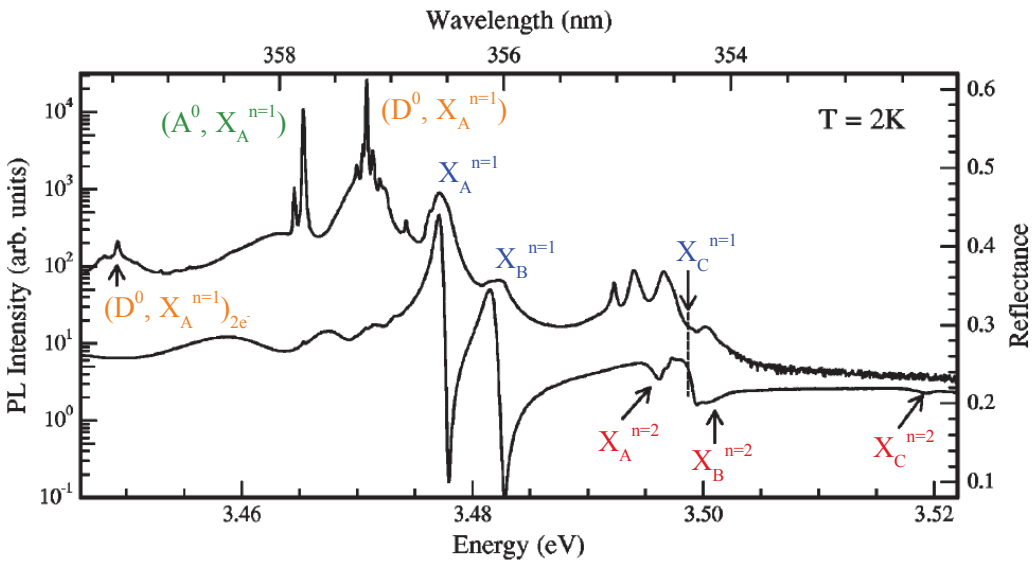


FIGURE 1.10 – *Photoluminescence et réflectivité d'une couche de GaN d'épaisseur* $1,5$ *μm crûe sur un substrat GaN (extrait de [51]).*

fondamental ($n = 1$) de grande force d'oscillateur (en bleu sur la figure) et dans leur premier niveau excité ($n = 2$, en rouge). Les transitions excitoniques fondamentales ($n = 1$) peuvent être retrouvées dans le spectre de photoluminescence. Cette mesure permet également de mettre en évidence des transitions extrinsèques, où l'exciton se lie à une impureté ou à un défaut, de force d'oscillateur faible et donc non visible sur le spectre de réflectivité. Par exemple, les transitions D^0, indiquées en orange, sont dues à un exciton A lié à un atome de silicium substituant un atome de gallium. Comme nous l'avons vu précédemment, les nitrures sont des matériaux présentant des défauts structuraux de toutes sortes. Les travaux de Reshchikov *et al.* [26] présentent une revue exhaustive des transitions optiques dans GaN liées aux défauts ponctuels. Ils rapportent ainsi plus d'une cinquantaine de transitions sur une plage énergétique allant de $3,47$ eV à $0,86$ eV. Toutes ces transitions ne sont bien entendu pas visibles dans n'importe quelle couche de GaN puisque la grande majorité d'entre elles dépendent des techniques et conditions de croissance utilisées ou encore de la nature du dopage, intentionnel ou non-intentionnel. Néanmoins, certaines raies comme l'exciton A lié à un atome de silicium ou un atome de magnésium ou encore *la bande jaune*, qui est une bande de luminescence spectralement large située aux alentours de 550 $nm/2,25$ eV, sont observables dans une grande partie des échantillons. L'origine de quelques transitions reste encore floue, en particulier celle de la bande jaune bien que les dernières études penchent pour une contribution d'un complexe carbone-oxygène [52].

Indice de réfraction et absorption optique

Les propriétés optiques macroscopiques, comme l'indice de réfraction, sont très importantes pour la maitrise de l'interaction lumière-matière à l'échelle nanométrique. Leur connaissance

est aussi cruciale pour la conception de structures photoniques et nous nous intéresserons plus particulièrement à la plage spectrale $260 - 330\ nm$ au chapitre 2 et 3. Cet indice de réfraction possède une partie réelle et une partie imaginaire et s'écrit :

$$N(\omega) = n(\omega) + ik(\omega)$$

où ω est la fréquence du rayonnement, et où le terme n tient compte de la capacité de refraction du matériau alors que la grandeur k intervient dans l'absorption $\alpha(\omega)$ du matériau qui vaut $\alpha(\omega) = \frac{\omega}{c} 2nk$.

La figure 1.11 présente les parties réelles des indices de réfraction de l'alliage $Al_xGa_{1-x}N$ pour différentes valeurs de x [53]. L'avantage de ces travaux réside dans le fait que les matériaux sont épitaxiés sur le même substrat silicium que nos échantillons. Comme les indices de réfraction dépendent du gap, et donc de la contrainte appliquée, la variation d'indice pour un alliage donné peut être relativement importante selon les conditions de croissance. Par exemple, le GaN présente un indice $n(\lambda_{400nm}) = 2,6$ sur silicium [53] alors qu'il vaudra $n(\lambda_{400nm}) = 2,45$ pour une croissance sur substrat saphir [54].

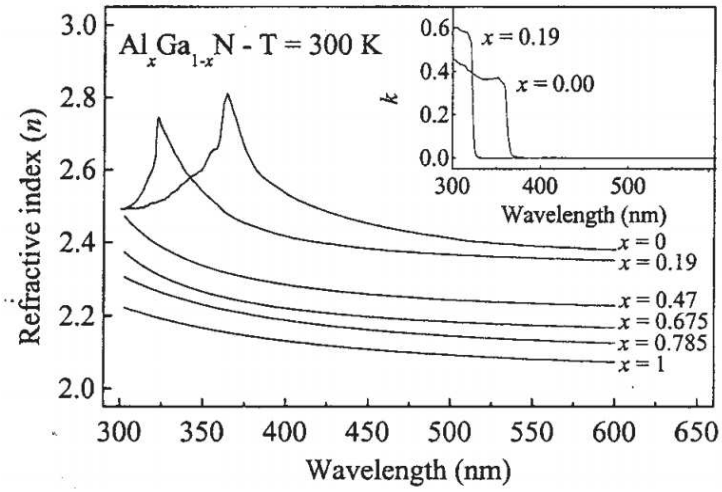


FIGURE 1.11 – *Partie réelle de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde pour plusieurs compositions d'alliages $Al_xGa_{1-x}N$ crûs sur substrat silicium (extrait de [53]). Les courbes sont obtenues par ajustement de mesures ellipsométriques.*

Dans la plage spectrale qui nous intéresse, aux alentours de 300 nm, la variation de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde est d'autant plus importante que les teneurs en aluminium sont faibles. En cause, la présence de la transition de bord de bande qui introduit une singularité de Van Hove [2].

La mesure de la partie réelle de l'indice de réfraction n dans une zone de transparence, c'est-

2. Ce pic n'est pas à proprement parler une singularité mathématique mais le terme singularité de Van Hove est repris dans la plupart des ouvrages traitant ce problème [55]

à-dire une plage spectrale où l'absorption est négligeable, peut en général être ajustée à l'aide d'une loi simple de Sellmeier du type [56] :

$$n = \sqrt{a + \frac{b\lambda^2}{\lambda^2 - c^2}} \tag{1.3}$$

où a, b et c sont des paramètres ajustables.

Les indices des matériaux ayant une forte absorption dans la zone spectrale considérée ne peuvent plus être ajustés par la précédente loi car cette dernière ne tient pas compte de la partie imaginaire k de l'indice de réfraction. Nous devons alors utiliser la loi de Kramers-Konig qui relie la partie réelle n et la partie imaginaire k de l'indice de réfraction [57].

La connaissance de la partie imaginaire de l'indice de réfraction est tout aussi importante puisque les pertes optiques sont dictées par le coefficient d'absorption α qui est proportionnel au produit nk.

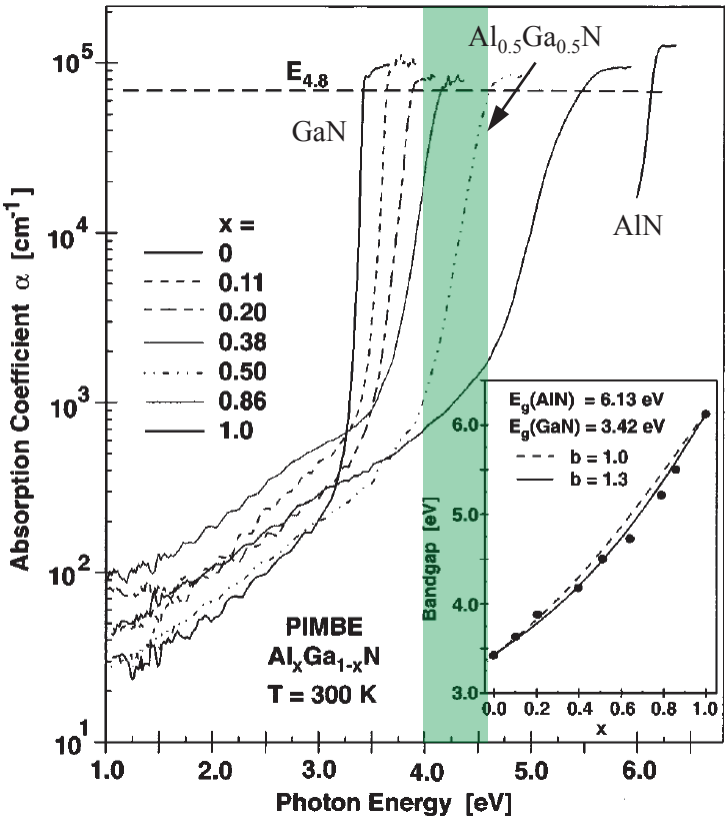


FIGURE 1.12 – *Coefficients d'absorption en fonction de l'énergie de la lumière incidente pour plusieurs alliages $Al_xGa_{1-x}N$ (extrait de [58]).*

La figure 1.12 présente l'absorption d'alliages $Al_xGa_{1-x}N$ pour différentes compositions en aluminium. Nous pouvons voir que dans la plage spectrale qui nous intéresse (mise en évidence

en vert sur la figure), le coefficient d'absorption varie de 2 ordres de grandeur pour un alliage $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$. Les photons ayant une énergie de 4 eV (310 nm) seront absorbés entièrement par 10 μm de $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ alors qu'à $4,6$ eV (290 nm), une grande partie de la lumière ne pourra pas parcourir plus de 100 nm.

Posséder les parties réelle et imaginaire de l'indice optique des alliages $Al_xGa_{1-x}N$ va s'avérer particulièrement crucial pour nos études sur les boîtes quantiques en microcavités planaires, présentées chapitre 2. En effet, le dessin optimal d'un microcavité nécessite de tenir compte des grandeurs n et k. Les miroirs utilisés sont des miroirs de Bragg, qui consistent en une alternance de fines couches d'alliages $Al_xGa_{1-x}N/Al_yGa_{1-y}N$. Leur réflectivité va dépendre du nombre de couches utilisées et de la différence d'indice de réfraction n entre les matériaux les composants. Nous devons alors choisir deux matériaux présentant une différence d'indices optiques suffisante tout en veillant à utiliser des alliages dont le coefficient d'absorption α est le plus faible possible aux longueurs d'ondes de nos études, soit aux alentours de 300 nm.

1.3 Hétérostructures de semi-conducteurs nitrures

Cette dernière partie présente une originalité importante des hétérostructures GaN/AlN, à savoir l'existence d'un champ électrique interne. Nous présenterons dans un premier temps l'origine de ce champ électrique dans les nitrures. Nous détaillerons ensuite le confinement des porteurs dans des nanostructures de type puits ou boîtes quantiques, influencé par la présence du champ électrique interne. Pour finir, nous présenterons un phénomène très important et dont il faudra absolument tenir compte lors d'interprétations d'expériences : l'écrantage du champ électrique interne.

1.3.1 Champ électrique interne dans les hétérostructures III-N

L'existence d'un champ électrique interne dans les hétérostructures nitrures a pour origine deux phénomènes distincts : l'existence d'une polarisation spontanée, propriété intrinsèque à la structure wurtzite, ainsi que d'une polarisation piézoélectrique, conséquence des contraintes appliquées lors de l'hétéro-épitaxie.

Polarisation spontanée

Comme nous l'avons vu dans la partie 1.2.1, la wurtzite n'est pas une structure cristalline centro-symétrique. De plus, l'atome d'azote a une plus forte électronégativité que le gallium ou l'aluminium, ce qui va déformer le nuage électronique participant à la liaison III-N : le barycentre des charges positives et négatives ne sera pas au même endroit. Ces deux conditions conduisent à l'existence d'un dipôle électrique à l'échelle de la cellule primitive qui engendre une polarisation spontanée P_{sp} à l'échelle du cristal. Pour des raisons de symétrie, cette polarisation est dirigée selon l'axe (0001) qui est appelé *axe polaire* [59]. Le fait que le cristal soit de dimensions

finies conduit à l'existence de plans de charges aux interfaces avec l'air ou d'autres matériaux (figure 1.13).

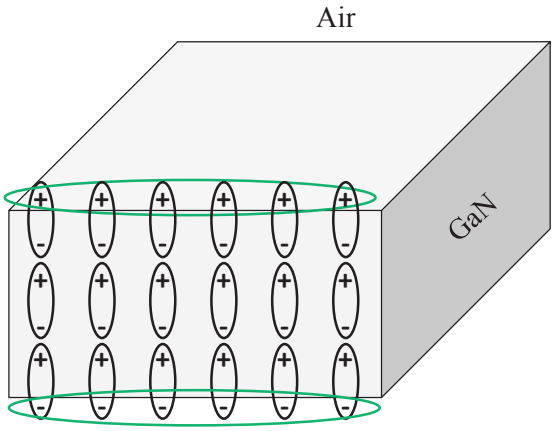


FIGURE 1.13 – *Représentation schématique des différences de polarisations pour une couche de GaN insérée dans l'air.*

Expérimentalement la grandeur P_{sp} est difficilement mesurable dans un matériau massif puisque les charges qui lui sont associées se compensent dans le volume du cristal et que les plans de charges surfaciques sont perturbés par la présence de l'interface avec l'air. Les données liées à la polarisation spontanée sont essentiellement théoriques et proviennent de modèles *ab initio* comme celui établi par Bernardini *et al.* [60].

Polarisation piézoélectrique

De part sa symétrie, la wurtzite fait partie des structures cristallines présentant à la fois une polarisation spontanée, aussi appelée pyroélectrique, et une polarisation piézoélectrique. Cette dernière apparait lorsque qu'une contrainte mécanique est appliquée au cristal, ce qui est le cas pour une croissance hétéro-épitaxiale sur silicium, comme nous l'avons vu partie 1.1.3. La valeur de la polarisation piézoélectrique en fonction de la déformation subie est donnée par la formule :

$$P_{pz}^{i} = \sum_{j} e_{ij}\epsilon_{j} \tag{1.4}$$

où e_{ij} est le tenseur piézoélectrique.

Pour une contrainte dans le plan de croissance, P_{pz} sera dirigée selon l'axe (0001) et vaudra [61] :

$$P_{pz} = 2(e_{31} - \frac{C_{13}}{C_{33}}e_{33})\epsilon_{xx} \tag{1.5}$$

où le terme ϵ_{xx} rend compte de la contrainte dans le plan (x,y) et où les coefficients C_{ij} sont les coefficients élastiques du cristal qui peuvent être trouvés dans la référence [35].

Finalement, la polarisation totale dans les nitrures est la somme des polarisations spontanée et piézoélectrique :

$$\mathbf{P}_{Tot} = \mathbf{P}_{sp} + \mathbf{P}_{pz} \tag{1.6}$$

Le tableau 1.5 résume les valeurs de la polarisation spontanée pour GaN et AlN, et les valeurs des coefficients piézoélectriques de GaN, AlN, GaAs et ZnSe.

Paramètre	GaN	AlN	GaAs	ZnSe
P_{sp} (C.m^{-2})	-0,029	-0,081	–	–
e_{31} (C.m^{-2})	-0,49	-0,60	0,06	-0,02
e_{33} (C.m^{-2})	0,73	1,46	-0,12	0,04

Tab. 1.5 – *Polarisation spontanée de GaN et AlN, et les coefficients piézoélectriques de GaN, AlN, GaAs et ZnSe. Valeurs extraites de [60].*

Nous pouvons voir que les coefficients piézoélectriques dans les nitrures sont cinq à dix fois plus importants que dans les composés cubiques III-V comme GaAs ou II-VI comme ZnSe.

Alors que le vecteur polarisation spontanée est colinéaire au vecteur unitaire dirigé selon l'axe [000-1], le sens du vecteur $\mathbf{P}_{pz}$ dépend de la contrainte appliquée [62]. Pour une épitaxie en compression, $\mathbf{P}_{pz}$ pointe vers la direction [0001] alors qu'un contrainte extensive implique un vecteur polarisation piézoélectrique pointant vers l'axe [000-1].

Champ électrique interne

Les polarisations spontanée et piézoélectrique étant différentes dans GaN et AlN, les interfaces GaN/AlN présentent donc un plan de charges lié à la discontinuité de polarisation. La figure 1.14 schématise cette situation pour une couche de GaN intercalée entre deux couches d'AlN.

Si nous considérons une structure avec une épaisseur d'AlN finie, nous pouvons remonter aux valeurs du champ électrique dans les couches de nitrure d'aluminium composant la barrière B et dans la couche de nitrure de gallium formant le puits quantique PQ en utilisant la loi de conservation du vecteur déplacement électrique $\mathbf{D}$.

Pour une séquence infinie de puits quantiques, nous avons alors [63] :

$$\mathbf{F}_B = \frac{\Delta\mathbf{P}}{\epsilon_r\epsilon_0 L_B + \epsilon_r\epsilon_0 L_{PQ}} L_{PQ} \tag{1.7}$$

$$\mathbf{F}_{PQ} = \frac{-\Delta\mathbf{P}}{\epsilon_r\epsilon_0 L_B + \epsilon_r\epsilon_0 L_{PQ}} L_B \tag{1.8}$$

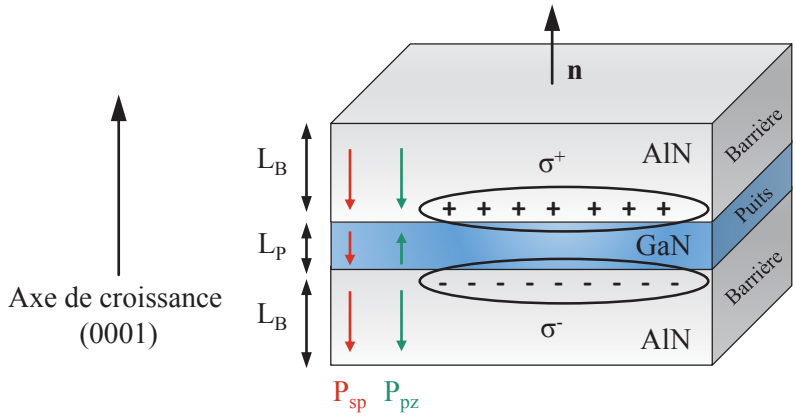


FIGURE 1.14 – *Représentation schématique des différences de polarisation pour une couche de GaN insérée entre deux couches d'AlN.*

où $\mathbf{\Delta P}$ représente la différence $\mathbf{P}_{Tot}^{AlN} - \mathbf{P}_{Tot}^{GaN}$, ϵ_r est la constante diélectrique de GaN et d'AlN, supposée égale, et ϵ_0 est la constante diélectrique du vide. En supposant que la largeur des barrières est grande devant la largeur du puits, le champ à l'intérieur du puits peut s'écrire :

$$\mathbf{F}_{PQ} = \frac{-\Delta \mathbf{P}}{\epsilon_r \epsilon_0} \tag{1.9}$$

De cette équation, retenons que le champ électrique est parallèle à l'axe de croissance puisqu'il dépend de la différence de polarisation totale et que son intensité est indépendante de la taille du puits dans la limite où les barrières sont suffisamment épaisses. Les valeurs qu'il peut prendre sont comprises entre 500 $kV.cm^{-1}$ et 10 $MV.cm^{-1}$ et dépendent fortement de la quantité d'aluminium dans les barrières ainsi que de la contrainte subie. Ainsi, les travaux de Grandjean *et al.* rapportent un champ électrique interne de 710 $kV.cm^{-1}$ pour un puits quantique GaN/$Al_{0.17}Ga_{0.83}N$ [64], ceux de Brault *et al.* mesurent un champ de $3,5$ $MV.cm^{-1}$ pour des boîtes quantiques GaN/$Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ [65], et les expériences de Bretagnon *et al.* révèlent une valeur de 9 $MV.cm^{-1}$ pour des boîtes quantiques GaN/AlN [11].

Il est intéressant de noter que pour des systèmes similaires, en l'occurence des boîtes quantiques GaN/AlN, différentes valeurs de champ électrique ont été déduites des expériences. Les travaux de Simeonov *et al.* rapportent un champ électrique de $3,8$ $MV.cm^{-1}$, soit deux fois moins que celui mesuré dans la référence [11]. Cette variation provient des différences existantes d'un échantillon à l'autre. Les contraintes et épaisseurs de barrières ne sont pas les mêmes, ce qui conduit à une variation des valeurs du champ électrique. Ainsi, le champ électrique n'est pas un propriété intrinsèque au système considéré mais plus à l'échantillon étudié, probablement en raison de contraintes différentes [66].

Nous verrons par la suite que l'existence de ce champ électrique interne induit des modifications importantes sur les niveaux d'énergie d'un puits quantique ou d'une boîte quantique, et

sur les temps de vie radiatifs des excitons au travers de *l'effet Stark quantique confiné*.

1.3.2 Confinement des porteurs dans des nanostructures

Les techniques de croissance comme l'EJM permettent la réalisation de structures semi-conductrices contrôlées à l'échelle du nanomètre. En intercalant une couche d'un matériau A entre deux couches d'un matériau B, les électrons vont se retrouver confinés dans le matériau A. Pour cela, l'épaisseur du matériau A doit être comparable à la longueur d'onde de de Broglie de l'électron, pour assurer le confinement spatial, et la différence d'énergie entre les gaps des matériaux A et B doit être suffisamment grande pour un confinement énergétique efficace. Les nanostructures confinant les électrons selon la direction de croissance sont appelées *puits quantiques* alors que celle piégeant les porteurs dans les trois directions de l'espace sont nommées *boîtes quantiques*.

Confinement spatial dans un puits quantique

Le problème du confinement d'une particule dans un puits de potentiel est abordé dans de nombreux livres de mécanique quantique, le plus célèbre étant certainement l'ouvrage de C. Cohen-Tannoudji [67]. Le traitement quantique de cette situation donne lieu à une quantification des niveaux d'énergie accessibles aux électrons. La situation est la même dans un puits quantique semi-conducteur, les électrons de la bande de conduction et les trous des bandes de valence ne peuvent avoir que des valeurs quantifiées d'énergie comme le montre la figure 1.15.

Comme dans un matériau massif, l'électron et le trou forment un exciton lié par l'interaction Coulombienne. Cependant, le confinement spatial selon la direction de croissance va introduire une modification importante sur la durée de vie radiative de l'exciton. Contrairement à ce que nous avons pu voir dans la partie 1.2.3, l'exciton dans un puits quantique possède un temps de vie fini dû à la brisure d'invariance par translation selon l'axe de croissance [68]. Ce temps de vie est inversement proportionnel à la force d'oscillateur de la transition définie plus haut [69].

Les états de conduction et de valence au sein d'un semi-conducteur massif sont décrits à l'aide du théorème de Bloch [36] :

$$\Psi_{(v,c,)\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{(v,c),\mathbf{k}}(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}.\mathbf{r}} \tag{1.10}$$

où $u_{(v,c),\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ est une fonction contenant les informations sur la nature et l'arrangement périodique des atomes du cristal.

Au sein d'une hétérostructure, les fonctions d'onde de l'électron et du trou sont déterminées dans le cadre de la théorie de la fonction enveloppe et de l'approximation de la masse effective. Ce formalisme consiste à découpler les variations de la fonction d'onde sur deux échelles différentes :

$$\Psi_{(v,c)}(\mathbf{r}) = f_{(v,c)}(\mathbf{r})u_{(v,c)}(\mathbf{r}) \tag{1.11}$$

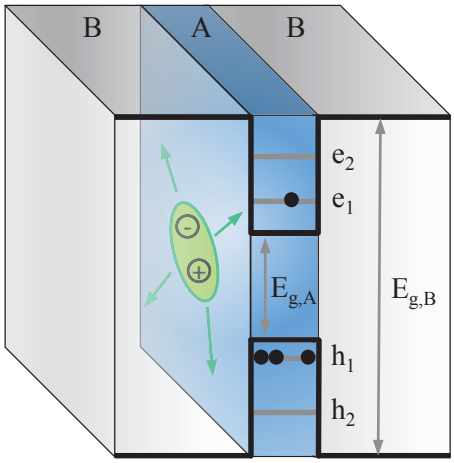


FIGURE 1.15 – *Représentation schématique de la quantification d'énergie dans un puits quantique. L'exciton est schématisé en vert.*

où $u_{(v,c)}(\mathbf{r})$ tient compte de la périodicité du potentiel à l'échelle de la maille élémentaire et $f_{(v,c)}(\mathbf{r})$ est la fonction enveloppe lentement variable à l'échelle de l'hétérostructure.

L'équation de Schrödinger pour les porteurs peut alors être remplacée par l'équation de la masse effective [69] :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\frac{\partial}{\partial z}\frac{1}{m(z)}\frac{\partial}{\partial z}+V(z)\right]f(z)=Ef(z) \tag{1.12}$$

avec $m(z)$ la masse effective de l'électron ou du trou au sein du matériau, $V(z)$ le potentiel de confinement, $f(z)$ la fonction enveloppe et E l'énergie. La résolution de cette équation permet de calculer les fonctions d'onde de l'électron et du trou ainsi que leurs niveaux d'énergie. La figure 1.16 présente les fonctions d'onde du premier niveau énergétique de l'électron et du trou pour un puits quantique GaN/AlN sans champ électrique.

Confinement spatial dans une boîte quantique

Dans une boîte quantique III-As, l'électron et le trou sont confinés dans les trois directions de l'espace. L'interaction entre ces deux particules est alors dominée par le confinement quantique et la dénomination d'exciton relève de l'abus de langage. Le terme d'interaction Coulombienne n'introduit plus qu'une correction mineure par rapport au confinement spatial. En cause, le rayon de Bohr de l'exciton qui a le même ordre de grandeur que le rayon d'une boîte quantique.

Les choses sont différentes pour une boîte quantique III-N où le rayon de Bohr de l'exciton est un ordre de grandeur plus petit que le rayon d'une boîte quantique. Le confinement latéral n'apporte alors que très peu de modifications et l'interaction électron-trou est dominée par l'interaction Coulombienne, ce qui justifie l'utilisation du terme exciton pour décrire un complexe électron-trou dans une boîte quantique GaN.

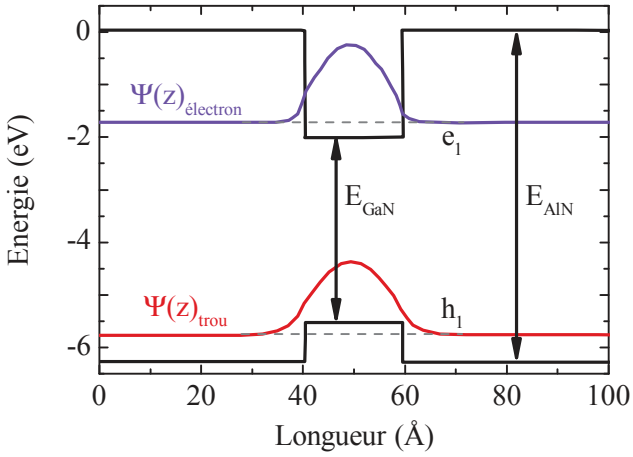


FIGURE 1.16 – *Fonctions d'onde et niveaux d'énergie de l'électron et du trou pour un puits quantique GaN/AlN sans champ électrique (extrait de [20]).*

Les méthodes de calcul utilisées pour déterminer les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde au sein d'une boîte quantique sont plus compliquées que celles utilisées pour un puits quantique et dépendent fortement de la forme de la boîte et de la contrainte subie. De nombreux travaux théoriques décrivent les états électroniques pour des boîtes quantique III-As en forme de pyramide tronquée [70], de disque [71] ou encore de demi-lentille [72].

1.3.3 Effet du champ électrique sur le confinement

Nous avons vu dans la partie 1.3.1 que les hétérostructures nitrures sont soumises à un fort champ électrique interne. Le potentiel de confinement est alors modifié par le champ électrique en introduisant une courbure au niveau des bandes de valence et de conduction. Cet effet, appelé Effet Stark Quantique Confiné (ESQC), est à l'origine d'importantes modifications sur les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde des porteurs.

Modification des niveaux énergétiques

Pour un puits quantique suffisamment épais, i.e. supérieur à 5 nm, et soumis à un champ électrique, l'énergie d'émission excitonique peut être approximée par la formule :

$$E_0 = E_{Gap} + E_{e_1} + E_{h_1} - E_X^b - eFL_P \tag{1.13}$$

avec E_X^b l'énergie de liaison de l'exciton, e la charge électrique élémentaire et F le champ électrique. Notons que cette énergie reste la même pour une boîte quantique puisqu'en première approximation le confinement latéral, plus grand que le rayon de Bohr de l'exciton, n'introduit que de faibles modifications de l'ordre de la dizaine de meV sur les niveaux d'énergie.

Pour un champ électrique assez fort, nous pouvons voir que l'énergie d'émission diminue

lorsque la largeur du puits augmente. La figure 1.17 reporte les valeurs expérimentales de l'énergie d'émission d'un puits quantique $Al_{0.17}Ga_{0.83}N/GaN$ ayant un champ électrique interne de 710 $kV.cm^{-1}$ pour différentes épaisseurs.

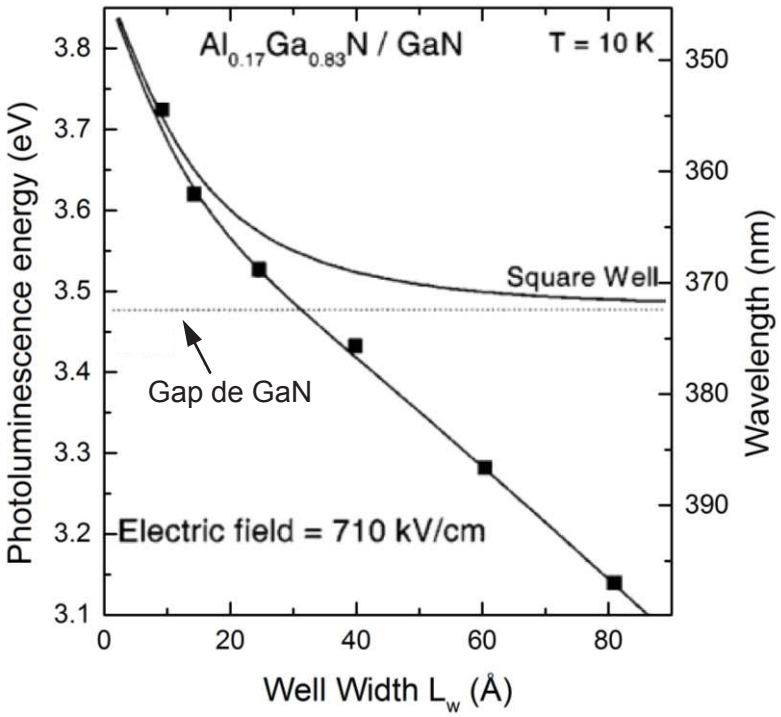


FIGURE 1.17 – *Evolution de l'énergie de photoluminescence d'un puits quantique $GaN/Al_{0.17}Ga_{0.83}N$ en fonction de son épaisseur, extrait de [64].*

Comme nous pouvons le voir sur la figure 1.17, pour une épaisseur de puits inférieure à 2 nm, les niveaux d'énergie du puits nitrure sont semblables à ceux que nous pouvons attendre pour un puits quantique sans champ électrique. Dans ce cas là, l'effet du confinement spatial est dominant et les modifications dues au champ électrique interne sont perturbatives.

Lorsque l'épaisseur du puits augmente, et vaut entre 2 nm et 3 nm, les niveaux d'énergie commencent à dévier de ce d'un puits quantique sans champ électrique. Au-dessus de 3 nm d'épaisseur, l'énergie d'émission du puits diminue considérablement et passe même sous le gap du GaN massif. Cet effet traduit le changement de régime de confinement pour les porteurs. Pour un puits émettant en-dessous de l'énergie du GaN massif, l'effet du champ électrique interne ne peut plus être négligé et apporte de profondes modifications, en particulier sur la dynamique de recombinaison des porteurs.

Modification de la dynamique de recombinaison

La courbure de bande due au champ électrique interne joue également un rôle important sur la distribution spatiale des fonctions d'onde de l'électron et du trou. La figure 1.18 (a) présente

ces fonctions d'onde, pour un puits quantique avec un champ électrique, calculées à partir de l'équation 1.12.

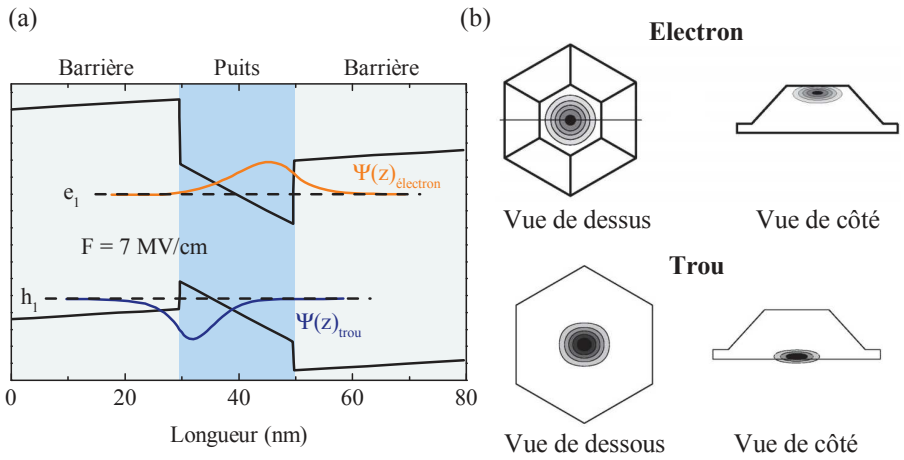


FIGURE 1.18 – *(a) Fonctions d'onde des deux premiers états excités de l'électron et du trou pour un puits quantique avec un champ électrique de* $1,4$ *MV/cm, extrait de [73]. (b) Les mêmes fonctions d'onde dans le cas d'une boîte quantique GaN/AlN de forme pyramidale, extrait de [74].*

Pour un puits suffisamment large, nous pouvons voir que les fonctions d'onde sont poussées sur les bords de la structure à cause du champ électrique qui modifie la position spatiale des porteurs selon leur charge.

En ce qui concerne les boîtes, les calculs des états quantiques sont plus compliqués. Comme nous le verrons au chapitre 2, les boîtes étudiées dans ces travaux sont obtenues par croissance Stranski-Krastanov. Ce mode de croissance conduit à la formation d'un puits quantique ayant une épaisseur comprise entre une et deux monocouches (environ $0,5$ *nm*), appelé *couche de mouillage*, surmonté de boîtes quantiques ayant une forme pyramidale. Ces boîtes sont obtenues par relaxation plastique du matériau épitaxié, ce qui implique un profil de contrainte, et une distribution du champ électrique interne, complètement différent de celui que nous pouvons avoir pour un puits quantique. Andreev *et al.* ont calculé la distribution de contrainte pour une boîte quantique ayant la forme d'une pyramide tronquée, par le formalisme de la fonction de Green, pour ensuite déterminer les fonctions d'onde de l'électron et du trou à l'aide de la théorie **k.p** 8 bandes [74]. Ces fonctions d'ondes sont représentées pour le premier niveau d'énergie sur la figure 1.18 (b). De manière analogue au puits quantique, la fonction d'onde de l'électron est poussée sur le haut de la boîte alors que celle du trou est déplacée sur le bas de la structure.

Comme nous l'avons vu précédemment, le temps de vie radiatif d'un exciton est inversement proportionnel au recouvrement des fonctions d'ondes de l'électron et du trou. Le fait que le champ électrique éloigne ces fonctions d'onde va augmenter considérablement le temps de vie des excitons. La figure 1.19 reporte les temps de vie radiatifs des excitons dans des boîtes GaN/AlN en fonction de leurs épaisseurs. Nous pouvons voir qu'en augmentant la hauteur des boîtes, le temps de recombinaison électron-trou augmente exponentiellement, atteignant des valeurs de

l'ordre de la milli-seconde pour les boîtes les plus grosses.

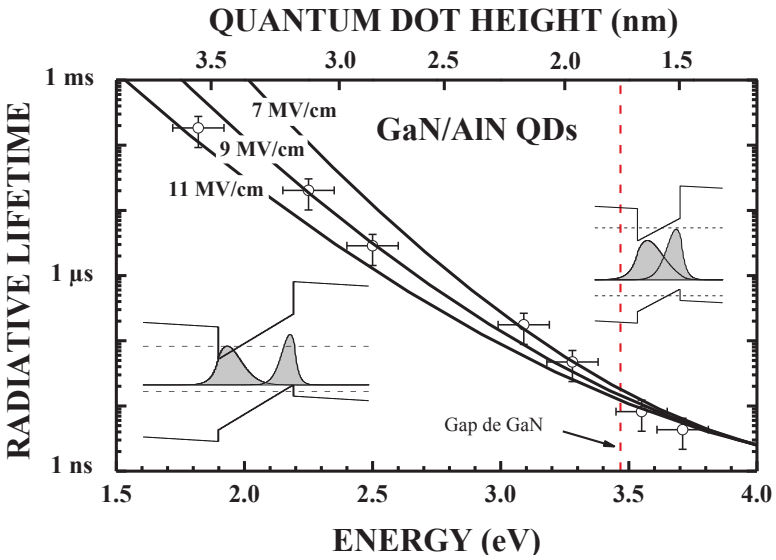


FIGURE 1.19 – *Evolution du temps de vie radiatif des excitons dans des boîtes quantiques GaN/AlN en fonction de leur énergie d'émission, extrait de [11].*

De fait, la mesure expérimentale des niveaux d'énergie et du temps de vie des porteurs doit être effectuée avec précaution. En effet, la présence de plusieurs excitons peut considérablement changer le niveau d'énergie fondamental et sa force d'oscillateur.

1.3.4 Ecrantage du champ électrique interne

L'exciton ayant un dipôle électrique, l'accumulation de charges au sein d'une boîte va créer un champ électrique. Ce champ électrique modifie la position des fonctions d'onde de l'électron et du trou et diminue le champ électrique interne induit par la polarisation totale. L'écrantage du champ électrique interne peut être observé soit en photoluminescence continue soit avec une expérience de photoluminescence résolue en temps en suivant l'évolution de l'énergie d'émission en fonction de la densité de porteurs. Les principes de ces deux techniques ainsi que les montages expérimentaux utilisés sont décrits en annexe A.

La figure 1.20 présente l'étude de la variation de l'énergie d'émission de boîtes quantiques $GaN/Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ en fonction de la puissance d'excitation pour différentes hauteurs de boîtes faites par M. Leroux au CRHEA. Les épaisseurs sont données en mono-couches (MC) de GaN.

Nous pouvons voir que l'augmentation de la puissance d'excitation génère un décalage vers les hautes énergies dû à l'augmentation de la densité de porteurs au sein des boîtes qui écrante le champ électrique interne. La situation à faible puissance d'excitation est schématisée dans l'encart gauche. Les boîtes quantiques étudiées contiennent au plus un exciton et le champ électrique interne n'est que peu écranté. En augmentant la puissance d'excitation, nous créons de plus en plus d'excitons au sein des boîtes, ce qui a pour conséquence d'écranter le champ électrique interne. Le potentiel tend alors à retrouver une forme carrée, ce qui augmente les

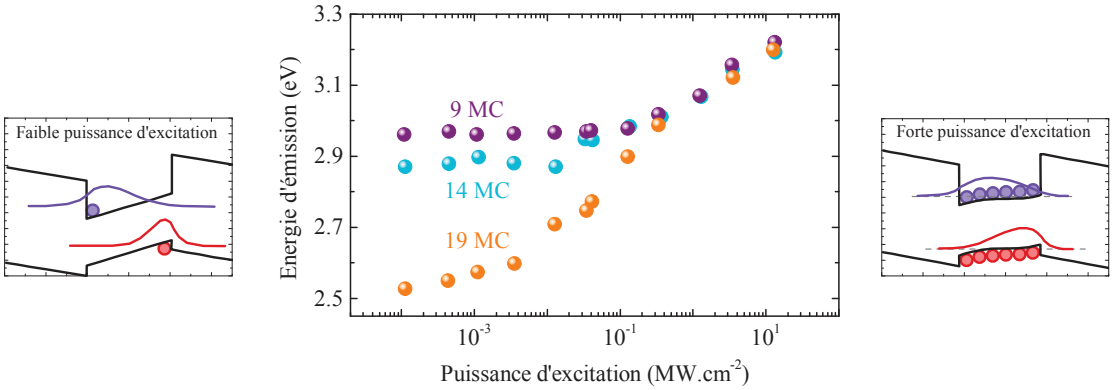


FIGURE 1.20 – *Variation de l'énergie d'émission en fonction de la puissance d'excitation de boîtes quantiques $GaN/Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ pour trois hauteurs différentes. Les données sont extraites de la référence [75].*

niveaux d'énergies et modifie la répartition spatiale des fonctions d'ondes de l'électron et du trou. Notons que pour les boîtes quantiques les plus épaisses, le décalage commence aux alentours de $10^{-4} MW.cm^{-2}$, ce qui n'est pas le cas pour les boîtes de 9 MC, où l'augmentation du niveau d'énergie démarre vers 10^{-1} $MW.cm^{-2}$. Cette particularité provient du fait que le temps de vie τ des excitons dans une hétérostructure nitrure croît exponentiellement avec l'épaisseur du système. Or, l'évolution de la densité de porteurs s'écrit :

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{n}{\tau} + G_r \tag{1.14}$$

où G_r tient compte de la génération des porteurs.

Ainsi, plus les boîtes sont épaisses et plus la densité stationnaire d'excitons est importante, ce qui favorise l'écrantage du champ interne à plus basse puissance d'excitation.

Les expériences de photoluminescence résolue temporellement sur les hétérostructures nitrures, spécialité de l'équipe au L2C, fournissent les mêmes informations tout en permettant d'accéder à la dynamique temporelle du phénomène. La figure 1.21 présente l'évolution temporelle de l'intensité de luminescence de boîtes quantiques GaN/AlN. Le panneau (a) est une image obtenue à partir d'une caméra à balayage de fente. Nous pouvons voir que l'énergie d'émission se décale continuellement vers les basses énergies sur une échelle temporelle d'environ 10 ns, pour ensuite se stabiliser.

Le décalage vers le rouge est mis en évidence sur la figure 1.21 (b) en intégrant temporellement sur 2 ns la luminescence, à plusieurs instants différents. Ce décalage s'explique de la même façon que pour les expériences de photoluminescence continue. Juste après l'impulsion laser, les boîtes contiennent plusieurs excitons qui écrantent le champ électrique interne. Le niveau d'énergie fondamental est alors modifié et se trouve plus haut que le "vrai" niveau, à un seul exciton dans la boîte quantique. Lorsqu'il ne reste plus qu'un exciton par boîtes quantiques, l'énergie de luminescence reste stable et nous pouvons mesurer le niveau d'énergie fondamental du système.

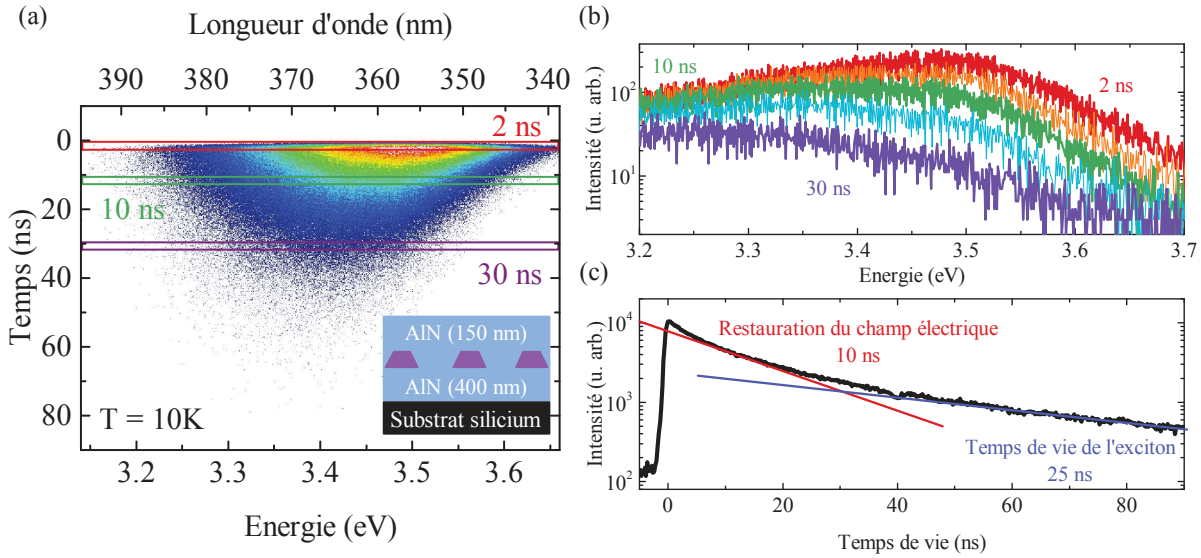


FIGURE 1.21 – *(a) Image d'un déclin de photoluminescence de boîtes quantiques GaN/AlN obtenue à l'aide d'une caméra à balayage de fente. L'insert est une représentation schématique de l'échantillon étudié (A830). (b) Spectres de photoluminescence intégrés sur 2 ns, les intervalles temporels sont indiqués sur l'image (a). Les spectres sont décalés verticalement pour une meilleur lisibilité. (c) Déclin de la luminescence intégrée sur toute la plage spectrale disponible (3 eV − 3,7 eV). L'échantillon est excité par la troisième harmonique d'un laser titane-saphir émettant à 266 nm, ayant un taux de répétition de 4 MHz et une largeur d'impulsion de l'ordre de la picoseconde. La détection se fait à l'aide d'une caméra à balayage en mode comptage de photon, dont le principe est décrit dans l'annexe A.*

Nous avons tracé sur le panneau (c) le déclin temporel de l'intensité intégrée sur toute la plage spectrale disponible. Nous pouvons voir que ce déclin présente plusieurs composantes temporelles. La partie rapide représente le temps de restauration du champ électrique, c'est-à-dire le temps de recombinaison moyen des $N-1$ excitons présent dans le système à $t=0$, et la partie lente le temps de vie radiatif de l'exciton. La valeur trouvée pour le temps de recombinaison moyen vaut environ 25 ns, ce qui est en accord avec les travaux de Bretagnon *et al.* présentés figure 1.19 et rapportant un temps de vie de 20 ns pour des boîtes quantiques émettant à $3,3$ eV [11]. Notons qu'il existe un faible signal aux temps négatifs, deux ordres de grandeur plus petit que le signal de luminescence à $t=0$, lié au taux de répétition choisis.

La photoluminescence résolue temporellement est une technique très importante puisque c'est grâce à elle que les premières mesures expérimentales de champ électrique interne ont pu être établies dans des puits GaN/AlGaN [76].

1.4 Conclusion

Ce premier chapitre a été l'occasion de présenter les propriétés de base des semi-conducteurs nitrures.

Nous avons pu voir que la croissance d'hétérostructures GaN/AlN étudiées dans ce manuscrit se fait par hétéro-épitaxie sur substrat silicium. Cette technique introduit **une importante densité de défauts structuraux, entre 10^8 cm^{-2} et 10^{10} cm^{-2}**, qui paradoxalement n'affecte pas de manière dramatique les propriétés de luminescence du matériau.

Les composés III-N cristallisent sous forme wurtzite. Cette structure géométrique implique un décalage des barycentres des charges positives et négatives, et donc l'apparition d'une polarisation spontanée, ainsi qu'une forte piézo-électricité. La contrainte subie par le matériau due à l'hétéro-épitaxie combinée à la polarisation spontanée donne lieu **à l'existence d'un champ électrique interne important, compris entre 1 et 10 MV/cm et qui dépend de la concentration en aluminium de la barrière**. Ce champ électrique est à l'origine de deux phénomènes propres aux nitrures :

— **La diminution des niveaux d'énergies d'un puits ou d'une boîte quantique**. Pour une nanostructure suffisamment épaisse, c'est-à-dire ayant une hauteur supérieure à 3 nm, l'énergie d'émission peut passer sous le gap du GaN massif.

— **L'augmentation des temps de vie radiatifs et par conséquent, la diminution de l'efficacité radiative**. Que ce soit pour une boîte ou pour un puits, le champ électrique va "pousser" les fonctions d'ondes de l'électron et du trou sur les bords de la structure, ce qui a pour conséquence d'augmenter exponentiellement le temps de vie radiatif des excitons. Pour des boîtes quantiques GaN/AlN ayant une épaisseur supérieure à 4 nm, des temps de vie approchant la milli-seconde sont mesurés.

Expérimentalement, la mesure de ces deux grandeurs doit être faite en considérant la densité d'excitons au sein de la structure. **Plus la densité de porteurs sera importante et plus le champ électrique interne va être écranté**. Cet écrantage conduit à une augmentation transitoire du niveau d'énergie d'émission et impacte la dynamique de recombinaison. Ainsi le déclin de la luminescence n'est pas mono-exponentiel. **La partie rapide de ce déclin traduit le désécrantage du champ électrique interne alors que la partie lente est reliée au temps de recombinaison d'un seul exciton**.

Chapitre 2

Propriétés optiques des boîtes quantiques GaN/AlN

Malgré l'utilisation massive des matériaux nitrures dans l'industrie optoélectronique pour les diodes électroluminescentes ou les diodes lasers, les propriétés optiques de nanostructures comme les boîtes quantiques GaN/$Al_xGa_{1-x}N$ restent, à l'heure actuelle, mal connues. Les principales causes sont la complexité des techniques de croissance nécessaire à l'obtention de systèmes de bonne qualité cristalline et le champ électrique interne des boîtes en phase wurtzite qui affecte dramatiquement les propriétés optiques. Ces problèmes ont pu être résolus dans les dispositifs commerciaux, qui utilisent généralement du GaN ou un alliage AlGaN massif, au prix de recherches intensives sur les techniques de croissances. Les nanostructures nitrures crûes en phase wurtzite n'ont pas reçu la même attention, une partie de la communauté III-N s'en détournant même pour privilégier les hétérostructures non-polaires où l'influence du champ électrique interne est beaucoup moins importante, limitant ainsi les possibilités d'études optiques relativement pointues.

Ce second chapitre est consacré à l'étude des propriétés de luminescence d'ensembles de boîtes quantiques GaN/AlN mais également de boîtes quantiques uniques. Nous présenterons dans la partie 2.1 les problématiques liées aux boîtes quantiques nitrures ainsi que les différents travaux existants sur ces systèmes. Nous étudierons, dans la section 2.2, les propriétés optiques d'ensemble de boîtes quantiques GaN/AlN émettant à haute énergie, aux alentours de $4,2\ eV$, au travers d'expériences de photoluminescence continue et de photoluminescence résolue temporellement. Nous verrons que ces études posent plus de questions qu'elles n'en résolvent et que l'analyse des propriétés optiques d'une seule boîte est nécessaire. L'un des plus gros problèmes dans l'étude d'un nano-objet unique en physique des semi-conducteurs est la faible extraction des photons émis par la nanostructure dans une matrice de fort indice. Nous verrons dans la partie 2.3 qu'il peut être en partie contourné en plaçant nos boîtes quantiques dans des *microcavités planaires*. Le dessin de ces microcavités est primordial et un travail de simulation numérique préalable à leur fabrication est nécessaire. Nous présenterons également dans cette

partie les différentes structures choisies à partir de nos calculs d'extraction de lumière. Pour finir, la partie 2.4 exposera les travaux préliminaires effectués sur des boîtes quantiques uniques.

Sommaire

2.1 Problématique et état de l'art **41**
2.2 Etudes des propriétés optiques d'ensembles de boîtes quantiques GaN/AlN **42**
2.2.1 Présentation de l'échantillon étudié 42
2.2.2 Expériences de photoluminescence résolue temporellement 44
2.2.3 Etude du déclin de la luminescence en fonction de la puissance d'excitation 47
2.3 Microcavités nitrures pour l'étude de boîtes quantiques uniques . . **48**
2.3.1 Confinement de la lumière dans une microcavité planaire 49
2.3.2 Modification du diagramme de rayonnement d'une boîte quantique . . . 54
2.3.3 Présentation des différentes microcavités 58
2.3.4 Fabrication et caractérisation des échantillons 69
2.4 Spectroscopie de boîtes quantiques uniques en microcavité planaire **76**
2.4.1 Boîtes quantiques GaN en microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ 76
2.4.2 Boîtes quantiques GaN en microcavité AlN 79
2.5 Conclusion **83**

2.1 Problématique et état de l'art

Contrairement à leurs homologues en arséniures, étudiés depuis les années 1990, les propriétés optiques des boîtes quantiques nitrures sont bien moins connues. Depuis que les techniques de croissances des semi-conducteurs III-As permettent la réalisation d'échantillons où il est possible de mesurer l'élargissement homogène du spectre de photoluminescence d'une boîte quantique unique [77], de nombreuses expériences ont pu être menées sur ces systèmes. Les recherches actuelles sur les boîtes quantiques à base d'arsenic en sont à un stade relativement avancé et portent essentiellement sur le contrôle de l'état quantique d'une excitation élémentaire pour de potentielles applications en information quantique [78, 79, 80]. Du côté des boîtes quantiques nitrures, l'état de l'art n'est pas aussi développé. Ce n'est que très récemment que des phénomènes bien connus dans les III-As comme la diffusion spectrale [81], la structure fine de l'exciton [82] ou bien le comportement du bi-exciton [83] ont pu être observés et analysés dans des boîtes quantiques GaN/AlN. Ce retard provient essentiellement de la qualité cristalline des matériaux nitrures utilisés ainsi que du champ électrique interne qui modifie les propriétés optiques, notamment le temps de vie radiatif des excitons. Concernant ce dernier point, dont l'étude est la spécialité de l'équipe, il n'existe que peu de travaux dans la littérature effectués sur des boîtes quantiques polaires GaN/AlN. Les travaux de Kako *et al.* présentent les temps de vie radiatifs d'excitons confinés dans des boîtes quantiques d'épaisseur différentes, et ayant donc des énergies d'émission différentes. Leurs expériences de photoluminescence résolue en temps ont permis de

mesurer des temps de vie allant de la micro-seconde, pour les boîtes les plus grosses émettant à $2,5\ eV$ ($500\ nm$), jusqu'à la centaine de pico-secondes pour les plus petites boîtes quantiques émettant à $4,4\ eV$ ($280\ nm$) [84]. Les auteurs observent un déclin de luminescence bi-exponentiel pour l'ensemble des familles de boîtes ; ce comportement est interprété par la contribution d'un puits quantique très fin, appelé couche de mouillage, situé sous les boîtes et dont l'existence relève du mode de croissance utilisé. La création des porteurs se faisant directement dans la barrière en AlN, et non dans les boîtes, il est impossible d'observer le comportement intrinsèque du déclin de luminescence des boîtes quantiques. Quelques années plus tard, les travaux de Bretagnon *et al.*, effectués au sein de notre équipe, ont permis de mesurer les temps de vie radiatif intrinsèque de boîtes quantiques GaN/AlN en utilisant une excitation à $4,66\ eV$ ($266\ nm$), en dessous des niveaux énergétiques de la couche de mouillage et de la barrière en AlN [11]. Cette étude a infirmé les résultats obtenus par Kako *et al.*, à savoir que le comportement bi-exponentiel du déclin de la luminescence provient de la couche de mouillage. Les mesures effectuées à l'aide d'une caméra à balayage de fentes, qui permet une résolution temporelle et spectrale, ont permis d'observer un déclin bi-exponentiel et ont mis en évidence un décalage vers le rouge sur une échelle de temps de l'ordre de la dizaine de nano-secondes. Ce décalage traduit une restauration de l'effet Stark quantique confiné qui est associée à la composante rapide du déclin. Malheureusement, ces études n'ont pas pu être reproduites sur des petites boîtes quantiques, où le champ électrique n'introduit qu'un effet perturbatif, ce qui empêche de conclure sur la dynamique de relaxation des boîtes émettant à haute énergie.

Les travaux présentés dans la suite de ce chapitre portent sur les propriétés optiques de "petites" boîtes quantiques, essentiellement pour étudier les temps de vie radiatifs de ces systèmes, mais également car ce sont les nanostructures nitrures les plus intéressantes en termes d'applications puisque ce sont celles où le champ électrique interne n'a que peu d'influence.

2.2 Etudes des propriétés optiques d'ensembles de boîtes quantiques GaN/AlN

Nous présentons dans cette partie le principe de fabrication des boîtes quantiques GaN/AlN ainsi que l'étude de leurs propriétés optiques, effectuée à l'aide d'expériences de photoluminescence résolue temporellement et spectralement.

2.2.1 Présentation de l'échantillon étudié

L'essentiel des travaux présentés dans ce chapitre ont été effectués sur des boîtes quantiques GaN/AlN. Nous présentons dans cette partie l'échantillon qui nous a permis d'étudier les propriétés d'ensembles de boîtes quantiques. Nous verrons que la technique de croissance utilisée nous permet d'avoir une importante dispersion en taille des boîtes quantiques sur un même échantillon, ce qui est un avantage dans le cas présent car nous avons vu au chapitre 1 que le champ électrique interne dépend de la contrainte subie et donc de l'échantillon.

Croissance des boîtes quantiques

La croissance des boîtes quantiques se fait par épitaxie par jets moléculaires (EJM), dont le principe est décrit au chapitre 1. Le substrat silicium utilisé fait environ 5 *cm* de diamètre, soit 2 pouces. Du fait de la géométrie du bâti, il doit tourner à vitesse constante pendant la croissance pour que les matériaux déposés aient une épaisseur constante sur tout son diamètre.

Les boîtes quantiques sont des boîtes auto-organisées, crûes selon le mode de croissance *Stranski-Krastanov*. Ce mode consiste à utiliser l'énergie élastique accumulée lors du dépôt d'un matériau A sur un matériau B dont les paramètres de maille ne sont pas identiques, pour permettre au matériau A de relaxer élastiquement et ainsi former les boîtes quantiques. Pour les matériaux nitrures, la réalisation par EJM assistée ammoniac de boîtes quantiques dans les conditions normales de croissance ne peut se faire qu'en baissant la température d'environ 200° C par rapport à la température de croissance du GaN, qui est de 800° C, ce qui conduit à des nanostructures de mauvaise qualité [85]. Une façon de réaliser des boîtes quantiques de bonne qualité est de laisser l'échantillon à 800° C, la température de croissance du GaN, de stopper le dépôt de GaN et de couper le flux d'ammoniac. Dans ces conditions, la formation de boîtes quantiques intervient après le dépôt de 2 mono-couches de GaN pour les systèmes GaN/AlN et 5 mono-couches de GaN pour les systèmes GaN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Cette différence provient du fait que le désaccord de paramètres de maille pour GaN/AlN est plus important que pour GaN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, ce qui implique une plus grande quantité de matière à déposer dans ce dernier cas afin que l'énergie élastique emmagasinée soit suffisante pour la formation des boîtes quantiques.

De plus, le dépôt de GaN servant à former les boîtes peut être effectué lorsque le substrat ne tourne plus. Cela nous permet de faire varier la quantité de matière déposée sur le substrat, et d'avoir ainsi une densité de boîtes quantiques faible sur la zone située à l'opposé de la cellule de gallium. Cette technique implique cependant une importante dispersion en épaisseur, qui varie généralement entre 3 et 10 mono-couches de GaN. Notons enfin que la méthode de croissance Stranski-Krastanov favorise l'apparition d'une couche 2D sur laquelle se forment les boîtes quantiques, appelée *couche de mouillage*. Dans les systèmes GaN/AlN cette couche a une épaisseur de 2 mono-couches de GaN et de 5 mono-couches pour les boîtes quantiques GaN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Une présentation plus détaillée de la croissance des boîtes quantiques GaN/AlN peut être trouvée dans [20].

Expérience de photoluminescence en détection continue

L'échantillon étudié dans cette partie est composé de boîtes quantiques GaN crûes sur une couche tampon d'AlN ayant une épaisseur de 400 *nm*, et recouvertes par 150 *nm* d'AlN. La figure 2.1 (a) présente un spectre de photoluminescence à basse température, réalisé sous excitation impulsionnelle femtoseconde à 266 *nm*.

La zone de l'échantillon étudié est une zone où la densité de boîtes quantiques est de l'ordre de 10^{10} cm^{-2} et présente plusieurs pics de luminescence, dont chacun peut être associé à une

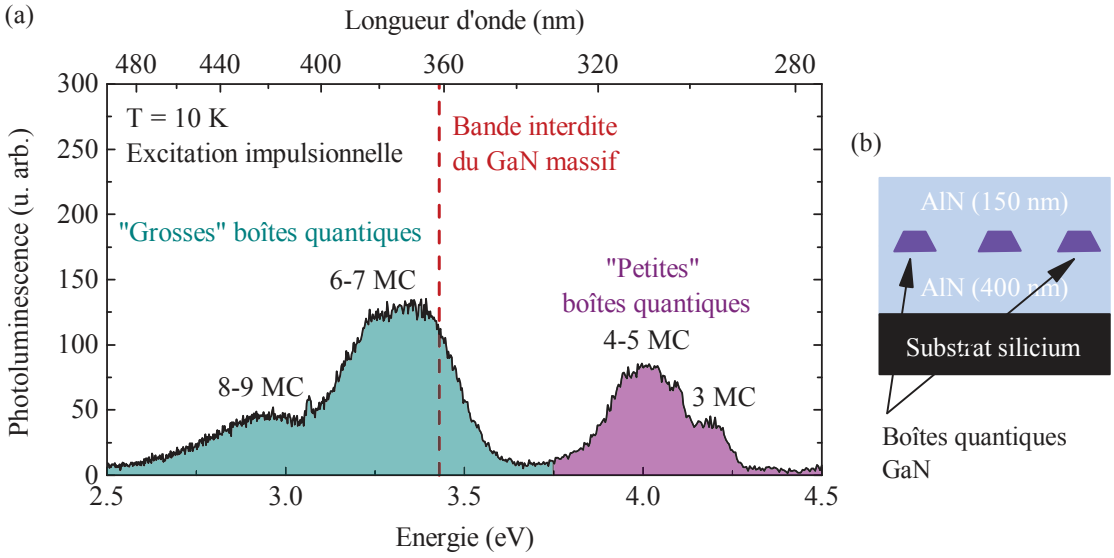


FIGURE 2.1 – *(a) Photoluminescence d'un échantillon de boîtes quantiques GaN/AlN. La correspondance entre épaisseur déposée et énergie d'émission est effectuée à l'aide de [20]. (b) Schéma de la structure de l'échantillon étudié (A1831).*

épaisseur de boîtes quantiques. La correspondance entre épaisseur de boîtes et énergie d'émission est faite à l'aide des travaux de thèse de S. Sergent, où une étude poussée sur l'énergie de luminescence des boîtes quantiques en fonction de la quantité de GaN déposée lors de croissance a été effectuée [20]. L'élargissement inhomogène de chaque pic provient essentiellement de la dispersion en diamètre pour des boîtes quantiques ayant la même épaisseur. La distribution en épaisseur des boîtes étant relativement importante, nous pourrons étudier sur un même échantillon les boîtes quantiques émettant à plus basse énergie que le GaN massif, où le champ électrique interne modifie profondément la dynamique de recombinaison excitonique, et celles dont l'énergie d'émission est plus importante que celle du GaN, où le champ interne n'a qu'un effet perturbatif.

2.2.2 Expériences de photoluminescence résolue temporellement

Le principe de l'expérience de photoluminescence résolue temporellement effectuée dans cette partie est présenté annexe A. La figure 2.2 présente une mesure du déclin de la photoluminescence de boîtes quantiques ayant une épaisseur comprise entre 6 et 7 mono-couches de GaN, émettant vers $3,2\ eV$ ($390\ nm$). Le laser utilisé est un laser titane-saphir impulsionnel triplé en fréquences et dont le taux de répétition est de $4\ MHz$.

Le panneau (a) est une image obtenue à la caméra à balayage de fentes, qui permet une résolution temporelle et spectrale de la luminescence des boîtes quantiques. A $t = 0$, soit juste après l'impulsion laser, la luminescence est centrée vers $3,28\ eV$ ($377\ nm$). Temporellement, nous pouvons observer un décalage spectral, puis une stabilisation de l'énergie d'émission aux alentours de $3,17\ eV$ ($391\ nm$). Ce décalage, dont nous avons déjà parlé dans le chapitre 1, provient de

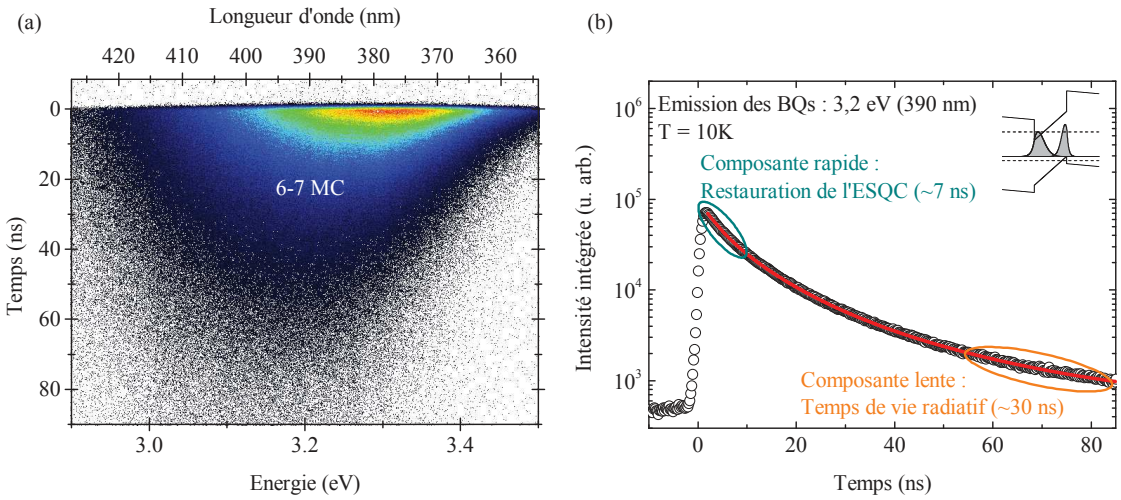


FIGURE 2.2 – *(a) Photoluminescence résolue temporellement et spectralement de boîtes quantiques GaN/AlN émettant aux alentours de* $3,2\ eV$ *(*$390\ nm$*). L'image est obtenue à l'aide d'une caméra à balayage de fentes. (b) Évolution temporelle de la photoluminescence intégrée sur tout la plage spectrale disponible. La courbe rouge est un ajustement des points expérimentaux à l'aide d'une fonction bi-exponentielle. les mesures sont effectuées à* $10K$*.*

l'écrantage du champ électrique interne par les excitons présents dans les boîtes quantiques. Au fur et à mesure que les porteurs confinés dans les boîtes quantiques se recombinent, l'influence du champ interne devient de plus en plus importante, ce qui a pour conséquence de réduire l'énergie d'émission des boîtes quantiques.

L'intégration, sur toute la plage spectrale disponible, de la luminescence des boîtes quantiques est représentée figure 2.2 (b). Nous pouvons voir que le déclin temporel de la luminescence n'est pas mono-exponentiel, mais présente deux composantes. En supposant que le déclin reflète la co-existence de deux phénomènes de temps caractéristiques, τ_{rap} et τ_{lent}, la dynamique de recombinaison des excitons dans des boîtes quantiques GaN peut être déterminée en ajustant les points expérimentaux à l'aide d'une fonction du type :

$$f(t) = y_0 + A_{rap.}e^{-t/\tau_{rap.}} + A_{lent}e^{-t/\tau_{lent}} \tag{2.1}$$

Pour des boîtes quantiques GaN/AlN émettant à $3,2\ eV$ ($390\ nm$), nous trouvons un temps caractéristique pour la composante rapide d'environ $7\ ns$, qui correspond à la restauration de l'effet Stark quantique confiné, et une constante de temps plus longue, environ $30\ ns$, qui est la durée de vie moyenne, à température cryogénique, d'un exciton dans une boîte quantique GaN/AlN crûe sur substrat silicium. Cette dernière valeur correspond relativement bien aux travaux de Bretagnon *et al.*, qui rapportent un temps de vie radiatif d'environ $35\ ns$ pour des boîtes quantiques GaN/AlN émettant aux environs de $3,2\ eV$ ($390\ nm$) [11].

Nous avons représenté sur la figure 2.3 (a) l'évolution temporelle et spectrale de la luminescence de boîtes quantiques émettant vers $4,1\ eV$ ($305\ nm$), mesurées dans les mêmes conditions

expérimentales que pour les boîtes quantiques ayant une épaisseur de 6-7 mono-couches. Pour des boîtes ayant une épaisseur de 3 mono-couches de GaN, nous n'observons aucun décalage vers les basses énergies, qui traduirait un écrantage du champ électrique interne. En l'absence de restauration de l'effet Stark et en supposant négligeables les processus de recombinaison non-radiative à $10K$, nous nous attendons à observer un déclin de photoluminescence mono-exponentiel.

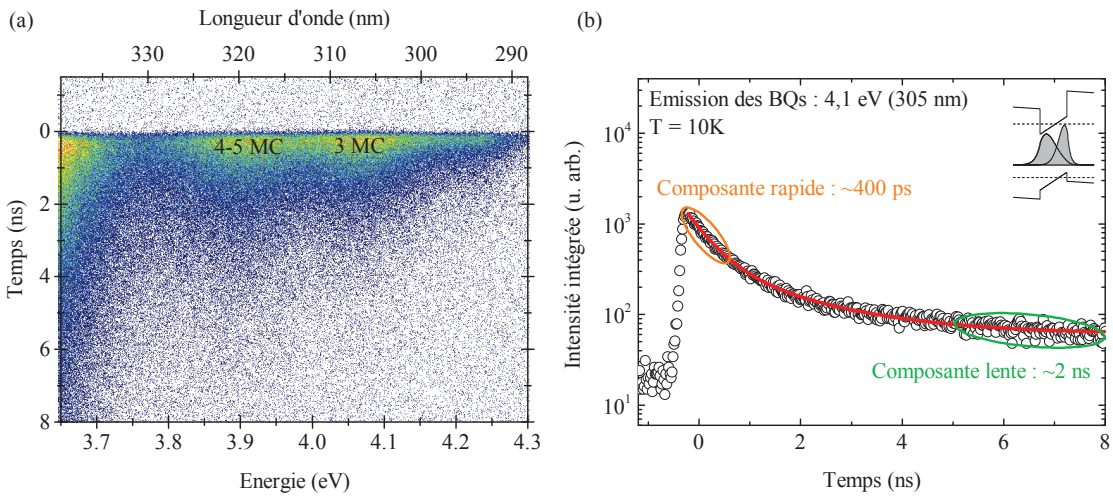


FIGURE 2.3 – *(a) Photoluminescence résolue temporellement et spectralement de boîtes quantiques GaN/AlN émettant aux alentours de* $4,1$ *eV* (305 *nm*). *L'image est obtenue à l'aide d'une caméra à balayage de fentes. (b) Évolution temporelle de la photoluminescence intégrée entre* $3,99$ *eV et* $4,13$ *eV. La courbe rouge est un ajustement des points expérimentaux à l'aide d'une fonction bi-exponentielle. Les mesures sont effectuées à* $10K$ *avec la troisième harmonique d'un laser impulsionnel titane-saphir à* 266 *nm, dont le taux de répétition est de* 4 MHz *et la largeur temporelle de l'impulsion de l'ordre de la picoseconde.*

La figure 2.3 (b) présente la luminescence intégrée sur la plage spectrale $3,99 - 4,13$ eV ($300-310$ nm), qui correspond à l'émission des boîtes quantiques ayant une épaisseur de 3 mono-couches de GaN. Contrairement à ce qui était attendu, le déclin de la luminescence présente un comportement bi-exponentiel. L'énergie d'émission étant constante au cours du temps, cela nous permet d'écarter la contribution de la restauration de l'effet Stark dans la composante rapide. Dès lors, les mécanismes les plus probables pour expliquer l'origine du déclin bi-exponentiel observé peuvent être de deux natures :

(i) La composante rapide peut provenir d'interactions exciton-exciton mettant en jeu la recombinaison radiative de complexes multi-excitoniques, comme le biexciton ou l'exciton chargé, ou bien la recombinaison exciton-exciton par effet Auger. Dans cette hypothèse, le temps de vie radiatif d'un exciton serait associé à la composante lente.

(ii) La composante lente peut traduire l'intervention d'un état excitonique noir, de spin ± 2 comme nous l'avons vu dans la partie 1.2.3, et qui ne peut donc émettre un photon que par le biais d'interactions exciton-phonon permettant de changer le spin du premier et

de le faire passer dans un état optiquement actif. Ce cas de figure a été observé pour la première fois dans des nanocristaux de CdSe/ZnS par Nirmal *et al.* à l'aide d'expériences de photoluminescence sous champ magnétique [86]. Quelques années plus tard, les travaux de Labeau *et al.* ont mis en évidence, à des températures cryogéniques, un déclin de luminescence bi-exponentiel pour des boîtes quantiques CdSe/ZnS. La dépendance en température du déclin a permis de conclure que la luminescence des boîtes provient de deux états excitoniques ayant respectivement un spin ± 1 ou ± 2 [87]. Dans cette interprétation, la composante rapide correspondrait au temps de vie moyen d'un exciton dans une boîte quantique.

Le cas de figure (i) peut facilement être examiné à l'aide d'expériences de photoluminescence résolue en temps sur des ensembles de boîtes quantiques. En augmentant la puissance d'excitation, l'intensité de la composante rapide $A_{rap.}$ devrait croître quadratiquement car les interactions exciton-exciton ont une dépendance en n^2, où n est la densité d'excitons. La deuxième hypothèse est plus délicate à confirmer. Elle nécessite l'étude du déclin de luminescence d'une seule boîte quantique en fonction de la température. Ces expériences sont plus compliquées à réaliser que celles sur des ensembles de boîtes, en raison du faible nombre de photons émis et collectés. Nous verrons cependant dans la partie 2.3 que ce problème peut être partiellement contourné en utilisant des microcavités planaires.

2.2.3 Etude du déclin de la luminescence en fonction de la puissance d'excitation

Les études de photoluminescence résolue temporellement en fonction de la puissance d'excitation et effectuées sur des boîtes quantiques émettant à $4,1\ eV$ ($305\ nm$) sont reportées sur la figure 2.4. L'intégration de l'intensité est faite sur la même plage spectrale que précédemment, à savoir $3,99 - 4,13\ eV$ ($300 - 310\ nm$).

Le panneau (a) présente trois mesures du déclin temporel de la photoluminescence pour différentes puissances d'excitation où les ajustements des points expérimentaux, en traits noirs, sont obtenus à l'aide de l'équation 2.1. La puissance P_0 correspond à la valeur de la puissance utilisée dans l'expérience présentée figure 2.3. Les valeurs des temps caractéristiques de chaque composante sont représentées dans l'insert du panneau (a). Sur une décade de puissance les constantes de temps mesurées ne varient pas : elles valent $400 \pm 50\ ps$ pour le temps rapide et $2 \pm 0,5\ ns$ pour la composante lente. Nous avons tracé sur le panneau (b) l'évolution en fonction de la puissance d'excitation du coefficient $A_{rap.}$, qui correspond à l'amplitude de la composante rapide. La droite rouge est un ajustement linéaire en puissance, qui reproduit bien les mesures. Ce comportement nous permet d'exclure la contribution d'effets à plusieurs corps dans le terme de recombinaison rapide puisque les processus mettant en jeu des interactions exciton-exciton varient comme le carré de la densité de porteurs et suivent donc une loi quadratique en fonction de la puissance d'excitation.

Afin de vérifier notre seconde hypothèse, impliquant un état excitonique "noir", nous devons

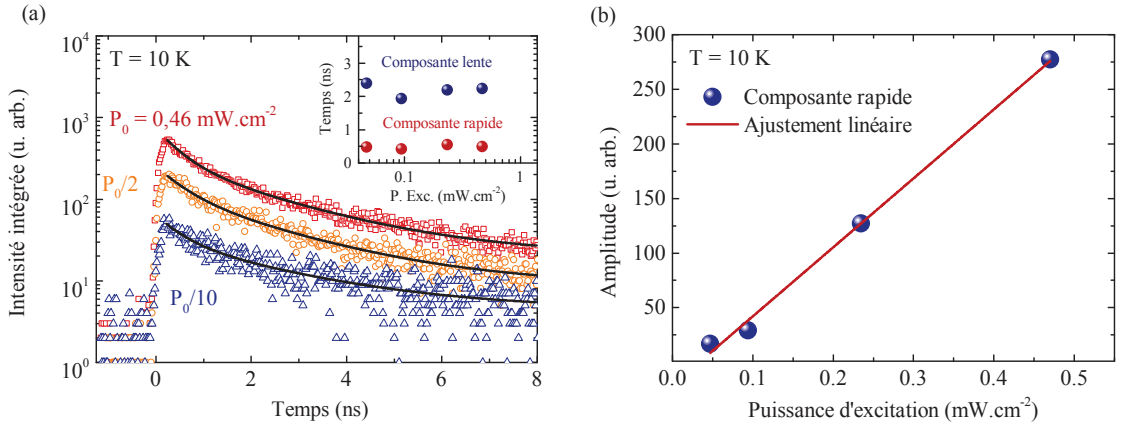


FIGURE 2.4 – *(a) Évolution temporelle de la luminescence de boîtes quantiques GaN/AlN émettant aux alentours de* $4,1\ eV$ *(*$305\ nm$*) pour plusieurs puissances d'excitation. L'insert présente les valeurs des constantes de temps des composantes rapide et lente en fonction de la puissance d'excitation. (b) Dépendance en puissance de l'amplitude* $A_{rap.}$ *de la composante rapide. Le trait rouge représente un ajustement linéaire des points expérimentaux.*

réaliser des expériences de photoluminescence résolue en temps sur une boîte quantique unique. En effet, la mesure d'un déclin à deux temps caractéristiques sur une seule et même raie, spectralement fine, de boîte quantique unique, montrerait que chaque boîte présente cette dynamique de recombinaison. La séparation en énergie entre l'état brillant et l'état noir, prédit théoriquement par A. Bagga *et al*, vaut 5 meV pour des boîtes quantiques ayant une épaisseur d'environ 2 nm [88], ce qui correspond a une énergie d'émission située vers $4,2\ eV$. Très récemment, les travaux de G. Hönig *et al.* ont permis de mesurer l'énergie séparant les états excitoniques de spin ± 1 et ± 2, à l'aide d'expériences de micro-photoluminescence en fonction de la température, qui vaut $5 \pm 0,5\ meV$ [83].

Nous allons voir dans le reste du chapitre, que la simplification des études sur objet unique passe par l'utilisation de microcavités planaires. Nous présenterons leur conception ainsi que les études optiques menées sur des boîtes quantiques uniques.

2.3 Microcavités nitrures pour l'étude de boîtes quantiques uniques

L'étude des propriétés optiques d'une nano-structure unique en physique du solide s'avère souvent compliquée, en partie à cause du faible nombre de photons récoltés lors d'expériences de photoluminescence. Par rapport aux boîtes quantiques à base d'arséniures, les boîtes quantiques nitrures ont un rendement radiatif plus faible à cause de l'importance des défauts structuraux. Ces derniers limitent l'efficacité radiative, puisque ce sont des centres de recombinaison non-radiative, mais diminuent également la probabilité de créer des excitons dans les boîtes quantiques, au profit de la photo-génération de porteurs liés à ces défauts. Parmi le peu de

photons émis, certain ne seront pas extraits de la matrice entourant les boîtes à cause du phénomène de réflexion totale interne. Sur l'ensemble de ces photons émis vers l'extérieur, seulement 30 % seront récoltés par notre microscope, en raison de son ouverture numérique permettant une collection sur seulement ±27° par rapport à la normale à la surface de l'échantillon. Un moyen de contourner ce problème d'efficacité de collection est de placer les boîtes quantiques dans des microcavités planaires en régime de couplage faible. L'accord spectral d'un mode de cavité avec une boîte quantique permet de redessiner le diagramme d'émission de cette dernière et d'améliorer ainsi la collection de photons émis.

2.3.1 Confinement de la lumière dans une microcavité planaire

Analogie microcavité planaire - cavité Fabry-Perot

Une microcavité planaire est une structure composée de deux miroirs placés de part et d'autre d'un milieu passif ou actif, ici des boîtes quantiques GaN dans une matrice en AlN. La majeure partie des propriétés optiques d'une microcavité, notamment celles d'interférences constructives et destructives qui vont nous intéresser, peuvent être comprises en étudiant celles d'une cavité Fabry-Pérot. Le panneau (a) de la figure 2.5 schématise le principe de fonctionnement de cette cavité.

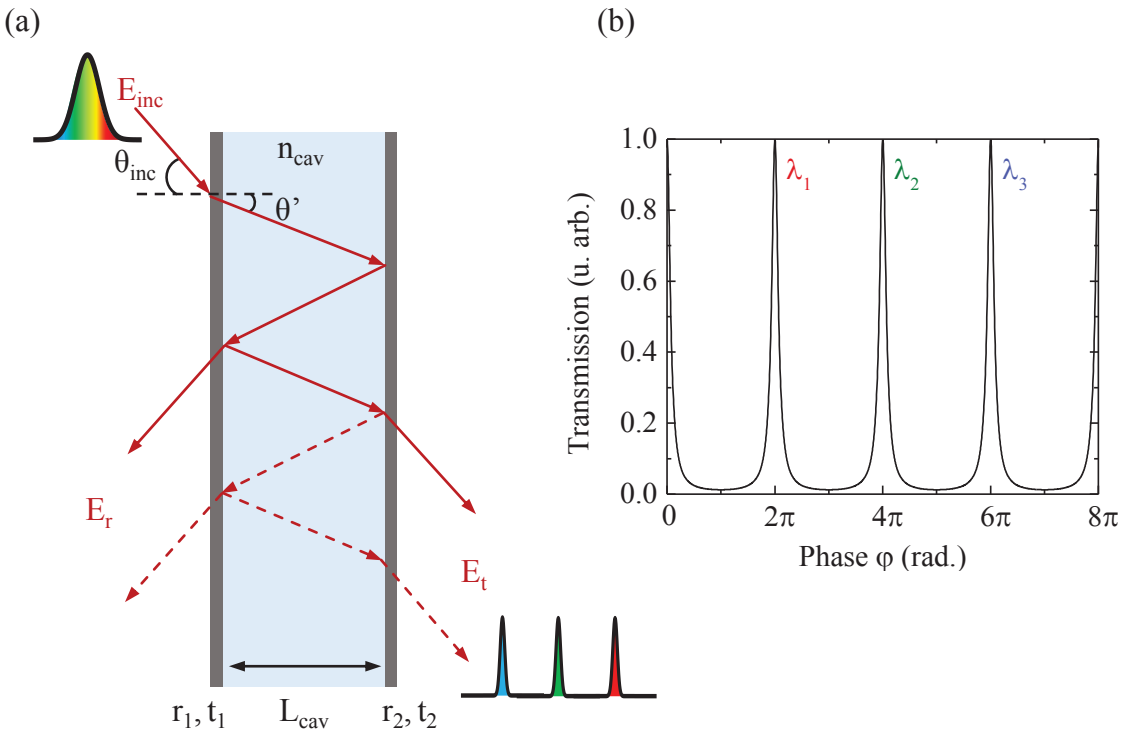


FIGURE 2.5 – *(a) Schéma du fonctionnement d'une cavité Fabry-Pérot. (b) Calcul de l'intensité transmise d'une cavité Fabry-Pérot en fonction du déphasage.*

Une onde plane envoyée depuis l'extérieur du système est réfléchie de nombreuses fois dans

la cavité, créant ainsi des ondes susceptibles d'interférer entre elles. La différence de chemin optique entre chaque onde réfléchie introduit un déphasage qui vaut :

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2n_{cav} L_{cav} cos\theta' \tag{2.2}$$

où n_{cav} est l'indice optique de la cavité, L_{cav} l'épaisseur de la cavité et θ' l'angle de réfraction de l'onde dans la cavité.

L'obtention d'interférences constructives nécessite que le déphasage entre chaque onde soit un multiple de 2π. Ceci implique que seules les longueurs d'ondes respectant la condition suivante seront transmises par la cavité :

$$\lambda = \frac{2n_{cav} L_{cav} cos\theta'}{p} \tag{2.3}$$

où p est un entier naturel.

Le panneau (b) de la figure 2.5 présente l'intensité transmise d'une cavité Fabry-Pérot en fonction du déphasage, et donc de la longueur d'onde, obtenue à partir de l'équation extraite de la référence [89] :

$$I(\phi) = \frac{1}{1 + \frac{4\sqrt{|r_1|^2|r_2|^2}}{(1-\sqrt{|r_1|^2|r_2|^2})^2} sin^2(\frac{\phi}{2})} \tag{2.4}$$

où r_1 et r_2 sont respectivement les coefficients de réflexion en amplitude des miroirs 1 et 2. Nous pouvons voir que le spectre de transmission d'une telle cavité présente plusieurs pics où elle est maximale. Ces pics correspondent aux longueurs d'ondes qui respectent la condition 2.3, définissant ainsi les *modes optiques* de la cavité.

Le nombre de modes optiques confinés à l'intérieur de la cavité est directement relié à son épaisseur et peut se calculer à partir de l'équation 2.3. Pour une onde en incidence normale, nous avons :

$$p = \frac{2n_{cav} L_{cav}}{\lambda} \tag{2.5}$$

La séparation entre deux modes consécutifs est appelée *intervalle spectral libre* et vaut, en longueur d'onde :

$$\Delta\lambda = \lambda_{p+1} - \lambda_p = \frac{2n_{cav} L_{cav} cos(\theta')}{p(p+1)} \tag{2.6}$$

La principale différence entre une microcavité planaire et une cavité Fabry-Pérot se situe dans leurs épaisseurs. Une microcavité planaire a une épaisseur L_{cav} de l'ordre de la longueur d'onde étudiée ce qui limite le nombre de modes optiques confinés à quelques unités.

Miroirs de Bragg

Les miroirs utilisés dans nos microcavités ne sont pas des miroirs métalliques mais des miroirs diélectriques, appelés miroirs de Bragg, dont le principe de réflexion repose sur le phénomène d'interférence constructive. De tels miroirs sont composés d'un empilement périodique de deux matériaux diélectriques, d'indices optiques n_1 et n_2 et d'épaisseurs $\frac{\lambda_0}{4n_i}$, où λ_0 représente la longueur d'onde centrale de la plage spectrale de réflexion souhaitée.

Au voisinage de λ_0, la réflectivité d'un miroir de Bragg est donnée par la formule extraite de [89] :

$$|r|^2 \simeq 1 - 4\frac{n_{air}}{n_{cav}}\left(\frac{n_2}{n_1}\right)^{2N} \tag{2.7}$$

où N représente le nombre de paires composant le miroir. La réflectivité d'un miroir de Bragg dépend essentiellement du nombre de paires N et du contraste d'indice $\Delta n = n_2 - n_1$ entre les deux diélectriques composant la structure. Contrairement aux miroirs métalliques habituellement utilisés dans des cavités Fabry-Pérot millimétriques, les miroirs de Bragg présentent deux différences :

— La réflectivité dépend du contraste d'indice et donc de la longueur d'onde du rayonnement. Un miroir de Bragg a une bande spectrale, centrée en λ_0 et où sa réflectivité est maximale, appelée *bande interdite photonique* ou *stop-band* en anglais. En dehors de cette plage spectrale, la réflectivité chute et oscille en passant par des valeurs nulles. Ces oscillations sont appelées *oscillations de Bragg* et sont visibles sur le panneau (a) de la figure 2.6 qui représente le calcul de la réflectivité d'un miroir de Bragg composé de 26 paires de AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ d'épaisseur 30 nm/32 nm.

— Contrairement aux miroirs métallique, le champ électromagnétique possède une certaine longueur de pénétration dans les miroirs de Bragg. Cette longueur dépend de la longueur d'onde du rayonnement et vaut [90] :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2}\frac{n_1 n_2}{n_1(n_1 - n_2)} \qquad \text{si } (n_1 > n_2) \tag{2.8}$$

Les panneaux (b) et (c) de la figure 2.6 présente l'amplitude au carré du champ électromagnétique d'une onde se propageant au sein du miroir de Bragg et ayant respectivement pour énergie $3,8$ eV (325 nm) et $4,2$ eV (295 nm). Dans la région spectrale de la stop-band le champ électromagnétique est rapidement atténué, à cause des interférences constructives en réflexion, alors qu'il se propage avec peu de perte dans la plage spectrale où les oscillations de Bragg sont présentes.

Microcavité planaire à miroirs de Bragg

En plaçant une cavité, dont l'épaisseur est un multiple de $\frac{\lambda_0}{2n_{cav}}$, entre deux miroirs de Bragg, nous formons alors une microcavité planaire. La figure 2.7 (a) présente le calcul de la réflectivité

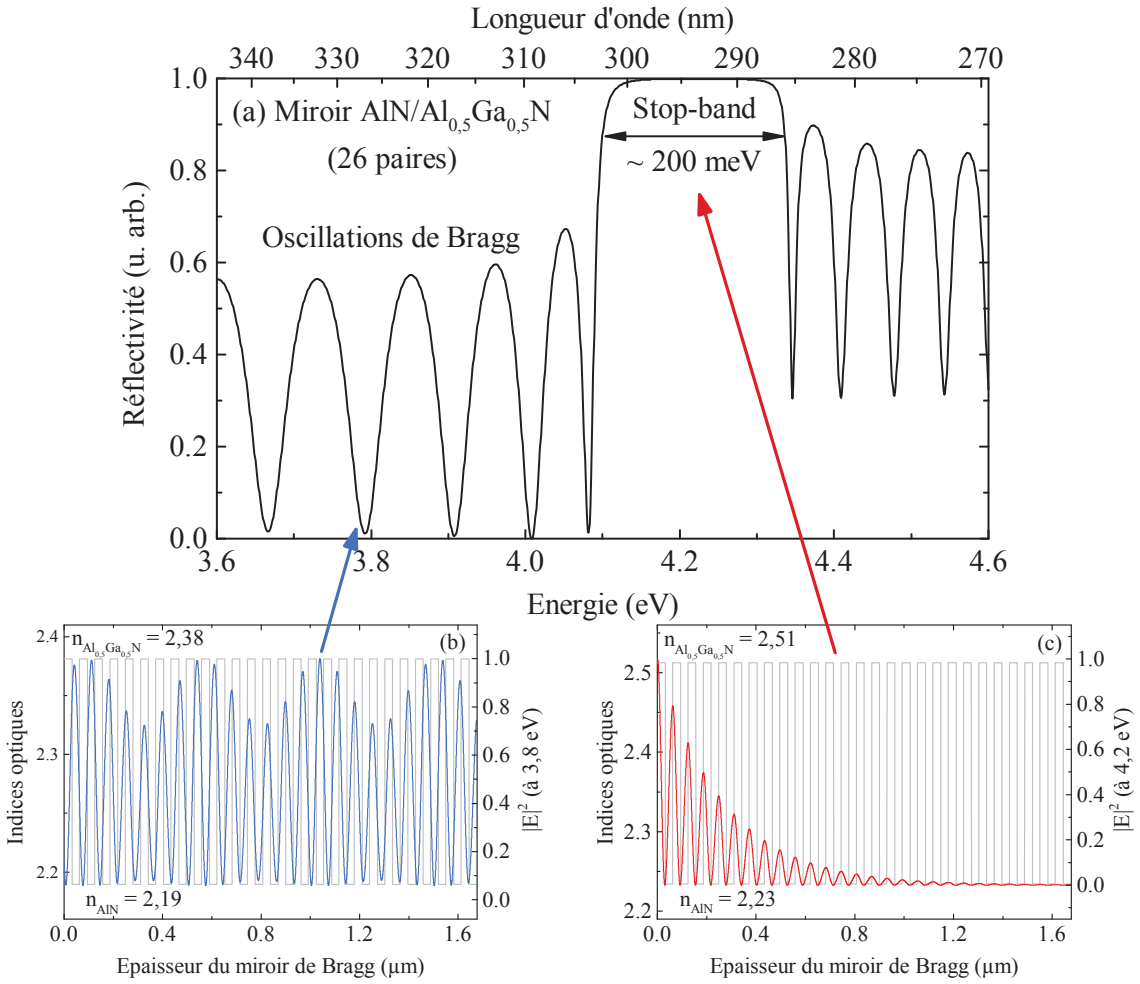


FIGURE 2.6 – *(a) Calcul de la réflectivité d'un miroir de Bragg en $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ composé de 26 paires. (b) Structure optique et amplitude au carré du champ électromagnétique à l'intérieur du miroir pour une onde d'énergie $3,8$ eV (326 nm). (c) Structure optique et champ électromagnétique à l'intérieur du miroir pour une onde d'énergie $4,2$ eV (295 nm). Les données présentées ici sont calculées à partir du modèle numérique présenté en annexe B.*

d'une cavité en AlN, d'épaisseur $\dfrac{\lambda_0}{2n_{cav}}$ où $\lambda_0 = 328$ nm, entourée de deux miroirs de Bragg en $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ composés de 26 paires.

La bande interdite photonique est toujours présente, mais un creux dans la réflectivité apparait à $3,78$ eV (328 nm), au milieu de la stop-band. Ce creux correspond au *mode de cavité* et existe grâce à la présence de la cavité qui a une épaisseur de 75 nm. La largeur à mi-hauteur du mode photonique prend une valeur finie, car les miroirs ne sont pas parfaitement réfléchissants, et cette largeur vaut [90] :

$$2\gamma_{cav} = \frac{1 - |r_1 r_2|}{\sqrt{|r_1 r_2|}} \frac{v}{L_{eff}} \tag{2.9}$$

où γ_{cav} est la largeur du mode de cavité, r_1 et r_2 sont respectivement les coefficients

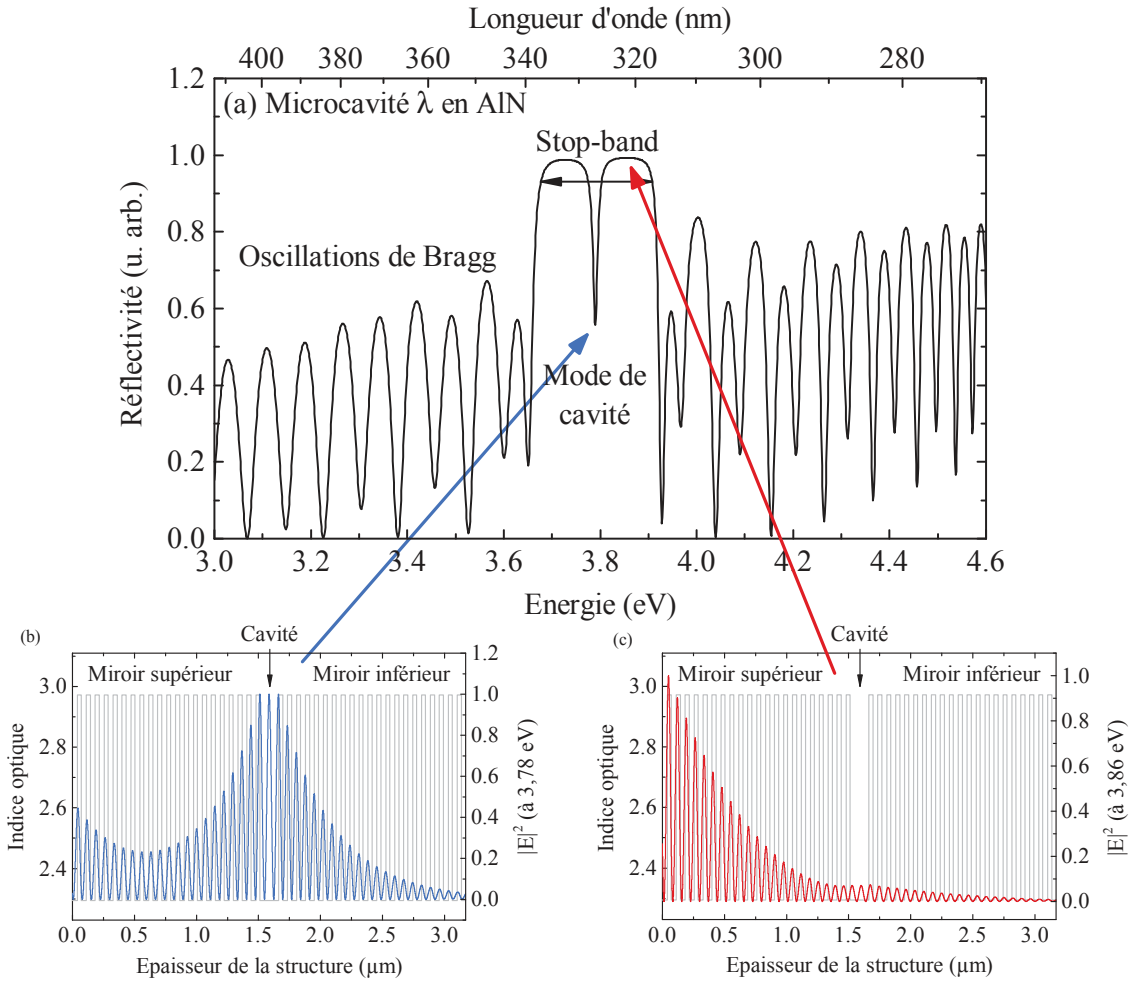


FIGURE 2.7 – *(a) Calcul de la réflectivité d'une microcavité en AlN, d'épaisseur λ, composée de deux miroirs de Bragg en $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ de 26 paires chacun. (b) Structure optique et amplitude au carré du champ électromagnétique à l'intérieur de la microcavité pour une onde d'énergie $3,78\ eV$, spectralement accordée avec le mode de cavité. (c) Structure optique et champ électromagnétique à l'intérieur de la microcavité pour une onde d'énergie $3,86\ eV$ dans la stop-band. Les données présentées ici sont calculées à partir du modèle numérique présenté en annexe B.*

de réflectivité en amplitude des miroirs supérieur et inférieur, v la vitesse de la lumière dans la cavité et L_{eff} l'épaisseur effective de la cavité. Cette dernière grandeur, qui vaut $L_{eff} = L_{cav} + L_{DBR}^{sup} + L_{DBR}^{inf}$, tient compte du fait que le champ électromagnétique pénètre dans les miroirs de Bragg sur une distance L_{DBR} définie plus haut.

Les panneaux (b) et (c) de la figure 2.7 présentent l'amplitude au carré du champ électromagnétique d'une onde lorsque son énergie est accordée avec le mode de cavité et lorsqu'elle se trouve dans la stop-band. Pour une onde en résonance avec le mode de cavité et pour des amplitudes d'incidence comparables, l'intensité du champ est ici dix fois plus importante dans la cavité que pour une onde dont l'énergie se situe dans la bande interdite photonique.

Nous pouvons également définir la *finesse* $\mathcal{F}$ d'une microcavité qui donne le nombre moyen

d'aller-retour des photons dans la cavité et qui ne dépend que de la réflectivité des miroirs :

$$\mathcal{F} = \pi \frac{\sqrt{|r_1 r_2|}}{1 - |r_1 r_2|} \tag{2.10}$$

Nous verrons par la suite que cette grandeur est reliée à la largeur à mi-hauteur de l'angle d'émission d'un émetteur en microcavité planaire.

2.3.2 Modification du diagramme de rayonnement d'une boîte quantique

Le fait de placer un milieu actif, ici des boîtes quantiques, au sein d'une microcavité planaire va nous permettre de modifier les propriétés de luminescence des boîtes. L'utilisation de cavité bi-dimensionnelle ne permet pas un confinement des photons suffisamment important pour obtenir un effet Purcell ou atteindre le régime de couplage fort, mais il permet néanmoins de redessiner le diagramme d'émission des boîtes quantiques et ainsi d'améliorer l'efficacité de collection. Nous allons présenter dans ce qui suit comment ce diagramme d'émission est modifié selon que l'énergie des boîtes quantiques soit spectralement accordée ou non avec le mode de cavité. Les résultats présentés dans cette section sont issus d'un formalisme analytique, développé pour une cavité Fabry-Pérot idéale. L'optimisation de nos microcavités, dont les aboutissants sont exposés dans la partie 2.3.3, a nécessité le développement d'un code de simulation numérique basé sur la méthode des matrices de transfert incluant un émetteur interne à la structure. Cette approche, plus complexe que celle habituellement utilisée pour étudier la réflectivité d'une microcavité semi-conductrice, est détaillée en annexe B.

Cas où la source est en résonance avec la cavité

Le traitement complet du problème d'un émetteur placé dans une microcavité en résonance est présenté dans l'excellent article de revue de Benisty *et al.* auquel le lecteur pourra se référer pour plus d'informations [91]. Considérons une cavité planaire dans laquelle est placé un émetteur, comme schématisé figure 2.8.

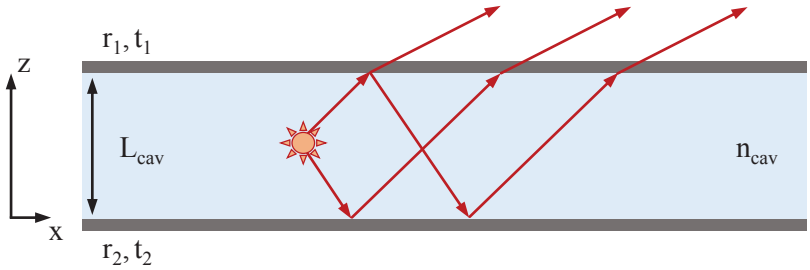


FIGURE 2.8 – *Schéma d'une source de lumière placée à l'intérieur d'une cavité Fabry-Pérot.*

En utilisant l'approche de Kastler pour l'étude d'un atome à l'intérieur d'un interféromètre de Fabry-Pérot, qui consiste à sommer l'ensemble des rayons émis par l'atome [92], l'intensité

émise par la source à l'intérieur de la cavité s'écrit :

$$I_{air}(\theta) = I_{inc} T_1 \frac{|1 + r_2 e^{2ikz\cos(\theta)}|^2}{|1 - r_1 r_2 e^{2ikL_{cav}\cos(\theta)}|^2} \tag{2.11}$$

avec I_{air} l'intensité extraite vers l'air, I_{inc} l'intensité de l'onde émise par la source, T_1 le coefficient de transmission en intensité du miroir supérieur, r_1 et r_2 les coefficients de réflexion en amplitude des miroirs supérieur et inférieur respectivement, k le vecteur d'onde de l'onde émise, z la position de la source dans la cavité, L_{cav} l'épaisseur de la cavité et θ l'angle interne d'émission au sein de la cavité diélectrique.

La figure 2.9 présente le diagramme angulaire de rayonnement, calculé à partir de l'équation 2.11, d'une source émettant une onde plane monochromatique, de longueur d'onde $\lambda_{em} = 290\ nm$, placée au milieu d'une microcavité planaire d'indice optique $n = 2,4$, d'épaisseur $L_{cav} = 342\ nm$ et entourée de deux miroirs de Bragg en AlN/AlGaN. Le cône vert, appelé *cône d'extraction*, représente la lumière qui n'est pas entièrement réfléchie à l'intérieur de la cavité au dioptre semi-conducteur/air et qui parvient à s'échapper vers l'extérieur.

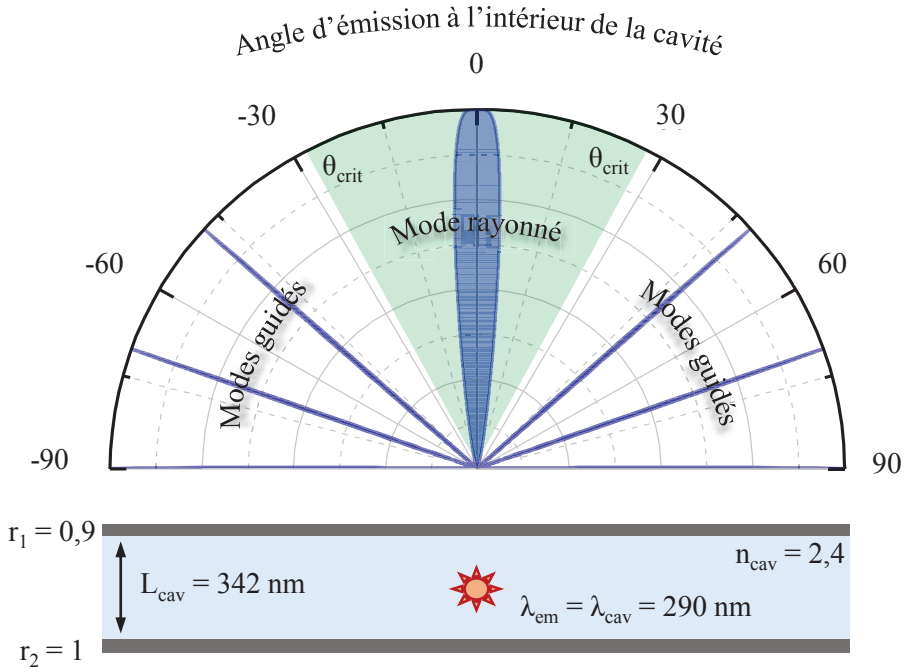


FIGURE 2.9 – *Diagramme de rayonnement angulaire d'un émetteur au sein d'une microcavité planaire d'ordre 3, dans l'approche de Kastler, en fonction de l'angle d'émission à l'intérieur de la structure. Le cône vert représente le cône de lumière extrait de la structure.*

L'émission n'est plus isotrope, comme c'est le cas pour un émetteur dans l'espace libre, mais est concentrée dans plusieurs lobes qui correspondent aux modes photoniques de la cavité. Ce nombre de lobes est proportionnel à l'épaisseur de la cavité et vaut :

$$m_c = Ent\left[\frac{2n_{cav}L_{cav}}{\lambda_{em}}\right] \tag{2.12}$$

où m_c est appelé *ordre de la cavité* et correspond au nombre de modes sur l'intervalle interne d'émission [0° ;90°] et où Ent représente la fonction partie entière et n_{cav} est l'indice optique de la cavité.

Pour une cavité sur-longueur d'onde, comme c'est le cas sur la figure 2.9, il existe un nombre de modes m_c supérieur à 1 et tous ne sont pas rayonnés vers l'extérieur. Les modes superposés au cône vert sont appelés *modes rayonnés*, et ce sont eux qui se couplent au champ électromagnétique libre extérieur, alors que les autres modes sont appelés *modes guidés* car la lumière émise est entièrement réfléchie au sein de la cavité. L'épaisseur de la cavité est donc primordiale pour optimiser l'extraction de lumière vers la surface et nous devons la choisir de façon à limiter au maximum le nombre de modes guidés. Ainsi, pour une cavité sub-longueur d'onde, l'ensemble de l'émission à une longueur d'onde donnée est concentrée dans un mode photonique, ce qui conduit à un diagramme de rayonnement angulaire avec un seul mode rayonné et aucun mode guidé comme le montre la figure 2.10.

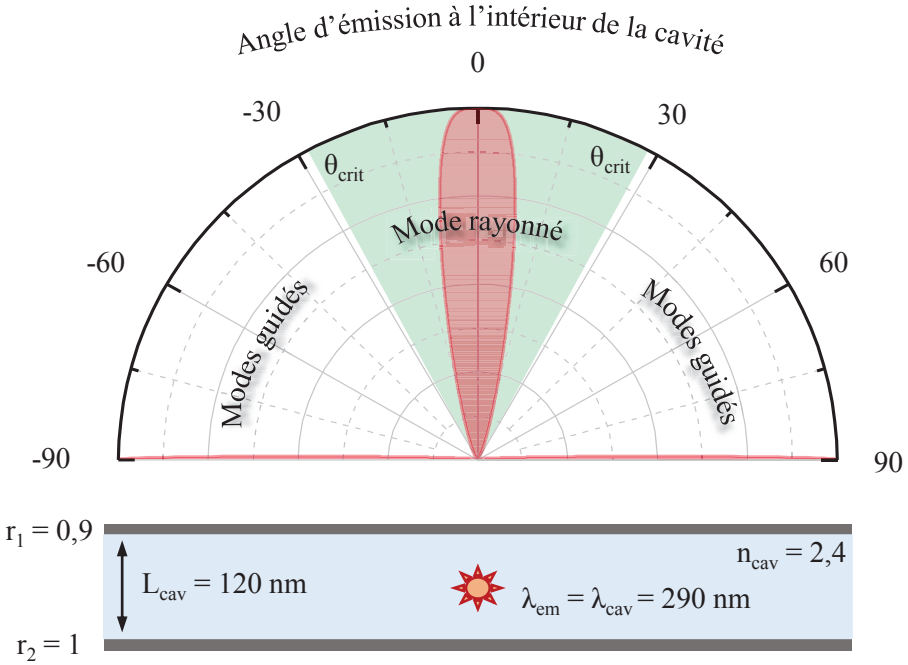


FIGURE 2.10 – *Diagramme de rayonnement angulaire d'un émetteur au sein d'une microcavité planaire d'ordre 1, dans l'approche de Kastler, en fonction de l'angle d'émission à l'intérieur de la structure. Le cône vert représente le cône de lumière extrait de la structure.*

Nous verrons par la suite, dans la partie 2.3.3, que dans notre cas, le choix de l'épaisseur de la cavité n'est pas libre et nous amènera à étudier des cavités où le nombre de modes guidés n'est pas nul.

La largeur angulaire à mi-hauteur du lobe d'émission dépend directement de la finesse $\mathcal{F}$ de la cavité et de son nombre de modes. Elle vaut [91] :

$$\Delta\Omega_{ext.} \approx \frac{\pi}{\mathcal{F} m_c} n_{cav.}^2 \tag{2.13}$$

Cas où la source est hors-résonance avec la cavité

Nous avons jusqu'à présent considéré le cas où la longueur d'onde d'émission de la source est la même que celle du mode de cavité. Or, il s'avère que l'intensité extraite est maximale, et le diagramme de rayonnement modifié, lorsque l'émetteur est légèrement hors-résonance avec la cavité pourvu que la condition de couplage faible soit respectée [93]. Le désaccord spectral optimal entre la source et la cavité s'écrit [94] :

$$\delta_{opt} = \frac{-\lambda_{em}}{4n_{cav}^2} \tag{2.14}$$

La figure 2.11 présente le diagramme d'émission d'une source émettant à 290 nm dans une cavité d'indice $n = 2,4$ dont le mode optique se situe à $+12$ nm, soit 302 nm.

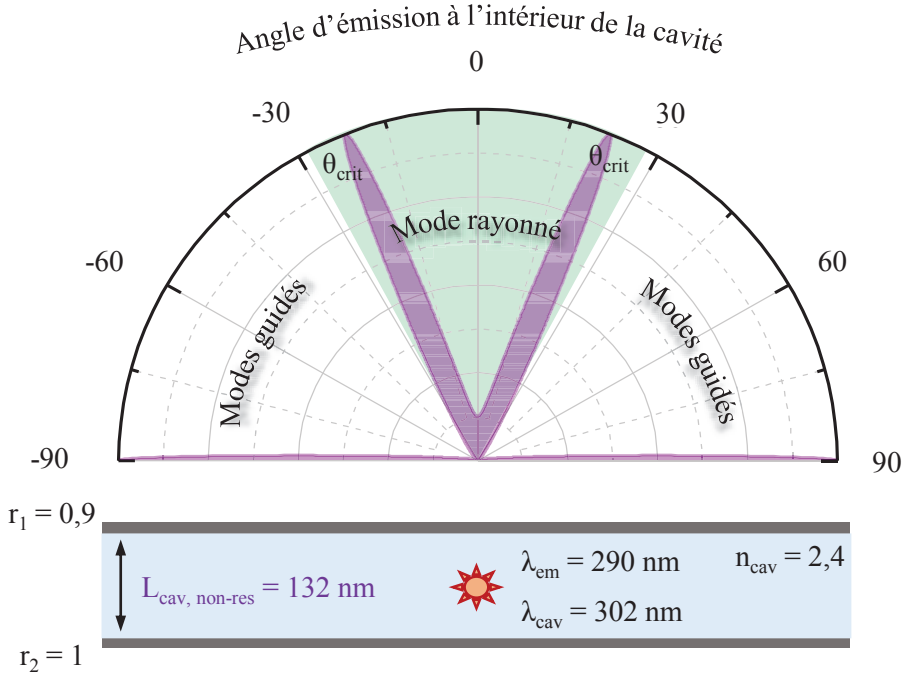


FIGURE 2.11 – *Diagramme de rayonnement angulaire d'un émetteur au sein d'une microcavité planaire d'ordre 1. L'émission de la source est légèrement hors-résonance avec le mode de cavité. Le cône vert représente le cône de lumière extrait de la structure.*

Le mode rayonné ne l'est plus à 0° mais à environ 17° par rapport à la normale à la surface de l'échantillon. Cette particularité nous permet de passer outre la limitation spectrale imposée

par la largeur à mi-hauteur du mode de cavité tant que les lobes se trouvent dans le cône d'extraction.

2.3.3 Présentation des différentes microcavités

Les microcavités utilisées dans nos travaux sont composées de cavités en AlN ou en $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$. Le choix des matériaux nitrures composants les miroirs Bragg relève d'un cahier des charges assez strict :

C1 Le contraste d'indice optique doit être suffisamment important pour avoir une bonne réflectivité, la situation optimale étant une combinaison $Al_xGa_{1-x}N/AlN$ où $x = 0$.

C2 L'absorption des matériaux choisis ne doit pas être trop importante à la longueur d'onde d'émission des boîtes quantiques, ce qui implique d'avoir suffisamment d'aluminium dans le ternaire $Al_xGa_{1-x}N$ et exclut donc $x = 0$.

C3 En plus de limiter l'absorption du ternaire $Al_xGa_{1-x}N$, il nous faut également contrôler son énergie de bord de bande afin de réduire cette luminescence parasite, ce qui nous pousse à prendre des valeurs de x élevées.

C4 La structure ne doit pas avoir de bande interdite photonique à la longueur d'onde du laser d'excitation, soit dans notre cas 266 nm ($4,6$ eV), pour que la puissance du laser d'excitation puisse être suffisamment importante au niveau des boîtes quantiques.

D'après les propriétés optiques des alliages $Al_xGa_{1-x}N$ détaillées au chapitre 1, et plus particulièrement grâce aux données présentées figures 1.11 et 1.12, il s'avère que pour un miroir de Bragg purement nitrure, le matériau respectant au mieux ces contraintes est un alliage à 50 % dans le couple $Al_xGa_{1-x}N/AlN$. En effet, la différence d'indice optique entre l'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ et l'AlN, qui vaut environ $0,3$, est suffisamment élevée pour obtenir une bonne réflectivité, et l'absorption de l'alliage $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ ne commence à être conséquente qu'aux alentours de $4,4$ eV (280 nm), sans trop atténuer le laser d'excitation à $4,66$ eV (266 nm). Nous verrons par la suite que le couple AlN/air peut également être utilisé pour obtenir des miroirs de Bragg à large bande interdite photonique, au prix d'un challenge technologique relativement important.

Nous présentons ici les propriétés optiques de trois microcavités, qui se différencient par la composition des cavités et des miroirs de Bragg, ainsi que le choix des paramètres, comme l'épaisseur de la cavité ou le nombre de paires composant les miroirs de Bragg. Concernant ce dernier point, les trois microcavités étudiées ici ont un miroir de Bragg supérieur ayant une réflectivité plus faible que le miroir inférieur. Cela nous permet de favoriser l'extraction des photons vers le haut. Ce n'est, de plus, pas critique puisque les travaux de Benisty *et al.* ont montré qu'au dessus d'une réflectivité supérieure à 80 % pour le miroir supérieur, l'extraction de lumière n'augmente plus [91].

Les calculs effectués dans cette partie ne sont plus basés sur l'approche analytique de Kastler, mais ont été réalisés avec nos simulations numériques développées au laboratoire avec l'aide de

B. Guizal (annexe B). Les trois microcavités présentées dans ce qui suit sont résumées dans l'annexe C.

La microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ à miroir de Bragg $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$

L'utilisation d'une cavité à base d'alliage $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ présente deux principaux avantages :

— La réduction du champ électrique interne auquel sont soumises les boîtes quantiques. Nous avons vu dans la partie 1.3.1 que pour des boîtes quantiques GaN dans une barrière $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ le champ électrique est de l'ordre de $3,5\ MV.cm^{-1}$ [65], soit deux fois moins que pour des boîtes quantiques GaN/AlN [11].

— La création de porteurs de charge directement dans la barrière. La bande interdite de l'alliage $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ étant d'environ $4,4\ eV$, inférieure à l'énergie du laser d'excitation à $4,66\ eV$, le nombre de porteurs dans les boîtes est plus important que pour une barrière en AlN car nous profitons de la création directe d'exictons dans la barrière qui peuvent ensuite thermaliser vers les boîtes.

En contrepartie, la luminescence des boîtes quantiques sera plus faible qu'avec une barrière en AlN car l'absorption de l'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ est plus importante aux énergies où nous travaillons (cf. **C2**).

Le point de départ du dessin d'une microcavité est le calcul de sa réflectivité pour déterminer quelle est l'épaisseur de cavité et quels sont les nombres de couches des miroirs de Bragg permettant d'avoir un mode photonique dans la plage spectrale qui nous intéresse. La figure 2.12 présente le calcul de la réflectivité, pour une onde en incidence normale, d'une hétérostructure sans miroir supérieur, composée d'une cavité en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, d'épaisseur 220 nm, et d'un miroir inférieur de 23 paires $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ dont les épaisseurs respectives sont 39 nm et 38 nm.

Nous utilisons une cavité sans miroir supérieur afin de limiter l'absorption du système, déjà importante à cause de la cavité en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Le mode de cavité, dont l'existence est dû à l'interface cavité/air qui agit comme un miroir supérieur de mauvaise qualité, est centré vers $3,6\ eV$ (345 nm), ce qui correspond à l'énergie d'émission de petites boîtes quantiques $GaN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, pour lesquelles le champ électrique est perturbatif et n'introduit pas d'augmentation du temps de vie radiatif.

Une fois les caractéristiques de la microcavité choisies, nous devons déterminer à quelle position placer les boîtes quantiques au sein de la cavité. Ce choix est conditionné par deux critères ; l'intensité extraite doit être la plus importante possible et la pénétration du laser au sein de la cavité doit également être maximale pour exciter au mieux les boîtes quantiques. Pour cela, nous définissions comme *facteur de mérite* $F_{\text{laser, BQ}}$ le produit de l'amplitude au carré du champ électromagnétique émis par un dipôle et de l'amplitude au carré du champ électromagnétique du laser d'excitation en fonction de leurs positions au sein de la cavité. Cette figure de mérite, présentée sur la figure 2.13, vaut :

$$F_{\text{laser, BQ}} = |E|^2_{\text{laser}} \times |E|^2_{\text{BQ}} \tag{2.15}$$

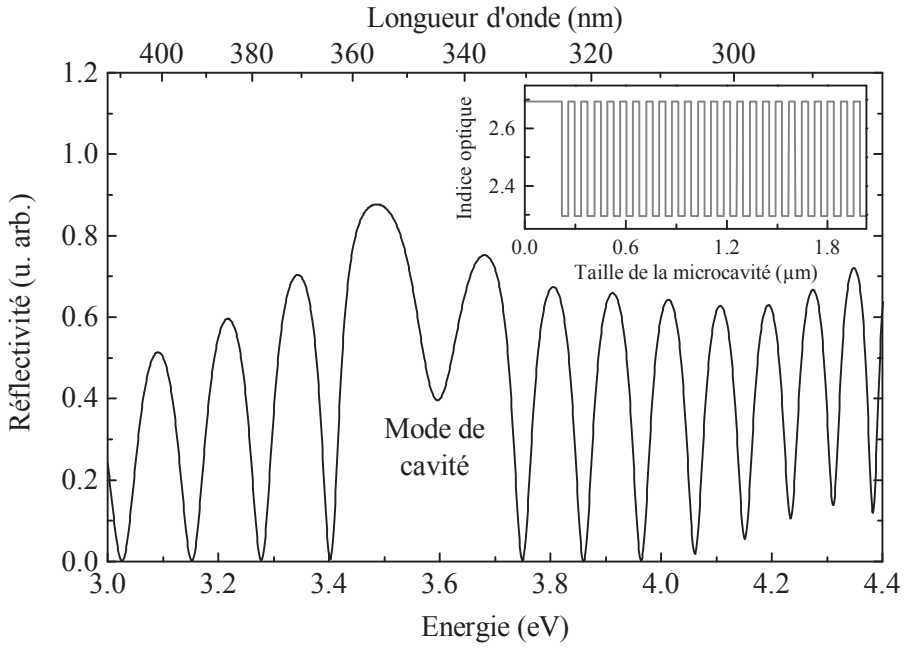


FIGURE 2.12 – *Calcul de la réflectivité d'une microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ dont le miroir de Bragg est composé d'AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, pour une onde en incidence normale. L'insert présente la structure optique de la microcavité.*

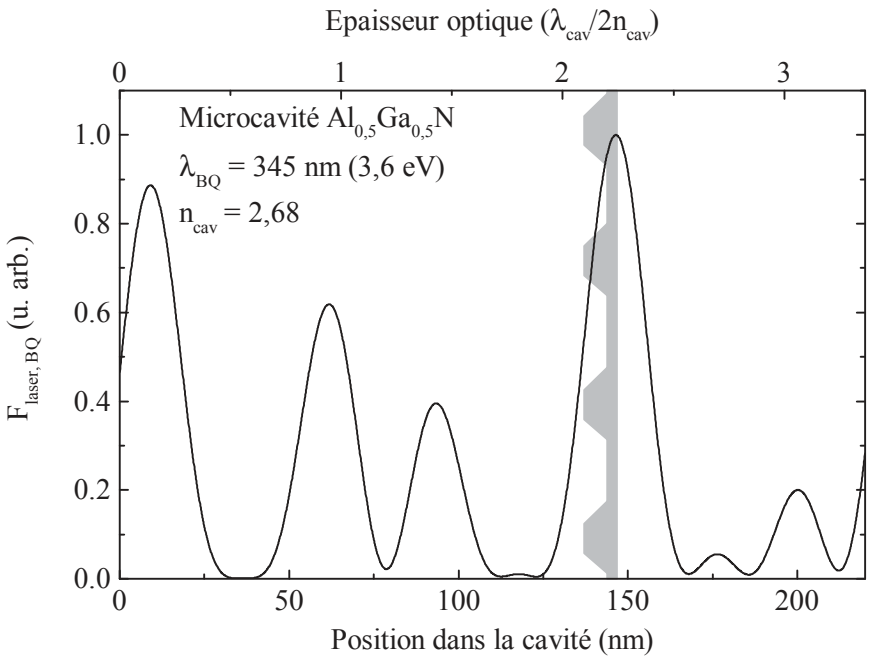


FIGURE 2.13 – *Figure de mérite $F_{laser,\ BQ}$ pour la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. La position optimale des boîtes quantiques est représentée en gris.*

Nous pouvons placer les boîtes à deux positions différentes pour avoir le meilleur compris

entre la puissance d'excitation injectée et la luminescence extraite : soit à 20 nm de la surface, soit sous 150 nm d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.

L'interface semi-conducteur/air est plus facilement sujette au piégeage de charges libres, notamment à cause des radiations UV du laser d'excitation qui accélèrent l'oxydation de la surface. La présence de ces charges piégées participe à la création d'un champ électrostatique local, dont l'intensité est temporellement aléatoire. Lorsque les charges sont situées dans l'environnement des boîtes quantiques, ces dernières vont être soumises à un effet Stark, ce qui a pour conséquence de décaler spectralement la luminescence d'une boîte quantique unique et ce, de façon totalement aléatoire au cours du temps. Ce phénomène, bien connu dans les systèmes arséniures [95] ou les nanocristaux de CdSe [96], porte le nom de *diffusion spectrale*.

En ce qui concerne les nitrures, et plus particulièrement les boîtes quantiques GaN/AlN, les travaux de Bardoux *et al.* ont montré que c'est essentiellement la qualité de la barrière au voisinage des boîtes quantiques et la proximité avec l'air ou le substrat qui jouent le rôle le plus important dans la diffusion spectrale [97]. La composition de la barrière contribue également de façon non négligeable : plus la teneur en aluminium est importante, plus l'énergie de bord de bande est grande, ce qui augmente le temps de piégeage des porteurs libres [81]. Finalement, le meilleur moyen de limiter la diffusion spectrale est d'utiliser une matrice suffisamment épaisse afin de relaxer au mieux les contraintes d'épitaxie, et ainsi limiter les dislocations traversantes où peuvent se piéger les charges libres, et d'éloigner au plus les boîtes quantiques de la surface. Dans notre échantillon, la première condition est respectée car nous utilisons un miroir de Bragg dont l'épaisseur est d'environ 2 μm, et le fait de placer les boîtes sous 150 nm d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ nous permet de satisfaire la seconde.

Une fois ces paramètres choisis nous pouvons alors calculer le diagramme d'émission angulaire et comparer le cas où les boîtes quantiques sont en microcavité avec le cas où elles sont simplement placées dans une matrice d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Ces calculs sont présentés sur la figure 2.14.

Les courbes noire et rouge représentent respectivement le calcul de l'intensité extraite de la microcavité étudiée et d'une matrice d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ sans miroir de Bragg. Afin d'avoir une comparaison pertinente entre le cas avec et sans miroir, la position des boîtes n'est pas la même dans les deux simulations. Pour le cas avec miroir nous utilisons la position déterminée figure 2.13, alors que pour le cas sans miroir la position idéale se situe à 110 nm de la surface. Cela provient de la proximité du miroir de Bragg qui modifie la distribution spatiale de la luminescence des boîtes quantiques. Paradoxalement, le cas le plus favorable pour les boîtes en matrice AlN n'est pas celui où l'émission est maximale en $\theta = 0°$, mais celui où l'intensité émise est plus importante à grand angle.

La cavité possède deux modes guidés dans lesquels une part de l'émission spontanée des boîtes quantiques sera redirigée. L'existence de ces modes provient de l'épaisseur de la cavité utilisée, qui est nécessaire pour limiter les effets de la diffusion spectrale. De plus, si nous calculons l'intensité extraite intégrée sur toute l'ouverture numérique de notre objectif de microscope, la luminescence collectée augmente d'un facteur 20 par rapport au cas où nous n'utilisons pas de

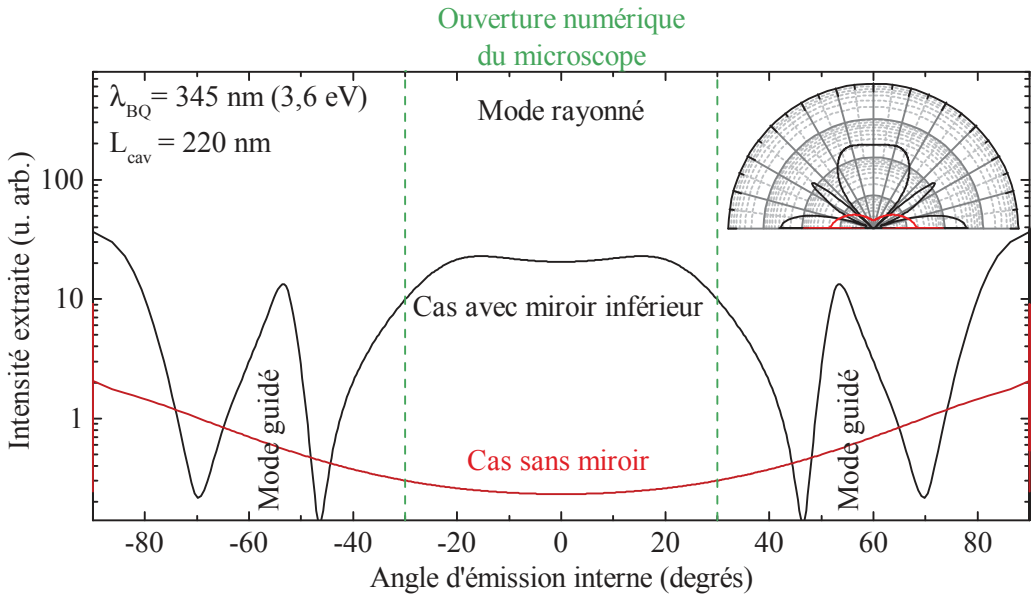


FIGURE 2.14 – *Diagramme d'émission angulaire interne d'une boîte quantique émettant à 345 $nm/3,6\ eV$. Le cas où la boîte est placée dans la microcavité est tracé en noir, celui où elle se trouve dans une matrice d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ est tracé en rouge. L'insert présente le même jeu de donnée en diagramme polaire. Les échelles d'intensité et d'angle d'émission sont les mêmes que pour la figure.*

microcavité. Comme nous l'avons vu dans la partie 2.3.2, cette augmentation n'est pas limitée au cas où la source est en résonance avec le mode de cavité et peut être étendue à des boîtes émettant aux alentours de 345 nm $(3,6\ eV)$. Afin de caractériser la plage spectrale sur laquelle l'effet de la microcavité se fait ressentir, nous avons calculé l'extraction de lumière en fonction de l'énergie d'émission et de l'angle d'émission. Ce calcul est présenté figure 2.15.

La collection de la luminescence des boîtes quantiques, sur une plage angulaire correspondant à l'ouverture numérique de notre microscope, sera augmentée d'un facteur compris entre 20 et 25 sur une plage de $\pm$ 75 meV autour de l'énergie du mode de cavité à $\theta = 0°$. Il est également intéressant de remarquer que la collection du signal des boîtes quantiques en résonance avec les oscillations de Bragg sera elle aussi augmentée, d'un facteur 5, ce qui va nous permettre d'élargir la plage spectrale d'étude.

La microcavité AlN à miroirs de Bragg $Al_{0,5}Ga_{0,5}N/AlN$

L'usage du nitrure d'aluminium comme cavité présente des avantages et des inconvénients différents de ceux rencontrés avec la cavité en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$:

— L'absence de gallium va augmenter la valeur du champ électrique interne ainsi que la bande interdite électronique de la cavité. Le confinement énergétique est également plus important, ce qui a pour conséquence d'augmenter l'énergie des boîtes quantiques que nous considérons comme "petites". Ainsi, une boîte quantique où le champ électrique

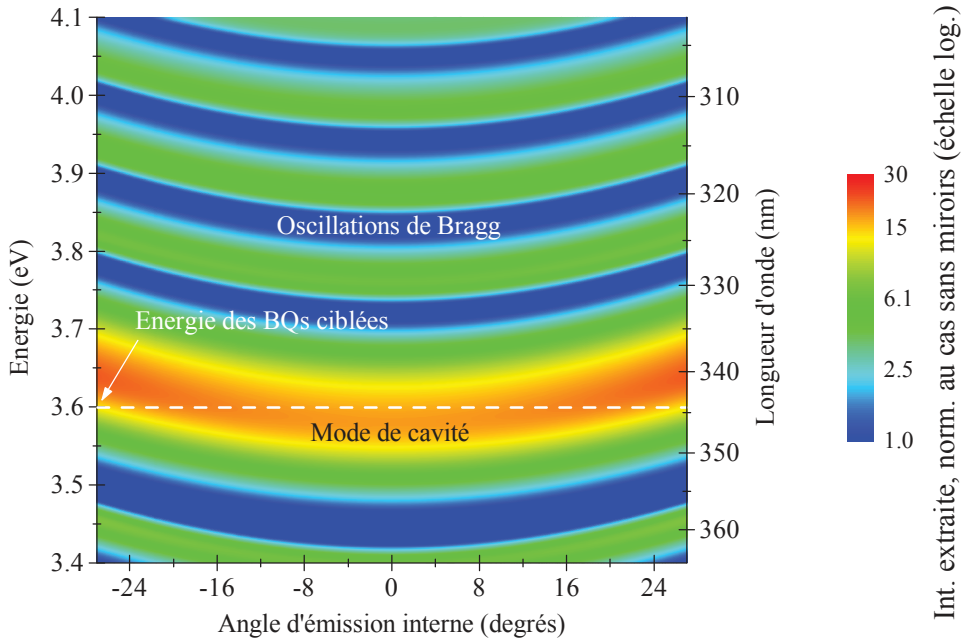


FIGURE 2.15 – *Diagramme d'émission angulaire interne d'une boîte quantique placée dans une microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ en fonction de l'énergie d'émission du dipôle et de l'angle d'émission. L'intensité est normalisée par rapport au cas où la boîte se trouve dans une matrice en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.*

n'aura qu'un effet perturbatif émettra au alentour de 290 nm $(4,3\ eV)$.

— L'énergie de bord de bande d'AlN, qui vaut 197 nm $(6,3\ eV)$, est bien au-dessus de notre laser d'excitation, qui émet à 266 $nm/4,6\ eV$. Les porteurs seront créés directement dans les boîtes et non plus dans la barrière comme c'est le cas pour une cavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, ce qui réduit le nombre de porteurs photogénérés. Le gap élevé d'AlN permet néanmoins de limiter l'atténuation de l'émission des boîtes quantiques car l'absorption démarre vers 214 nm $(5,8\ eV)$.

— L'utilisation d'un composé binaire nous permet d'obtenir un gradient d'épaisseur sur la cavité de $\pm$ 25 % de son épaisseur totale. Cette particularité, impossible à atteindre sur une cavité en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ à cause des conditions de croissance qui ne permettraient pas d'avoir une teneur en aluminium homogène, donne lieu à un mode de cavité qui se déplace spectralement lorsque nous changeons de position sur l'échantillon. La qualité cristalline de l'AlN sera également meilleure que celle de l'alliage $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ ce qui va diminuer le nombre de pièges disponibles pour les porteurs libres.

La microcavité étudiée ici est composée d'un miroir de Bragg supérieur, formé de 7 paires d'AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ dont les épaisseurs respectives sont de 32 nm et 30 nm, d'une cavité en AlN d'épaisseur 305 $\pm$ 22 nm, et d'un miroir de Bragg inférieur de 26 paires d'AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ dont les épaisseurs sont les mêmes que pour le miroir supérieur. La figure 2.16 présente le calcul de la réflectivité d'une telle structure en fonction de l'épaisseur de la cavité.

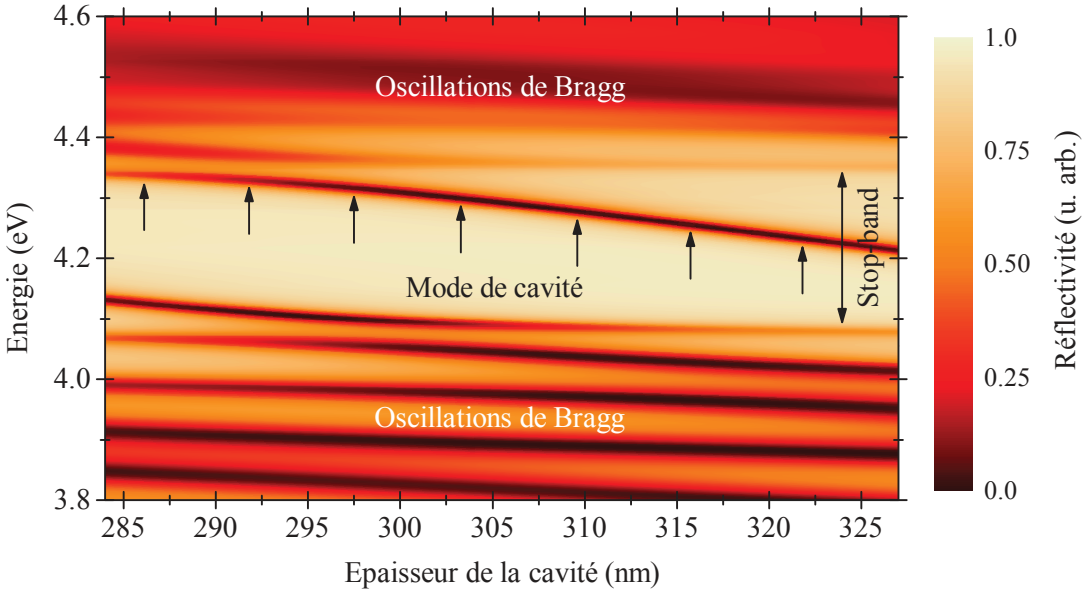


FIGURE 2.16 – *Calcul de la réflectivité en fonction de l'énergie et de l'épaisseur de la cavité d'une microcavité AlN dont les miroirs de Bragg sont composés d'AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. L'angle d'incidence de l'onde est choisi à* 0°.

Le gradient d'épaisseur de cavité nous permet d'avoir un mode photonique qui se déplace spectralement de $4,4\ eV$ vers $4,2\ eV$ lorsque l'épaisseur de la cavité augmente, élargissant ainsi la plage spectrale d'étude accessible.

La figure de mérite $F_{\text{laser, BQ}}$ est représenté sur la figure 2.17.

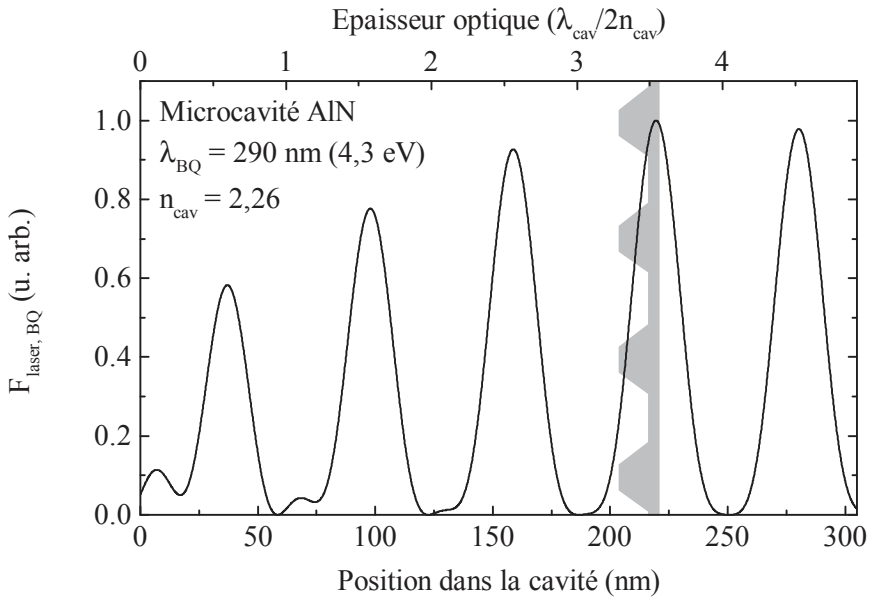


FIGURE 2.17 – *Figure de mérite $F_{laser,\ BQ}$ pour la microcavité AlN. La position optimale des boîtes quantiques est représentée en gris.*

Comme nous utilisons un miroir de Bragg supérieur, la proximité avec l'air n'est pas un critère déterminant car l'épaisseur de ce dernier est de 434 nm. Nous plaçons donc les boîtes là où le produit $F_{\text{laser, BQ}}$ est maximal, à 220 nm du sommet de la cavité.

La figure 2.18 représente le diagramme de rayonnement d'une boîte quantique en microcavité, courbe en noir, et, en rouge, dans une matrice AlN dépourvue de miroirs.

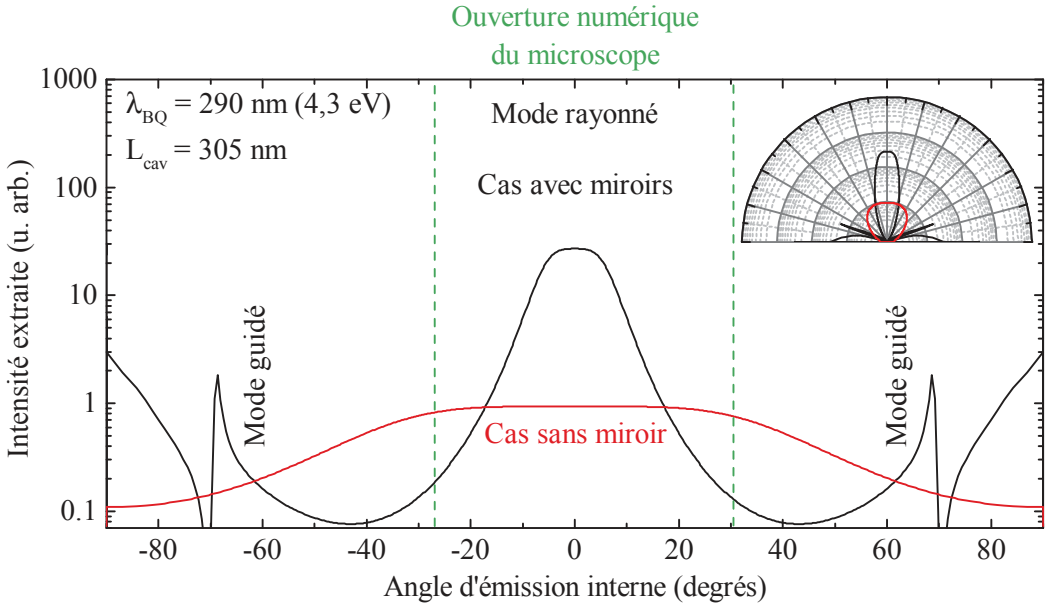


FIGURE 2.18 – *Diagramme d'émission angulaire interne d'une boîte quantique émettant à* 290 nm *(*$4,3$ eV*). Le cas où la boîte quantique est placée dans la microcavité AlN est tracé en noir, celui où elle se trouve dans une matrice d'AlN est tracé en rouge. L'insert présente le même jeu de donnée en diagramme polaire. Les échelles d'intensité et d'angle d'émission sont les mêmes que pour la figure.*

Les calculs sont effectués pour une cavité ayant une épaisseur de 305 nm, ce qui correspond à un mode optique à 290 nm. La cavité possède ici deux modes guidés, qui vont limiter l'extraction de lumière par la surface, et le calcul de l'intensité intégrée sur l'ouverture numérique de notre microscope laisse espérer une augmentation d'un facteur 10 du signal collecté. Cette valeur est deux fois plus faible que celle pour la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, probablement à cause de la présence d'un miroir supérieur dont le ternaire AlGaN absorbe une partie du rayonnement des boîtes. La figure 2.19 présente le calcul de l'extraction de la luminescence des boîtes en fonction de l'énergie et de l'angle d'émission. Indépendamment de l'effet apporté par le gradient d'épaisseur obtenu lors de la croissance, le désaccord spectral entre une boîte quantique et le mode de cavité nous permet d'augmenter la collection du signal de luminescence sur une plage de 100 meV (6 nm) autour du mode de cavité.

Contrairement à la cavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, la contribution des oscillations de Bragg est moins importante puisqu'elle modifie la collection du signal d'un facteur $0,5$ par rapport au cas où les boîtes quantiques ne seraient pas en microcavité. Cela provient du fait qu'aux longueurs d'onde

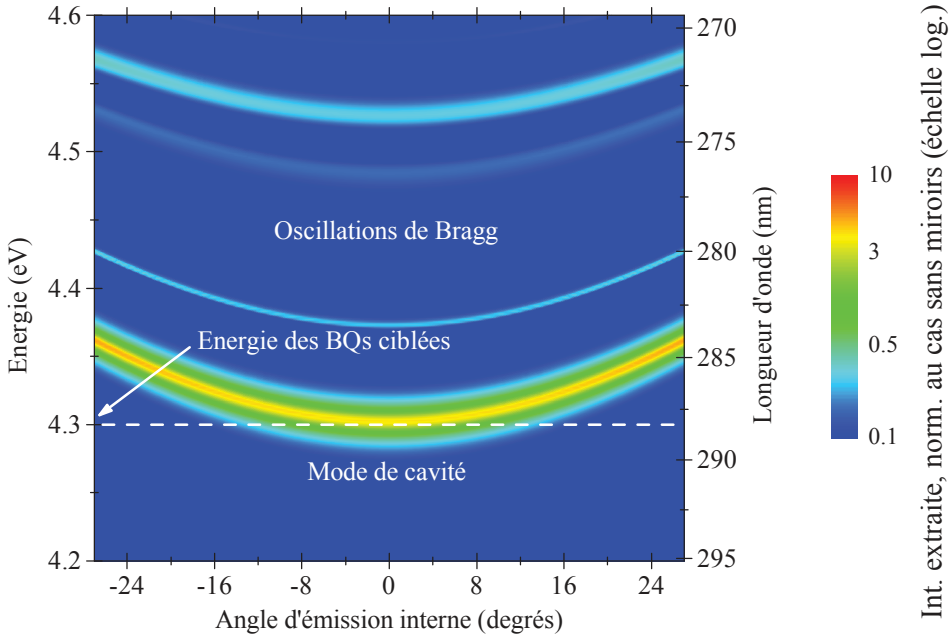


FIGURE 2.19 – *Diagramme d'émission angulaire interne d'une boîte quantique placée dans une microcavité AlN en fonction de l'énergie d'émission de la boîte et de l'angle d'émission. L'intensité est normalisée par rapport au cas où la boîte est dans une matrice en AlN.*

où nous travaillons, aux alentours de 290 *nm*, les propriétés de réflectivités des miroirs de Bragg sont altérées par l'absorption de l'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.

La microcavité AlN à miroirs de Bragg AlN/air

Le dernier type de microcavité que nous avons simulée correspond à une cavité en AlN avec des miroirs de Bragg en AlN/air. L'utilisation de ce type de miroirs présente des avantages considérables par rapport au système AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$:

— La différence d'indice optique entre l'AlN et l'air, qui est d'environ $1,3$ aux longueurs d'onde où nous travaillons, nous permet d'avoir une bande interdite photonique très large. Cet important contraste réduit également le nombre de paires nécessaires pour avoir une bonne réflectivité. Néanmoins, l'épaisseur de la cavité devra être choisie de façon à ce qu'un mode optique permette l'injection du laser d'excitation sans trop de perte puisque la stop-band sera beaucoup plus large, s'étendant au-delà de l'énergie du laser d'excitation.

— La luminescence récoltée sera plus importante, du fait de l'absence d'absorption due à la présence d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ dans les miroirs AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.

La faisabilité technologique de tels miroirs a déjà été démontrée sur des systèmes GaN/air [98] ou bien $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$/air [99]. L'ensemble de ces travaux ont en commun d'utiliser une couche nitrure sacrificielle, typiquement AlInN ou InGaN, pour ensuite la graver par voie chimique ou par gravure ionique. Ces deux approches présentent chacune leurs défauts. La gravure humide

va favoriser la torsion et l'adhérence entre deux couches non sacrificielles à cause d'effets de capillarité alors que la gravure sèche va augmenter la rugosité de surface à l'interface nitrure/air ce qui va avoir pour conséquence d'amplifier la diffusion parasite de luminescence. Les travaux de Tao *et al* sur des miroirs $Al_{0,2}Ga_{0,8}N$/air ont montré qu'une manière efficace de s'affranchir de ces problèmes est d'utiliser la dissociation thermique du GaN [100]. L'idée est de créer une structure $Al_{0,2}Ga_{0,8}N$/GaN, puis d'évaporer une partie du GaN en augmentant la température à l'intérieur du bâti du croissance. La décomposition se fait à 1070° C, au-dessus de la température de dissociation du GaN qui est comprise entre 710° C et 980° C selon les conditions de vide [101]. La figure 2.20, extraite de [100], présente une micrographie du miroir $Al_{0,2}Ga_{0,8}N$/air au microscope électronique à balayage (a) et au microscope à force atomique (b).

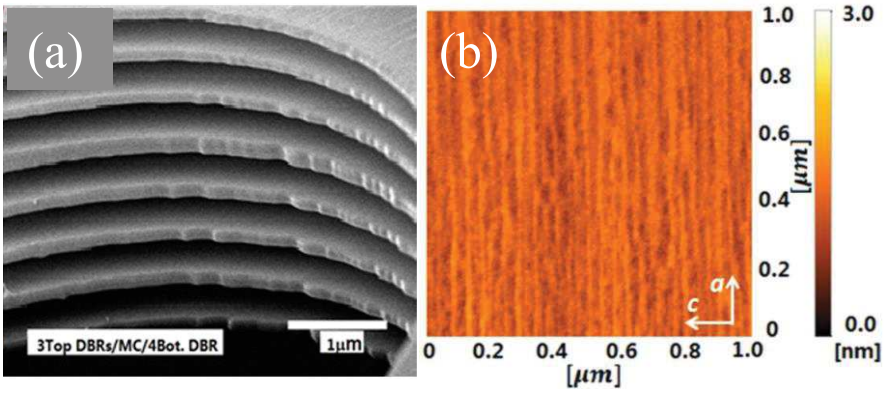


FIGURE 2.20 – *(a) Micrographie au microscope électronique à balayage d'un miroir de Bragg composé de huit paires de $Al_{0,2}Ga_{0,8}N$/air. (b) Micrographie au microscope à force atomique de la surface du miroir de Bragg. Images extraites de [100].*

Nous pouvons voir sur le panneau (a) que cette technique préserve le matériau nitrure contenant de l'aluminium tout en évaporant complètement le GaN et ce, sans altérer la structure du miroir. Le panneau (b) met en évidence une faible rugosité de surface, de l'ordre de 2 nm, même après la décomposition du GaN.

La figure 2.21 présente le calcul de la réflectivité d'une microcavité composée d'un miroir de Bragg supérieur de 3 paires AlN/air, d'épaisseur respective de 30 nm et 70 nm, d'une cavité AlN de 467 nm d'épaisseur et d'un miroir inférieur composé de 7 paires AlN/air dont les épaisseurs sont les mêmes que celles du miroir supérieur.

L'utilisation de miroirs AlN/air nous permet d'avoir une stop-band qui s'étend sur presque 2 eV et le choix de l'épaisseur de la cavité nous permet d'avoir plusieurs modes photoniques. Un mode est choisi à $4,6$ $eV/266$ nm afin d'exciter au mieux les boîtes quantiques et nous avons trois modes à $4,3$ $eV/290$ nm, $3,8$ $eV/320$ nm et $3,7$ $eV/330$ nm pour augmenter la collection de la luminescence des boîtes quantiques.

Le choix de l'emplacement des boîtes quantiques au sein de la cavité AlN/air est présenté sur la figure 2.22, et s'avère assez complexe.

Nous pouvons voir sur le panneau (a) que la position optimale pour le couplage des boîtes

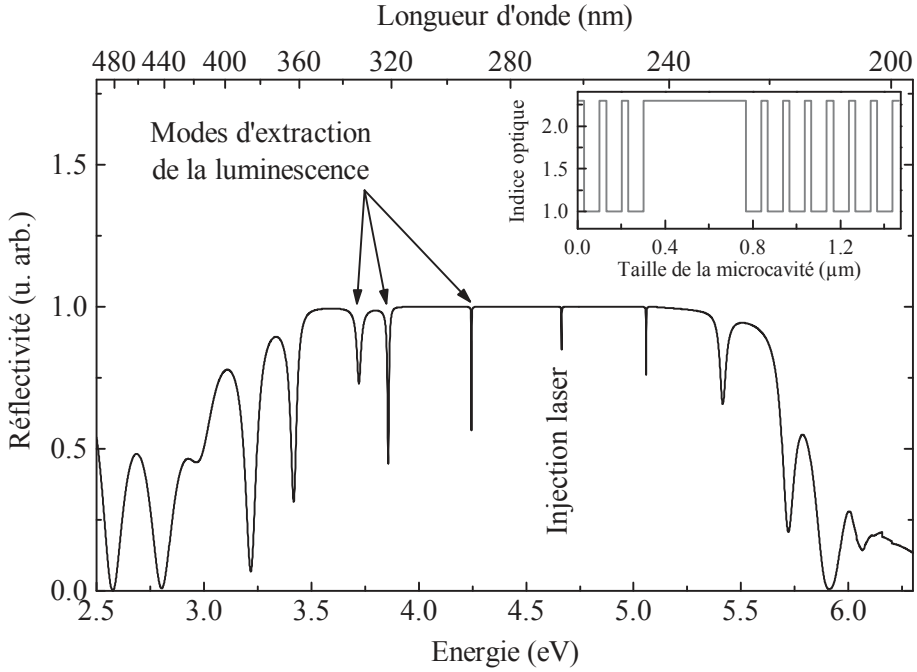


FIGURE 2.21 – *Calcul de la réflectivité d'une microcavité AlN dont les miroirs de Bragg sont composés de AlN/air. L'angle d'incidence de l'onde est de* 0° .

quantiques émettant à $4,3\ eV/290\ nm$ avec le mode optique de la cavité est à 260 nm du sommet de la cavité. Cela nous permet d'éloigner les boîtes quantiques de l'interface avec l'air de 200 nm de part et d'autre de la cavité afin de limiter les effets de diffusion spectrale, qui seront certainement plus importants que dans une cavité AlN classique, de part la nature et la fabrication de la microcavité. Les panneaux (b) et (c) présentent le facteur de mérite $F_{\text{laser, BQ}}$ pour respectivement des boîtes quantiques qui émettent à $3,8\ eV$ (320 nm) et $3,7\ eV$ (330 nm). La position optimale pour des boîtes quantiques émettant à $4,3\ eV$ (290 nm) ne l'est pas forcément pour des boîtes couplées aux deux autres modes de cavité. Nous gardons toutefois cette position car ce sont les boîtes émettant à plus haute énergie qui nous intéressent le plus. Nous verrons par la suite que même si cette configuration d'excitation/extraction de la luminescence n'est pas idéale pour les boîtes émettant au travers des modes à basse énergie, la collection du signal peut être augmentée par rapport au cas où les boites quantiques ne sont pas en microcavité.

Le calcul du diagramme d'émission d'une boîte quantique émettant à $4,3\ eV$ (290 nm) est tracé sur la figure 2.23. Si nous intégrons sur l'ouverture numérique de notre microscope, la collection du signal de luminescence des boîtes quantiques est augmentée d'un facteur 600. Ceci est essentiellement dû au fait que la majeure partie de l'émission spontanée des boîtes se couple avec le mode rayonné et à l'absence d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ qui réduit l'absorption de la luminescence des boîtes quantiques.

La figure 2.24 présente le calcul du diagramme de rayonnement pour des boîtes quantiques

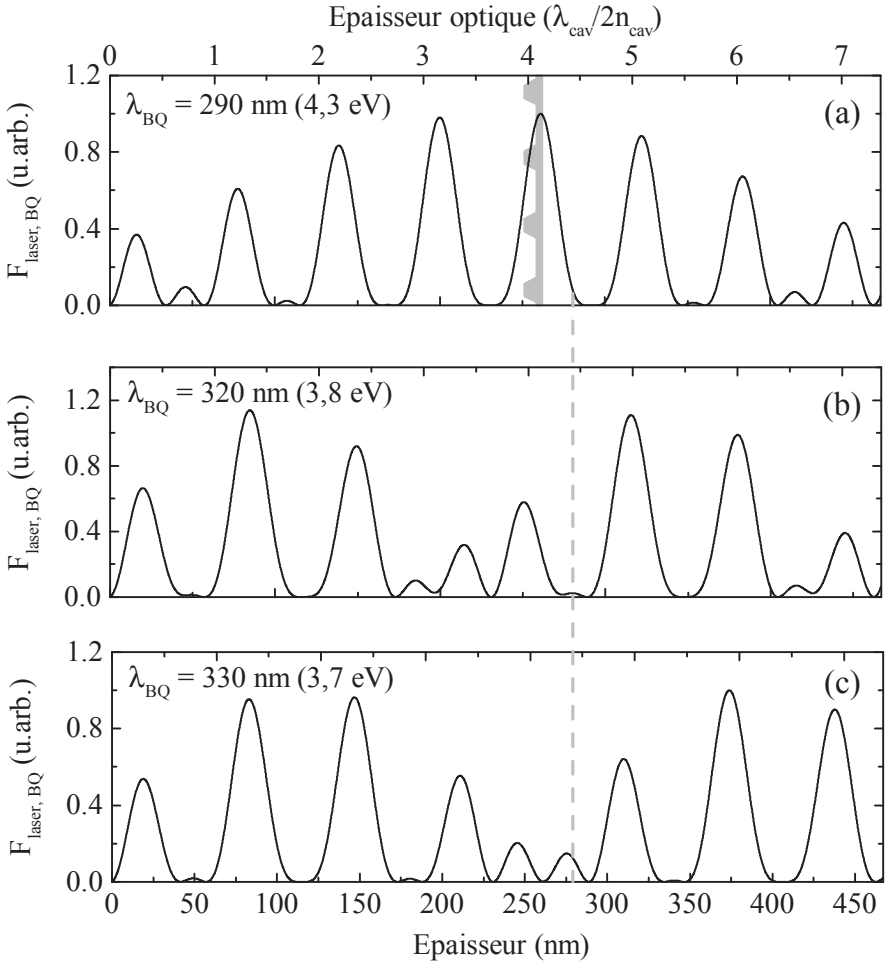


FIGURE 2.22 – *Figure de mérite $F_{laser,\ BQ}$ pour la microcavité AlN/air. Le cas (a) correspond à des boîtes quantiques émettant à $4,3$ eV (290 nm), le (b) à celui de boîtes émettant à $3,8$ eV (320 nm) et le (c) à des boîtes émettant à $3,7$ eV (330 nm). La position optimale pour des boîtes quantiques émettant à $4,3$ eV (290 nm) est représentée en gris.*

placées à 260 nm du sommet de la cavité, en fonction de l'énergie d'émission des boîtes et de l'angle d'émission de la luminescence.

La plage spectrale accessible autour de $4,3$ eV (290 nm) avec notre ouverture numérique est plus réduite que pour les deux autres microcavités, car les modes optiques sont plus fins spectralement, et vaut environ ± 40 meV (3 nm). L'extraction de luminescence des boîtes quantiques émettant au travers du mode optique situé au alentour de $3,7$ eV (330 nm) est également augmentée d'environ un facteur 6 sur une plage spectrale de $\pm$ 60 meV (4 nm).

2.3.4 Fabrication et caractérisation des échantillons

Après cette étape de conception des microcavités, les échantillons ont été fabriqués par F. Semond lors de mon séjour au CRHEA en juillet 2013. Les boîtes quantiques sont crûes

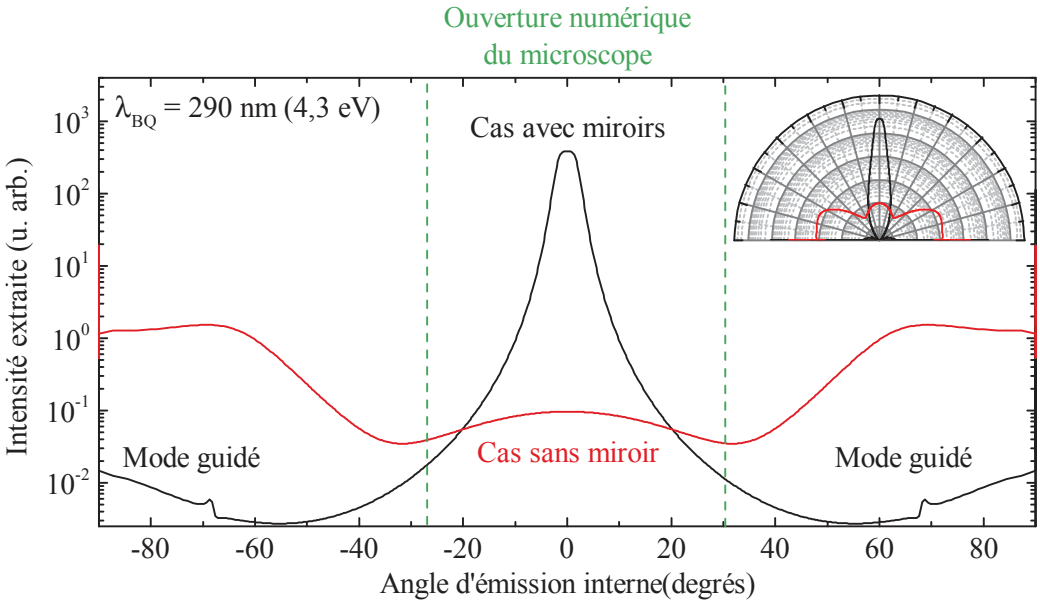


FIGURE 2.23 – *Diagramme d'émission angulaire interne d'une boîte quantique émettant à* 290 *nm* (4, 3 *eV*). *Le cas où la boîte quantique est placée dans la microcavité AlN/air est tracé en noir, celui où elle se trouve dans une matrice de AlN est tracé en rouge. L'insert présente le même jeu de donnée en diagramme polaire. Les échelles d'intensité et d'angle d'émission sont les mêmes que pour la figure.*

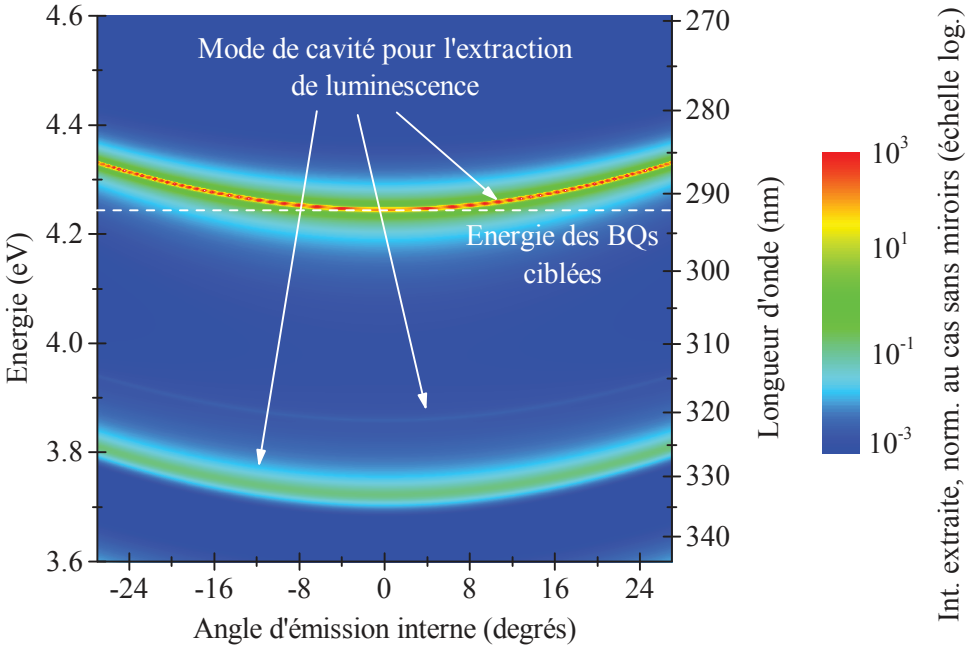


FIGURE 2.24 – *Diagramme d'émission angulaire interne d'une boîte quantique placée dans une microcavité AlN/air en fonction de l'énergie d'émission de la boîte et de l'angle d'émission. L'intensité est normalisée par rapport au cas où la boîte est dans une matrice en AlN.*

de la même façon que celle détaillée partie 2.2.1 et nous présentons ici les caractéristiques des différents échantillons.

La microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ à miroir de Bragg $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$

La figure 2.25 présente plusieurs images au microscope à force atomique d'un échantillon de boîtes quantiques $GaN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. L'image ne provient pas d'un échantillon à microcavité mais d'un échantillon où les boîtes sont crûes sur 200 *nm* d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ et ne sont pas recouvertes.

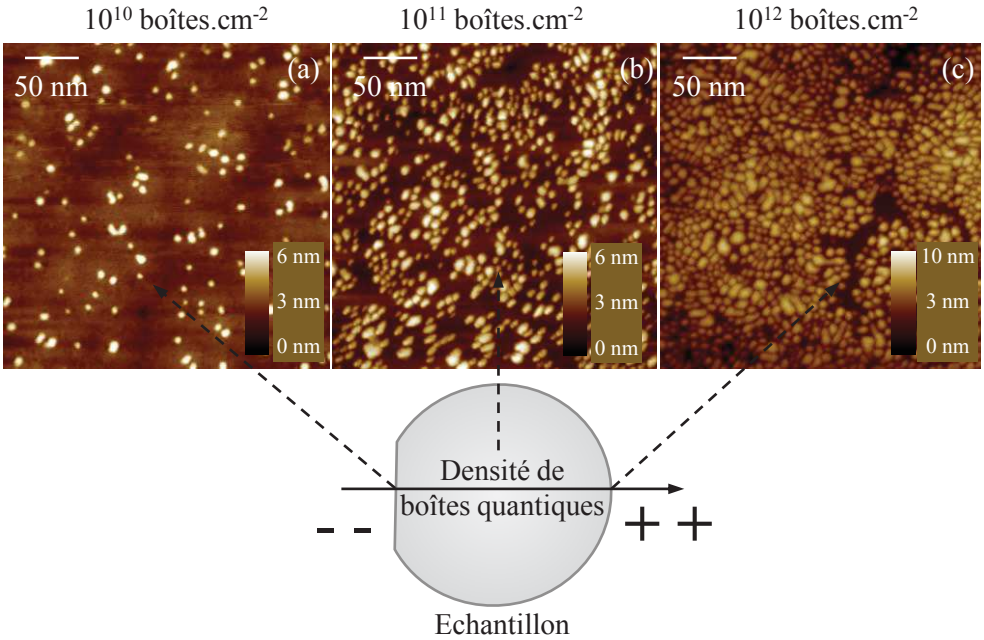


FIGURE 2.25 – *Images au microscope à force atomique d'un échantillon de boîtes quantiques $GaN/Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ (échantillon A1832). (a) Zone de faible densité de boîtes quantiques. (b) Zone de densité intermédiaire. (c) Zone de forte densité de boîtes quantiques. Images réalisées avec A. Courville au CRHEA.*

Le panneau (a) présente une région de l'échantillon où la densité de boîtes quantiques est la plus faible et vaut environ 10^{10} cm^{-2}. En zone dense, représentée sur le panneau (c), la densité de boîtes quantiques augmente de deux ordres de grandeur et vaut 10^{12} cm^{-2}. La morphologie des boîtes change également en fonction de la zone. Dans la région où la densité est faible, les boîtes ont en moyenne un diamètre de 12 *nm* et une hauteur de 6 *nm*, alors qu'en zone de forte densité le diamètre moyen est de 20 *nm* pour une hauteur moyenne de 10 *nm*. Cette différence est inhérente au mécanisme de croissance utilisé car la quantité de GaN déposée n'est pas la même en zone de faible et de forte densité de boîtes quantiques. Par ailleurs, le recouvrement des boîtes quantiques par de l'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ ou de l'AlN modifie aussi la forme de ces dernières. Les travaux de Korytov *et al.*, effectués sur des boîtes quantiques $GaN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, montrent que pour des boîtes enterrées, la forme n'est plus celle d'une pyramide mais d'une pyramide

tronquée [102].

La figure 2.26 présente une micrographie en coupe de l'échantillon à microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, effectuée au microscope électronique à balayage, où nous pouvons voir que le miroir de Bragg inférieur est partiellement imagé. L'étude des électrons rétro-diffusés nous permet d'analyser la composition chimique des différentes couches épitaxiées. Le contraste entre l'AlN et l'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ est très net, signe que le gallium n'a pas diffusé dans l'AlN. Nous pouvons également constaté que la composition et l'épaisseur de chaque couche reste relativement constante sur une échelle latérale de 1 μm.

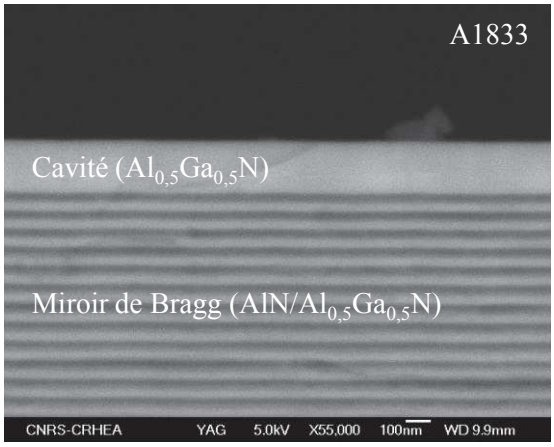


FIGURE 2.26 – *Micrographie au microscope électronique à balayage d'une microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ à miroir de Bragg $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ (échantillon A1833). Image réalisée par O. Tottereau au CRHEA.*

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, le désaccord entre les coefficients de dilatation thermique de GaN et AlN entraine la création de fissures en surface, ce qui est préjudiciable à la directivité de la luminescence introduite par la microcavité. Pour une structure comportant des miroirs de Bragg, ce phénomène est amplifié à cause du nombre important de couche déposées et de leurs épaisseurs.

La figure 2.27 (a) présente une micrographie de dessus au microscope optique de la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Comparé à l'échantillon A1831, constitué de boîtes quantiques enterrées dans une matrice d'AlN d'épaisseur 550 nm et présenté figure 1.4, la quantité de fissures en surface sur l'échantillon à microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ est beaucoup plus importante. Une façon de réduire, voir même de supprimer complètement ces fissures de surface est d'utiliser un substrat structuré. Les travaux de Dadgar *et al.* ont montré que lors de la croissance sur un substrat silicium structuré en carré de 100 μm de côté, la contrainte dans une structure multicouche composée de quinze paires d'$AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ est fortement diminuée ce qui permet de n'avoir aucune fissure en surface de l'échantillon [103].

Dans notre cas, nous utilisons un substrat silicium structuré en carré de 200 μm de côté. La structuration est faite soit par gravure humide à l'hydroxyde de potassium KOH soit par

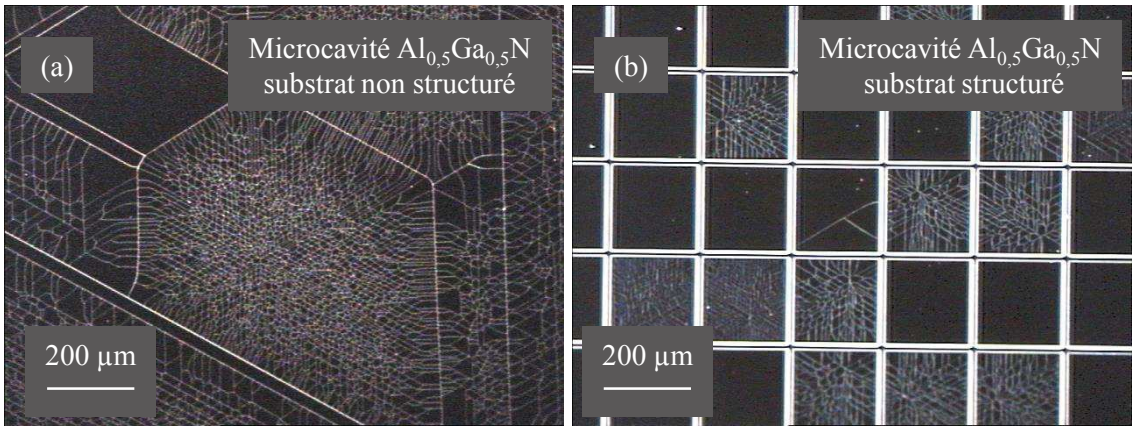


FIGURE 2.27 – *Micrographie au microscope optique d'une microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ composée de miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Le panneau (a) présente une zone non structurée du substrat, le panneau (b) une zone structurée en carré de* 200 *µm de côté. Les deux images proviennent du même échantillon (A1833).*

gravure sèche à l'hexafluorure de souffre SF_6 et est présente seulement sur la moitié du substrat. Nous pouvons voir sur le panneau (b) de la figure 2.27 qu'environ 50 % de la surface structurée est exempte de fissures.

La microcavité AlN à miroirs de Bragg $Al_{0,5}Ga_{0,5}N/AlN$

La quantité de matière nécessaire pour la formation des boîtes quantiques dans des systèmes GaN/AlN étant moins importante que dans les systèmes $GaN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, les boîtes seront plus petites. La figure 2.28 présente trois micrographies au microscope à force atomique d'un échantillon de boîtes quantiques GaN/AlN non recouvertes et crûes sur 150 *nm* d'AlN.

Par faute de temps, nous n'avons pas pu évaluer précisément la densité de boîtes quantiques dans la région où la densité de boîtes quantiques est la plus faible. Cependant, les travaux plus poussés de Sergent *et al.* ont permis de mettre en évidence que la densité de boîtes est de l'ordre de 10^7 cm^{-2} dans cette zone [20]. Les dimensions moyennes sont de l'ordre de 5 *nm* pour le diamètre et de 2 *nm* pour la hauteur. En zone de forte densité, représentée sur le panneau (c), la densité de boîtes quantiques est d'environ 10^{11} cm^{-2} pour un diamètre moyen de 7 *nm* et une hauteur moyenne de 3 *nm*. La dispersion en taille en fonction de la zone étudiée est moins importante dans les systèmes GaN/AlN que dans les systèmes $GaN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ car la quantité de matière déposée dans le premier cas est moins importante que dans le second.

Le panneau (a) de la figure 2.29 présente une micrographie en coupe au microscope électronique à balayage de la microcavité AlN.

Le zoom présenté sur le panneau (b) met en évidence la couche de mouillage des boîtes quantiques, indiquée par une flèche blanche.

La croissance de la microcavité AlN s'est également faite sur un subtrat semi-structuré en carré de 200 *µm* de côté. Nous pouvons voir sur la figure 2.30 (a) que l'échantillon présente un

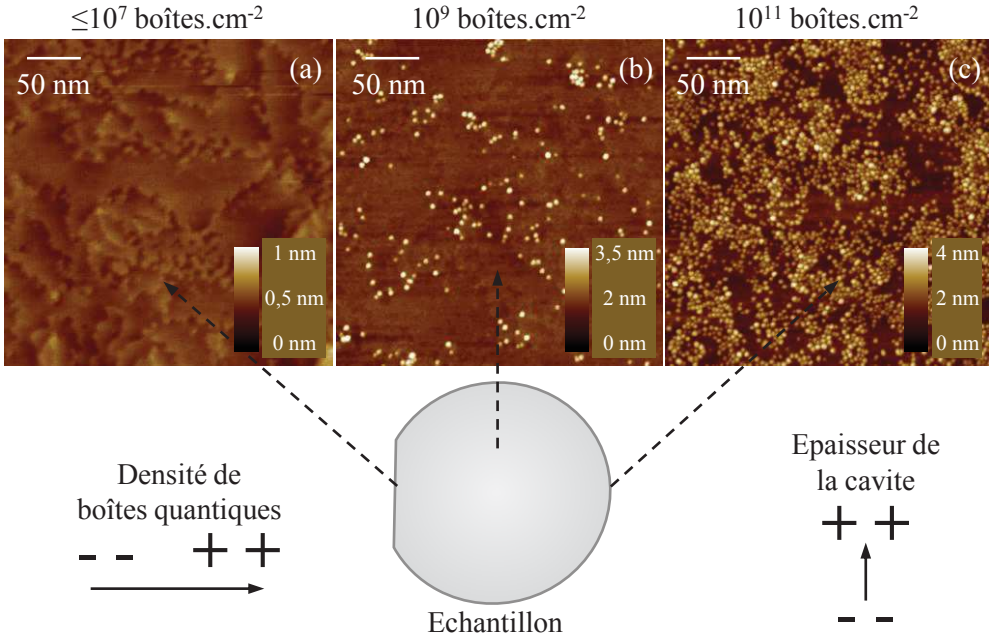


FIGURE 2.28 – *Images au microscope à force atomique d'un échantillon de boîtes quantiques GaN/AlN (échantillon A1831). (a) Zone de faible densité de boîtes quantiques. (b) Zone de densité intermédiaire. (c) Zone de forte densité de boîtes quantiques. Images réalisées par A. Courville au CRHEA.*

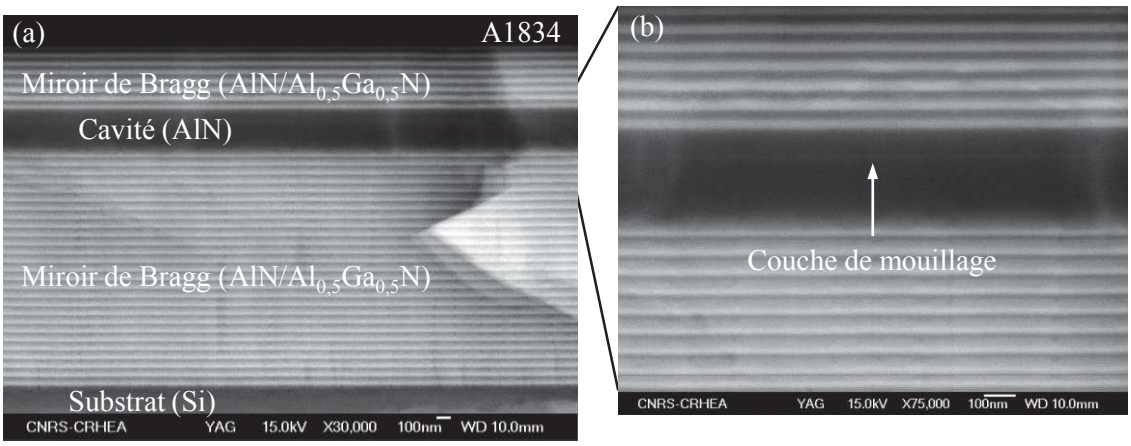


FIGURE 2.29 – *Micrographie au microscope électronique à balayage d'une microcavité AlN à miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ (échantillon A1834). Images réalisées par O. Tottereau au CRHEA.*

nombre important de fissures en surface sur la partie non structurée du substrat.

Pour la partie structurée, le pourcentage de carrés complètement dépourvus de fissures est de l'ordre de 15 %, valeur plus faible que pour la cavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Cela est principalement dû à la présence du miroir supérieur sur la cavité AlN qui rajoute des contraintes mécaniques

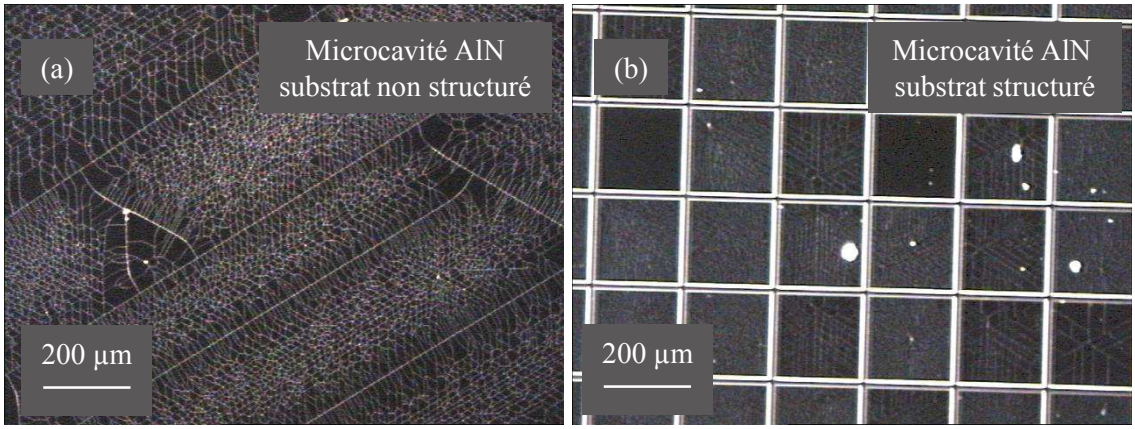


FIGURE 2.30 – *Micrographies au microscope optique d'une microcavité AlN composée de miroirs de Bragg AlN/$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Le panneau (a) présente une zone non structurée du substrat, le panneau (b) une zone structurée en carrés de* 200 *µm de côté. Les deux images proviennent du même échantillon (A1834).*

et thermiques.

La microcavité AlN/air

Nous présentons dans cette sous-section seulement les essais préliminaires d'évaporation du GaN. Pour des raisons de temps, la cavité complète à base de miroirs de Bragg en AlN/air n'a pas pu être réalisée et seulement quelques tentatives de créer une structure AlN/air ont été effectuées. La figure 2.31 présente une micrographie en coupe au microscope électronique à balayage d'un échantillon où une couche de GaN a partiellement été dissociée thermiquement.

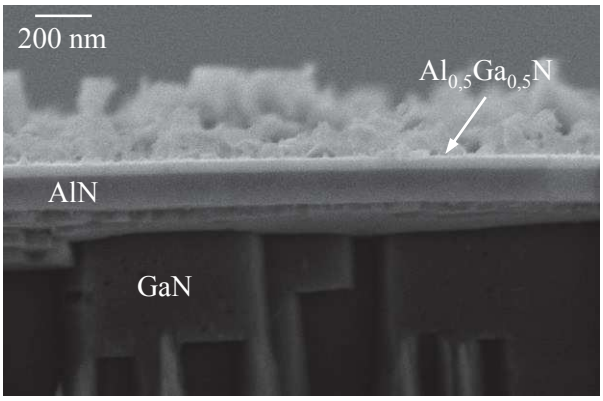


FIGURE 2.31 – *Micrographie au microscope électronique à balayage d'un échantillon composé d'une couche de GaN d'épaisseur* 950 *nm, d'une couche d'AlN d'épaisseur* 120 *nm et d'une couche d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ d'épaisseur* 50 *nm après dissociation thermique du GaN. Image réalisée au CRHEA par M. Mexis.*

L'évaporation se fait dans un réacteur EPVOM (pour Epitaxie en Phase Vapeur aux Orga-

noMétalliques) à une température de 1100° C sous flux d'azote et d'ammoniac pendant 70 min. Nous pouvons voir qu'une bonne partie du GaN a disparu tout en laissant les couches d'AlN et d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ totalement intactes.

Ces résultats, obtenus par M. Mexis au CRHEA, sont prometteurs en vue de réaliser un miroir de Bragg complet AlN/air pour ensuite l'intégrer à une microcavité, mais nécessitent encore un intense travail d'optimisation des étapes technologiques.

2.4 Spectroscopie de boîtes quantiques uniques en microcavité planaire

Nous présentons ici nos résultats obtenus lors de l'étude des propriétés optiques de boîtes quantiques en microcavité planaire à base d'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ ou d'AlN. L'ensemble des mesures de micro-photoluminescence et de réflectivité, ont été réalisées au laboratoire Charles Coulomb. Les conditions d'excitation sont les mêmes pour toutes les expériences de micro-photoluminescence présentées ici. Le laser utilisé est un laser continu, émettant à 266 nm avec une puissance de 20 mW, dont le diamètre sur l'échantillon est d'environ 1 μm, soit une puissance sur l'échantillon d'environ 600 $kW.cm^{-2}$.

2.4.1 Boîtes quantiques GaN en microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$

Expériences de réflectivité

Afin d'étudier les propriétés optiques de la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, nous avons effectué des mesures de réflectivité à l'aide de la lumière blanche servant à la visualisation des échantillons sur notre montage de microphotoluminescence. La figure 2.32 présente le spectre de réflectivité de la microcavité, en points bleus, ainsi que deux ajustements, en rouge (a) et en noir (b), obtenus à l'aide de nos calculs développés en annexe B. La réflectivité expérimentale est normalisée à l'aide du spectre de notre lampe blanche, obtenu à l'aide d'un miroir en aluminium, traité pour limiter les pertes dans l'UV. La perte d'intensité à haute énergie est due à l'absorption de l'$Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.

Le panneau (b) reprend le spectre de réflectivité calculé initialement. En le comparant avec le spectre expérimental tracé sur la panneau (a), nous pouvons voir sur la microcavité réalisée que la bande interdite photonique est moins large que prévue et que la réflectivité de la structure à l'énergie du mode de cavité est plus importante. Pour ajuster au mieux le spectre expérimental nous avons utilisé un alliage où la concentration en aluminium est plus importante sans modifier les épaisseurs de la cavité et des couches composant le miroir. La micrographie réalisée au microscope électronique à balayage présentée figure 2.26 nous permet en effet de voir que les épaisseurs de la microcavité correspondent bien aux épaisseurs nominales, utilisées lors de nos calculs. L'utilisation d'un alliage $Al_{0,68}Ga_{0,32}N$ permet de réduire la stop-band, car plus la quantité d'aluminium augmente et plus la valeur de l'indice optique de l'alliage baisse.

La courbe rouge du panneau (a) présente le meilleur ajustement que nous ayons pu avoir. A

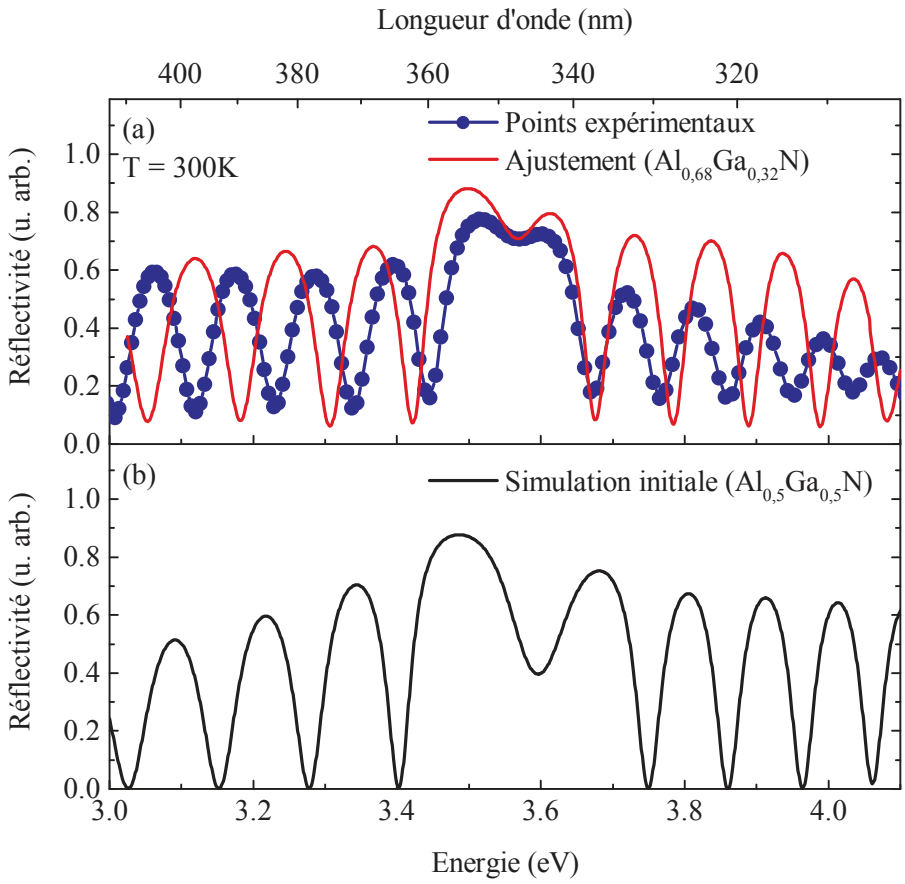


FIGURE 2.32 – *(a) Réflectivité de la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ (A1833) et son ajustement représenté respectivement par des points bleus et un trait continu rouge. (b) Calcul initial de la réflectivité.*

haute énergie, les oscillations de Bragg ne sont pas atténuées dans notre simulation car l'évaluation de la partie imaginaire de la constante diélectrique d'$Al_{0,68}Ga_{0,32}N$, qui permet de calculer l'absorption d'un matériau, est difficile : il n'existe aucune mesure expérimentale de l'absorption d'un alliage $Al_{0,68}Ga_{0,32}N$ crû sur silicium. Ces mesures mettent en évidence la sensibilité des propriétés optiques des nitrures aux conditions de croissance. La courbe expérimentale n'est pas parfaitement ajustée et nous pouvons voir que les oscillations de Bragg ne sont pas parfaitement superposées ou que la stop-band est légèrement plus étroite. Il est tout à fait probable qu'à cause de contraintes mécaniques différentes, l'alliage d'AlGaN que nous utilisons soit composé à 50 % d'aluminium mais que son indice de réfraction soit différent de celui déterminé dans les travaux de Antoine-Vincent *et al.* et utilisé dans nos simulations [53].

Expériences de micro-photoluminescence

Les expériences de micro-photoluminescence présentées ici ont été effectuées sur une région de l'échantillon où la densité en boîtes quantiques est la plus faible et vaut environ 10^{10} cm^{-2}.

La figure 2.33 présente la réflectivité de notre microcavité, sur le panneau (a), et un spectre de micro-photoluminescence réalisé sous excitation continue à 266 nm et dont le signal est analysé par un réseau à 1200 traits/mm sur le panneau (b). Ce réseau nous permet, *a priori*, de résoudre la luminescence d'une boîte unique puisque sa résolution est de 300 μeV, valeur inférieure aux plus faibles largeurs de raie rapportées, qui sont de l'ordre de 500 μeV [82, 104].

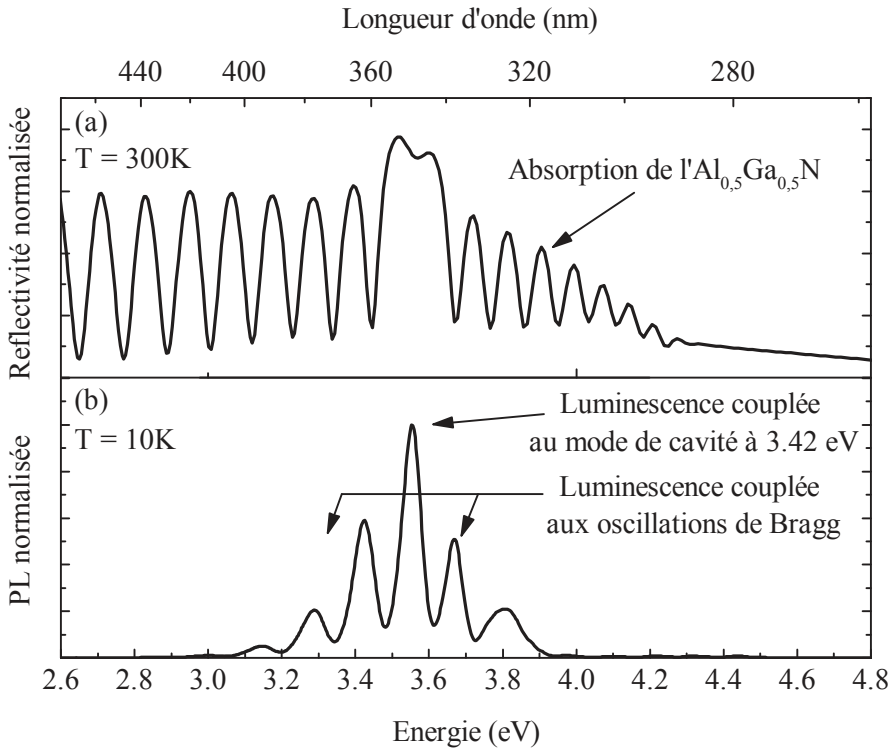


FIGURE 2.33 – *(a) Spectre de réflectivité de la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. (b) Spectre de micro-photoluminescence de boîtes quantiques en microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.*

Le signal de photoluminescence observé sur le panneau (b) a une énergie d'émission centrée vers $3,55$ eV et une largeur à mi-hauteur d'environ 800 meV, compatible avec l'émission de boîtes quantiques ayant une épaisseur comprise entre 6 et 8 mono-couches de GaN [20]. Les oscillations visibles dans le spectre, entre 3 eV et 4 eV dans la période des oscillations, reflètent la modulation de la transmission d'une microcavité planaire et nous pouvons voir que l'émission de lumière est la plus importante à l'énergie du mode de cavité. Malheureusement, le nombre de boîtes quantiques est encore trop important, même dans la région où la densité de boîtes est la plus faible, pour espérer observer le signal d'une boîte quantique unique. Sur le spectre de la figure 2.33 (b), le nombre de boîtes quantiques sous le faisceau laser est de l'ordre de 150, d'après nos estimations.

Nous pouvons toutefois comparer la luminescence des boîtes en cavité avec celle de boîtes en matrice $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ afin de quantifier l'amélioration de la collection de luminescence introduite par la microcavité. La comparaison entre un spectre de photoluminescence de boîtes quantiques

GaN en matrice $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ et en microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ est présentée sur la figure 2.34.

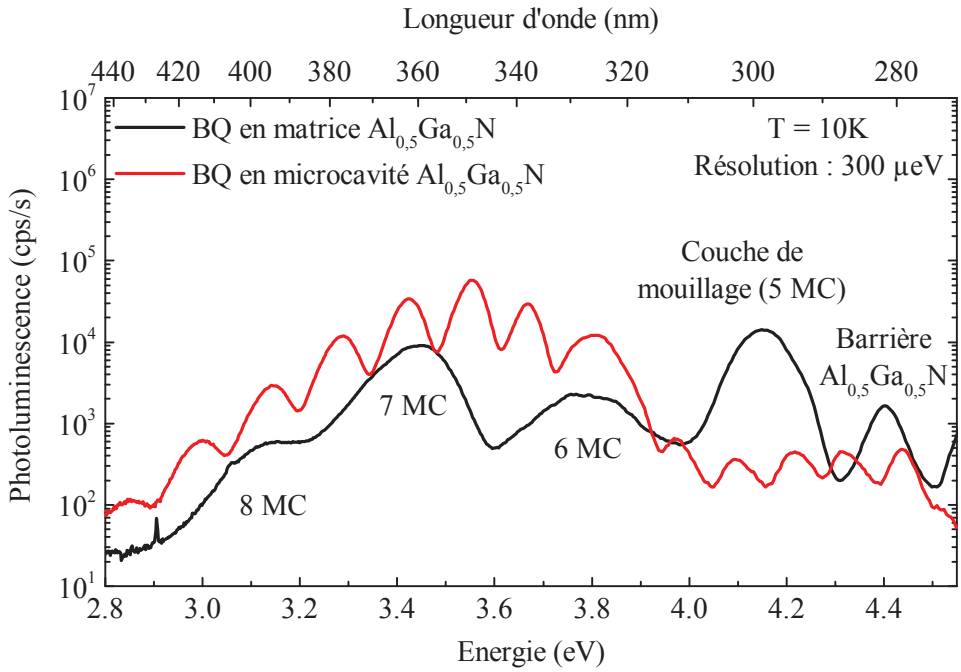


FIGURE 2.34 – *Comparaison de la photoluminescence de boîtes quantiques GaN en microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ (A1833), en rouge, et dans une matrice en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ (A1832), en noir. La correspondance entre épaisseurs de boîtes et énergie d'émission est effectuée à l'aide de [20].*

Les résultats sont obtenus dans les mêmes conditions expérimentales, de façon à pouvoir comparer le nombre de coups par seconde enregistrés par notre détecteur CCD. Afin de calculer le coefficient d'augmentation de collection de la lumière, nous avons fait le rapport entre l'intensité intégrée, autour du mode photonique, du signal des boîtes en microcavité et celle du signal des boîtes en matrice $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Ainsi, pour des conditions d'excitations comparables dans une zone de densité intermédiaire, soit environ 5 ± 310^{11} boîtes par cm^{-2}, le facteur déterminé est de l'ordre de 5. L'incertitude sur la densité de boîtes quantiques est obtenu à partir des travaux de S. Sergent, qui a réalisé une étude statistique de la densité de boîtes sur une surface d'environ $2,5\ cm^2$ [20]. La valeur du facteur d'extraction est plus faible que celle déterminée dans la partie 2.3.3 (environ 20). Ceci peut s'expliquer par le fait que la transmission du mode optique de notre cavité est moins importante que celle calculée, conséquence directe du fait que les indices optiques de nos matériaux nitrures doivent différer de ceux utilisés lors de nos simulations, comme nous l'avons vu plus haut.

2.4.2 Boîtes quantiques GaN en microcavité AlN

Du fait de l'importante perte d'intensité de notre lampe blanche à partir de 4 eV (310 nm) nous n'avons pas pu étudier la réflectivité et la position spectrale du mode optique de la microcavité AlN (A1834). Nous présentons donc ici seulement les spectres de photoluminescence

d'ensemble de boîtes et de boîtes quantiques uniques.

Micro-photoluminescence d'ensemble de boîtes quantiques

La figure 2.35 présente un spectre de micro-photoluminescence de boîtes quantiques GaN en microcavité AlN, en rouge, et un spectre de boîtes quantiques GaN en matrice AlN. Les deux acquisitions sont faites dans une zone où la densité en boîtes quantiques prend une valeur intermédiaire, de l'ordre de 10^9 cm^{-2}.

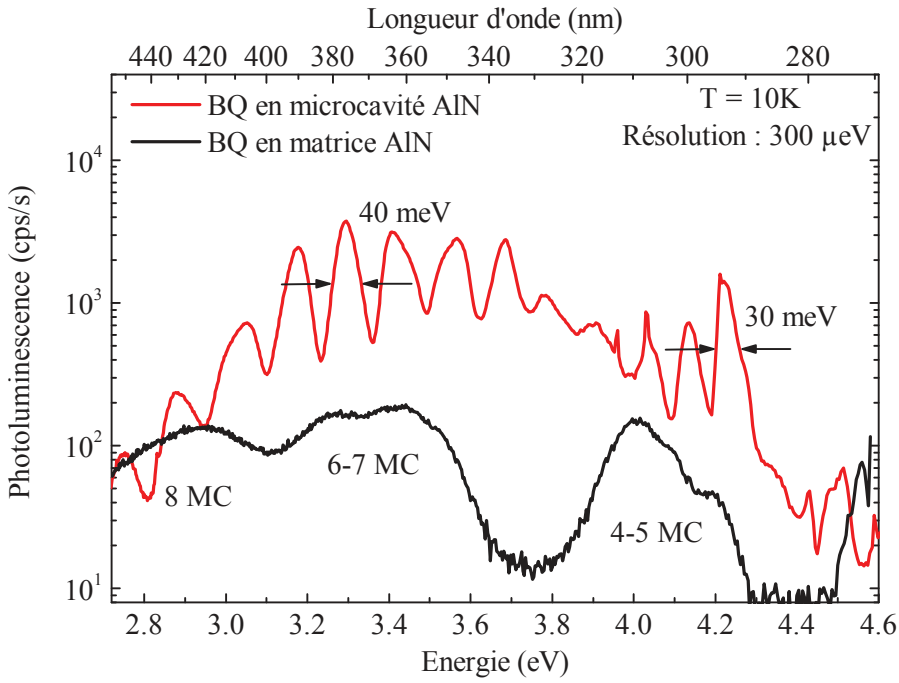


FIGURE 2.35 – *Comparaison de la photoluminescence de boîtes quantiques GaN en microcavité AlN (A1834), en rouge, et dans une matrice en AlN (A1831), en noir. La correspondance entre épaisseurs de boîtes et énergie d'émission est effectuée à l'aide de [20].*

Comme pour la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, la luminescence des boîtes quantiques en microcavité présente de nombreuses oscillations, dont la largeur à mi-hauteur est comprise entre 30 meV et 40 meV, due à la modulation de la transmission introduite par les miroirs de Bragg. Sur toute la plage spectrale d'émission des boîtes quantiques, le signal est, en moyenne, augmenté d'un ordre de grandeur pour les boîtes en microcavité planaire par rapport au cas où elles sont dans une matrice AlN. En ce qui concerne la signature optique d'une boîte quantique unique, nous ne pouvons en observer sur ce spectre. Les travaux de thèse de R. Bardoux ont montré qu'une densité de boîtes quantiques de l'ordre de 10^9 cm^{-2} est encore trop importante pour espérer isoler une seule de ces nanostructures. Afin d'étudier une seule boîte quantique, nous avons effectué des expériences de micro-photoluminescence sur une zone de notre échantillon où la densité en boîtes quantiques est inférieure à 10^7 cm^{-2}.

Micro-photoluminescence de boîtes quantiques uniques

La figure 2.36 présente deux spectres de micro-photoluminescence, en échelle semi-logarithmique, de quelques boîtes quantiques GaN, pris dans des zones où la densité de boîtes quantiques est comprise entre 10^6 cm^{-2} et 10^7 cm^{-2}. La courbe rouge représente le cas où les boîtes sont en microcavité AlN, la courbe noire celui où les boîtes sont en matrice d'AlN.

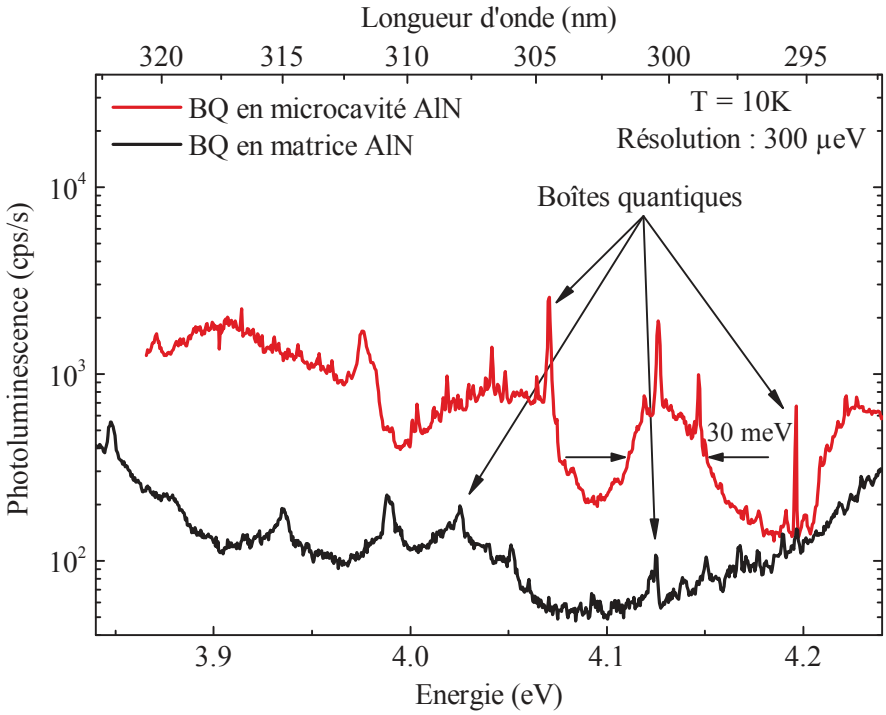


FIGURE 2.36 – *Comparaison de la photoluminescence de quelques boîtes quantiques GaN en microcavité AlN, en rouge, et de la photoluminescence de quelques boîtes quantiques GaN dans une matrice en AlN, tracée en noir.*

Sur les deux spectres, nous pouvons voir quelques pics fins émergeant du fond de la luminescence. Chaque pic correspond à l'émission de photons par une boîte quantique unique. Pour les boîtes en microcavité planaire, l'oscillation du signal de fond a une largeur à mi-hauteur d'environ 30 meV, ce qui correspond aux oscillations de Bragg de la structure mesurée figure 2.35. Le calcul du rapport entre l'intensité intégrée spectralement d'une boîte quantique en microcavité et celle d'une boite en matrice AlN nous permet de déterminer que la collection du signal est améliorée d'un facteur 10 lorsque les boîtes quantiques sont placées dans une cavité Fabry-Perot, ce qui est conforme aux prédictions théoriques établit dans la partie précédente. Notons que la mesure de ce facteur d'exaltation de collection, pour une boîte quantique unique, n'est pas sensible à la densité de boîtes quantiques comme c'est le cas pour la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, mais elle peut néanmoins être perturbée par une différence dans l'efficacité d'injection de paires électron-trou dans chaque boîte quantique.

La figure 2.37 présente en échelle linéaire, sur le panneau (a), un spectre de photolumines-

cence d'une boîte quantique GaN en microcavité AlN ainsi que le spectre de photoluminescence de boîtes quantiques GaN en matrice AlN (panneau (b)). Les mesures sont réalisées avec un réseau de 3600 traits/mm de façon à atteindre une résolution spectrale de 100 μeV. Les traits pleins rouges représentent un ajustement des points expérimentaux à l'aide d'une fonction gaussienne, d'une largeur à mi-hauteur de 300 μeV.

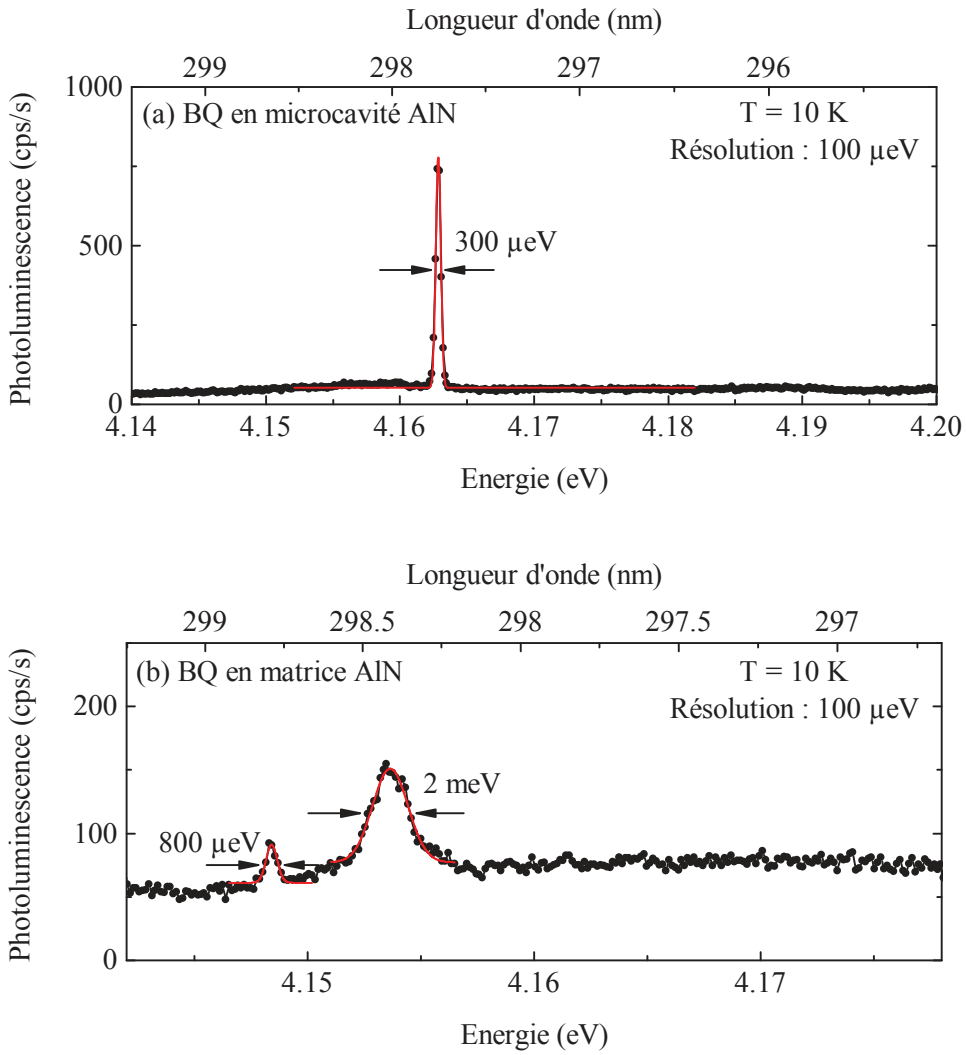


FIGURE 2.37 – *Etudes des largeurs de raie de boîtes quantiques GaN en microcavité AlN (a) et en matrice AlN (b). Les traits rouges représentent un ajustement gaussien de la luminescence des boîtes quantiques.*

Une étude menée sur environ une vingtaine de boîtes nous a permis de déterminer une valeur moyenne pour les largeurs des raies d'émission, selon que la boîte soit en microcavité planaire ou simplement en matrice nitrure. Ces résultats sont présentés figure 2.38 où les barres vertes correspondent aux boîtes quantiques en microcavité et celles en rouges sont associées aux boîtes quantiques en matrice d'AlN.

Pour l'échantillon à microcavité, les largeurs à mi-hauteur des raies de photoluminescence

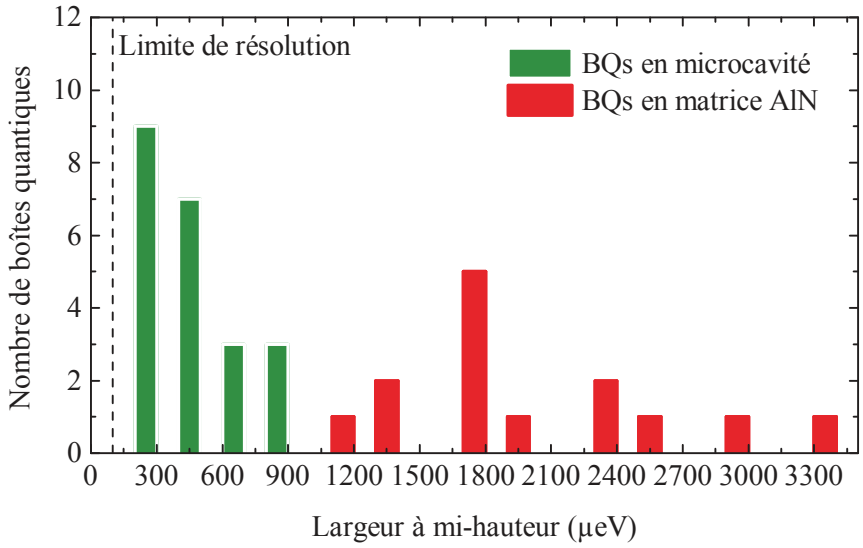


FIGURE 2.38 – *Étude statistique des largeurs à mi-hauteur pour des boîtes quantiques GaN/AlN en microcavité, en vert, et pour des boîtes en matrice AlN, en rouge.*

des boîtes quantiques présentent une valeur moyenne de 490 μeV, représentant l'état de l'art pour les boîtes quantiques nitrure crûes en phase wurtzite [105]. Concernant les boîtes en matrice AlN, les largeurs de raies mesurées oscillent entre 1 meV pour les plus fine, et jusqu'à $3,3$ meV pour les plus larges, avec une valeur moyenne située à $1,95$ meV. L'étude de ces largeurs de raies nous permet d'avoir une idée sur la qualité cristalline de nos échantillons. Pour des boîtes quantiques semi-conductrices, l'élargissement inhomogène d'une transition optique dépend beaucoup de l'environnement de la nanostructure. Il a été montré dans des systèmes plus matures technologiquement, comme les boîtes quantiques InGaAs ou CdTe, que le principal mécanisme d'élargissement inhomogène est la diffusion spectrale [106, 95]. Les largeurs de raie mesurées pour nos boîtes en microcavité montrent que la qualité cristalline de la cavité en AlN est bien meilleure que lorsque l'AlN est crû directement sur le silicium. Cela provient essentiellement du fait que le miroir de Bragg inférieur, dont l'épaisseur est d'environ 2 μm, agit comme une couche tampon et filtre un grand nombre de dislocations traversantes.

2.5 Conclusion

L'étude des propriétés optiques de boîtes quantiques GaN/AlN a été au cœur de ce second chapitre. Les expériences de photoluminescence résolue temporellement réalisées sur des boîtes quantiques GaN/AlN nous ont permis de mettre en évidence un **déclin de luminescence bi-exponentiel** dans une plage spectrale où **le champ électrique interne n'introduit qu'un effet perturbatif** sur les transitions optiques et **sur la dynamique de recombinaisons des excitons**. L'utilisation d'une caméra à balayage de fentes nous ont permis **d'exclure une**

contribution du champ électrique dans le comportement multi-exponentiel du déclin puisque **nous n'observons aucun décalage vers le rouge** assimilable à un écrantage du champ interne. De plus, des mesures de photoluminescence résolue en temps pour plusieurs puissances d'excitation ont montré **qu'il n'existe aucune corrélation entre la puissance d'excitation et les temps de vie ainsi que l'amplitude qui leur est associés, excluant de fait la contribution de complexes multi-excitoniques ou de recombinaisons par effet Auger**. Une des explications les plus probables pour **comprendre ce déclin bi-exponentiel est de tenir compte d'un état noir excitonique**, repeuplant l'état brillant par le biais d'interactions excitons-phonons.

L'exploration de cette hypothèse passe par l'étude du déclin temporel de la photoluminescence d'une boîte quantique unique. Ce type d'expériences est souvent compliqué en physique du solide, plus particulièrement lorsqu'il s'agit de semi-conducteur III-N. **L'importance des défauts structuraux dans les nitrures**, limitant la génération d'excitons au sein des boîtes quantiques et leur efficacité radiative, associée au **phénomène de réflexion totale interne à l'interface semi-conducteur/air** limitent fortement la collection du signal de luminescence. Un moyen de **contourner ces limitations est d'utiliser une microcavité planaire** où le mode photonique sera accordé avec l'émission des boîtes quantiques étudiées. Cette approche permet de **modifier le diagramme de rayonnement d'une boîte quantique** et simplifie ainsi les études optiques sur boîtes uniques, assez peu développées dans les nitrures.

Nous avons présenté trois microcavités différentes, dont les paramètres ont été optimisés au préalable, où **la collection de lumière peut être améliorée en utilisant les effets de modification du diagramme de rayonnement introduit par la microcavité**. Sur ces trois microcavités, deux ont pu être réalisées. Malgré les développements expérimentaux effectués et les problèmes techniques rencontrés sur des pièces maitresses du dispositif de microphotoluminescence, comme le détecteur CCD, **nous avons pu observer une augmentation du signal collecté d'un facteur 5 pour la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$ et d'un facteur 10 pour la microcavité AlN**.

Les perspectives de ces travaux sont nombreuses et touchent aussi bien des domaines fondamentaux qu'applicatifs. L'augmentation du signal collecté favorise les expériences effectuées sur boîtes quantiques uniques nécessitant des temps d'acquisitions relativement longs, comme par exemple l'analyse de la statistique d'émission des boîtes, réalisée grâce à l'étude des corrélations temporelles entre les photons émis par une même boîte quantique. **La réduction du volume de confinement optique**, en structurant par exemple la microcavité planaire en micropillier, pourrait permettre **l'observation d'un couplage fort lumière-matière** ou encore **l'obtention d'une émission laser à partir de boîtes quantiques nitrures**, encore inobservée à ce jour. Enfin, **lorsque la réalisation de microcavités à base de miroirs de Bragg AlN/air sera maitrisée**, il est tout a fait possible d'envisager d'utiliser **les boîtes quantiques comme sources de photons uniques à température ambiante, avec une directionnalité importante et opérant à des fréquences de l'ordre de $2,5$ GHz**.

Chapitre 3

Micro-lasers UV à base de microdisques AlN à puits quantiques GaN/AlN

Le contrôle de l'interaction lumière-matière dans les nitrures reste à ce jour un véritable défi compte tenu de la qualité structurale des matériaux utilisés. Les dispositifs émettant dans l'UV profond nécessitent des techniques de croissance complexes et les expériences d'électrodynamique quantique en cavité n'en sont qu'à leurs balbutiements. Parmi les effets résultants du contrôle du couplage {émetteur solide, cavité optique}, l'exaltation/inhibition de l'émission spontanée est un atout pour des applications de type micro-lasers puisque cette dernière joue un rôle clef dans le déclenchement de l'émission stimulée. Proposé par Yamamoto *et al.* en 1991 [107], le couplage de l'émission spontanée d'un émetteur solide, comme des puits ou des boîtes quantiques, avec le mode photonique d'une cavité a permis la réalisation de lasers à faible seuil dans des microdisques InGaAsP/InGaAs [108], des cavités à cristal photonique en InGaAsP [109] et des micropilliers GaAs/InGaAs [110]. De part la simplicité de leur fabrication, les microdisques à puits quantiques GaN/AlN sur substrat silicium forment le système le plus judicieux comme point de départ vers la réalisation de micro-lasers UV mono-modes et à faible seuil dans les nitrures.

Ce troisième chapitre est donc dédié à l'étude des propriétés optiques linéaires et non-linéaires de puits quantiques GaN/AlN insérés dans des microdisques en AlN. Nous présenterons dans la partie 3.1 l'état de l'art des lasers et micro-lasers UV nitrures, ainsi que les précédentes études effectuées au sein du laboratoire, afin de mieux cerner le contexte dans lequel s'inscrivent nos travaux. La partie 3.2 détaillera les mécanismes de contrôle de l'émission spontanée dans une microcavité et les principales propriétés des microdisques, comme l'existence de modes électromagnétiques confinés à la périphérie, aussi appelés modes de galerie. Les techniques de fabrication de nos nanostructures, émetteurs et résonateurs, feront l'objet de la partie 3.3. Enfin, les parties 3.4 et 3.5 exposeront respectivement les propriétés optiques linéaires et non-linéaires

de nos microdisques. Nous présenterons notamment dans la dernière la démonstration du premier micro-laser dans émettant l'UV profond et à température ambiante.

Les travaux sont réalisés en collaboration avec les équipes de F. Semond (CRHEA) pour l'épitaxie des couches actives, P. Boucaud (IEF) pour la fabrication des microdisques et B. Gayral (INAC) pour une partie de la spectroscopie des couches actives.

Sommaire

3.1 État de l'art **86**
3.2 Microcavités à modes de galerie pour le contrôle de l'émission spontanée. **91**
3.2.1 Contrôle de l'émission spontanée et effet laser dans une microcavité . . 91
3.2.2 Confinement de la lumière dans un microdisque 94
3.2.3 Description analytique des modes de galerie 96
3.2.4 Caractéristiques des modes de galerie 102
3.3 Fabrication des échantillons **103**
3.3.1 Croissance des couches actives 103
3.3.2 Fabrication des microdisques 104
3.4 Études des propriétés optiques linéaires **106**
3.4.1 Caractérisation de la couche active 106
3.4.2 Caractérisation des microdisques GaN/AlN 113
3.4.3 Spectroscopie des microdisques 116
3.5 Études des propriétés optiques non-linéaires **119**
3.5.1 Expériences de photoluminescence sous forte injection optique 119
3.5.2 Caractéristiques du micro-laser 124
3.5.3 Influence de la passivation de surface 129
3.6 Conclusion et perspectives **132**

3.1 État de l'art

États de l'art des lasers et micro-lasers UV

Les lasers UV-C actuels, pour lesquels λ est compris entre 280 nm et 210 nm, sont pour la plupart basés sur des structures de type *lasers à barreaux*, ou *ridge lasers* en anglais, de longueur millimétrique, fonctionnant sur le principe d'une cavité Fabry-Pérot macroscopique et ayant pour milieu actif un alliage ternaire $Al_xGa_{1-x}N$ à forte concentration en aluminium. Ce fort taux d'aluminium est nécessaire pour obtenir une émission à haute énergie et la composition de la barrière doit être suffisamment proche de celle du puits pour limiter la formation de dislocations traversantes. Une revue non-exhaustive mais suffisamment complète pour prendre connaissance des récents progrès dans le domaine des lasers UV profond a été faite par Jmerik *et al.* en 2013 [111]. Le point crucial dans la conception de ces dispositifs est la qualité structurale

des matériaux utilisés. Les travaux de Martens *et al.* menés sur des lasers à puits quantiques $Al_{0,60}Ga_{0,40}N/Al_{0,70}Ga_{0,30}N$ ayant des densités de défauts allant de 10^{10} à 10^4 cm^{-2} mettent en évidence cette contrainte [15]. En mesurant l'efficacité quantique interne (EQI), qui est estimée comme le rapport de l'intensité émise à température ambiante et à 5 K, il a pu être démontré que l'obtention d'un effet laser passe nécessairement par une couche active ayant une EQI d'au moins 10 %, ce qui correspond à des densités de dislocations inférieures à 10^{10} cm^{-2}. La fabrication de telles couches actives requiert des techniques d'épitaxies lourdes et coûteuses, comme l'épitaxie par croissance latérale à haute température [112], la croissance sur substrats nitrures [113] ou l'utilisation de couches tampons pour réduire la contrainte épitaxiale [13]. Il est important de noter que la qualité structurale des matériaux n'est pas la seule en cause dans la diminution de l'EQI. L'échappement thermique à température ambiante des porteurs vers la barrière joue un rôle non-négligeable. La teneur en aluminium du puits et des barrières ne diffère en général que très peu, pour limiter au maximum la différence de paramètres de maille entre le matériau du puits et celui des barrières, ce qui réduit le confinement énergétique des porteurs.

Concernant les micro-émetteurs, l'émission laser avec des cavités optiques nitrures a été démontrée dans le domaine visible à l'aide de microdisques. Nous pouvons citer par exemple l'utilisation de puits quantiques InGaN/GaN dans des microdisques pour une émission dans le vert à 515 nm [114] ou le violet à 422 nm avec des puits quantiques AlInN/GaN [115]. Des puits GaN/AlGaN ont également été utilisés pour émettre dans le proche ultra-violet à 380 nm [116] et plus récemment, Bürger *et al.* ont rapporté une émission laser à 303 nm, dont l'interprétation reste néanmoins controversé en raison d'une augmentation non-linéaire du signal de fond, à partir de boîtes quantiques cubiques GaN/AlN dans un microdisque en AlN [19]. Notons également que l'observation d'une émission stimulée avec des composés nitrures a été faite dans une cavité à cristal photonique 1D InGaN à 430 nm [117] ou encore dans des nanofils d'AlGaN à 330 nm en tirant partie de l'arrangement aléatoire des nanofils pour obtenir un confinement local de la lumière [118]. Tous ces travaux ont en commun d'être réalisés à partir de cavités dont le facteur de qualité moyen est de l'ordre de 3000.

Ce rapide tour d'horizon montre que les émetteurs haute-énergie existants, qui sont des lasers à barreaux, sont difficilement adaptés pour de la photonique intégrée à cause de leurs structures complexes et épaisses. Du côté des micro-lasers, la limitation provient de la longueur d'onde d'émission, qui se cantonne au visible. En cause, la taille nécessaire des puits quantiques $Al_xGa_{1-x}N$ émettant à haute énergie qui va de pair avec une importante densité de défauts structuraux, comme nous avons pu le voir sur la figure 1.3. De plus, une grande partie des micro-lasers opérant dans le visible sont conçus avec de l'indium, ce qui diminue l'influence des défauts non-radiatifs grâce à des effets de localisation des porteurs dûs à l'existence de clusters de nitrure d'indium [18]. A ce jour, il n'existe aucun émetteur laser de taille micrométrique, ayant une structure simple et opérant dans l'ultra-violet profond. Les travaux présentés dans ce chapitre s'inscrivent dans la perspective de réaliser un laser de taille micrométrique opérant dans la gamme de longueur d'onde 260 $nm - 280$ nm, à température ambiante. Pour cela, l'utilisation

de microdisques présente de nombreux avantages dont le principal est la simplicité de fabrication de telles cavités optiques.

Les microdisques à boîtes quantiques GaN/AlN

Les études de microdisques nitrures au sein du laboratoire remontent à 2009 et au projet Sinphoni [1]. Dans cette partie, nous revenons brièvement sur les travaux effectués par M. Mexis lors de son séjour post-doctoral sur des microdisques contenant quatre et douze plans de boîtes quantiques GaN/AlN. Cette rapide présentation nous permettra, entre autres, de justifier le choix de puits quantiques comme couche active.

L'intérêt des boîtes quantiques GaN/AlN comme émetteurs de lumière repose sur trois points :

— La possibilité de sonder et caractériser un grand nombre de modes de galerie grâce à l'élargissement inhomogène important pour ces nanostructures.

— Le faible impact du champ électrique interne pour les petites boîtes émettant aux alentours de $3,6\ eV/345\ nm$ et ayant donc une importante force d'oscillateur.

— La perspective de réaliser un laser UV à très faible seuil, comme c'est le cas pour les arséniures [119], grâce au confinement des porteurs dans les trois dimensions de l'espace.

Le panneau (a) de la figure 3.1 présente le spectre de photoluminescence de quatre plans de boîtes quantiques GaN/AlN dans un microdisque en AlN. La principale particularité des microdisques est l'émission de lumière par les bords. La détection de la luminescence se fait donc sur la tranche du microdisque à l'aide d'une fibre optique et d'une lentille de couplage.

L'émission de lumière, spectralement large, provient des boîtes quantiques et est surmontée de pics fins. Ces pics correspondent aux modes de galerie du microdisque, qui permettent une émission très efficace de la lumière vers l'extérieur de la cavité. Ces modes sont situés sur la périphérie du microdisque et la lumière est essentiellement émise par la tranche du disque. Selon la position spatiale des modes, le pied sur lequel repose la structure peut avoir une influence relativement importante sur le facteur de qualité des modes. L'étude des modes a permis de mettre en évidence la qualité du processus de fabrication ainsi que l'influence du pied en silicium sur les facteurs de qualité. L'encart du panneau (a) présente un mode de galerie ainsi que son ajustement gaussien et révèle un facteur de qualité de 5000 (des facteurs de qualité de 7000 sont obtenus pour un disque de 5 μm de diamètre), ce qui représente l'état de l'art pour les systèmes nitrures.

Le panneau (b) présente les facteurs de qualité en fonction de l'énergie d'émission des modes radiaux $n = 1$ et $n = 2$. Nous pouvons voir que pour les modes d'ordre 1, le facteur de qualité est stable puis baisse lorsque l'énergie augmente. Cette dégradation est due à l'absorption des boîtes quantiques, plus importante à haute énergie. En ce qui concerne les modes d'ordre 2, la diminution globale d'un facteur 2, par rapport aux modes d'ordre 1, des facteurs de qualité est causée par leur superposition spatiale avec le pied en silicium. Le panneau (c) présente la forme

1. SIlicon technology for NanoPHOtonic NItride emitters, projet ANR

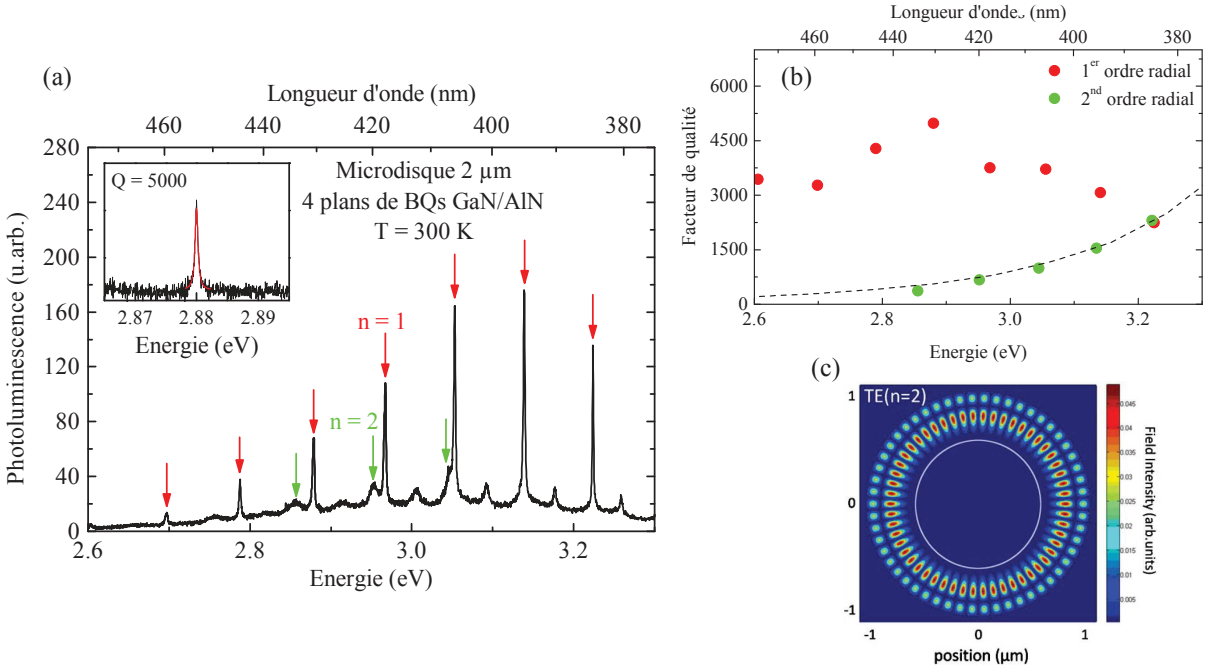


FIGURE 3.1 – *(a) Spectre de photoluminescence, obtenue sous excitation continue à 266 nm, d'un microdisque de 2 µm de diamètre contenant quatre plans de boîtes quantiques GaN/AlN. L'encart présente un spectre haute résolution d'un des modes de galerie et son ajustement par une gaussienne (courbe rouge). Les modes radiaux $n = 1$ et $n = 2$ sont indexés respectivement en rouge et vert. (b) Facteur de qualité pour les 1er et 2nd modes radiaux en fonction de l'énergie. (c) Simulation des modes azimutaux TE_0 d'ordre radial $n = 2$ pour un microdisque de diamètre $2,06$ µm. Le cercle blanc représente le pied du microdisque. Les données proviennent des travaux de M. Mexis et al. [120].*

analytique des modes de galerie, où le cercle blanc représente le pied en silicium, et montre la proximité existante entre les modes $n = 2$ et le pied du microdisque. La diminution du facteur Q lorsque l'énergie baisse provient du fait que pour les modes à hautes longueurs d'onde, la superposition est plus importante que pour les modes à basses longueurs d'onde.

L'étude des propriétés optiques non-linéaires de microdisques contenant quatre et douze plans de boîtes quantiques GaN/AlN est présentée figure 3.2.

Le panneau (a) présente les spectres de photoluminescence d'un microdisque de 2 μm de diamètre contenant quatre plans de boîtes quantiques GaN/AlN. Nous pouvons voir un décalage vers le bleu d'environ 700 meV entre les spectres à basse puissance et haute puissance d'excitation. Ce décalage traduit l'écrantage du champ électrique interne, signe que ce sont majoritairement des grosses boîtes qui participent à l'émission de lumière. Notons que l'augmentation de l'intensité des modes de galerie à haute énergie va de pair avec une augmentation du fond, ce qui écarte l'observation d'un effet laser mais laisse supposer un début de saturation de l'absorption.

Dans l'optique d'améliorer le gain potentiel des couches actives, des échantillons contenant

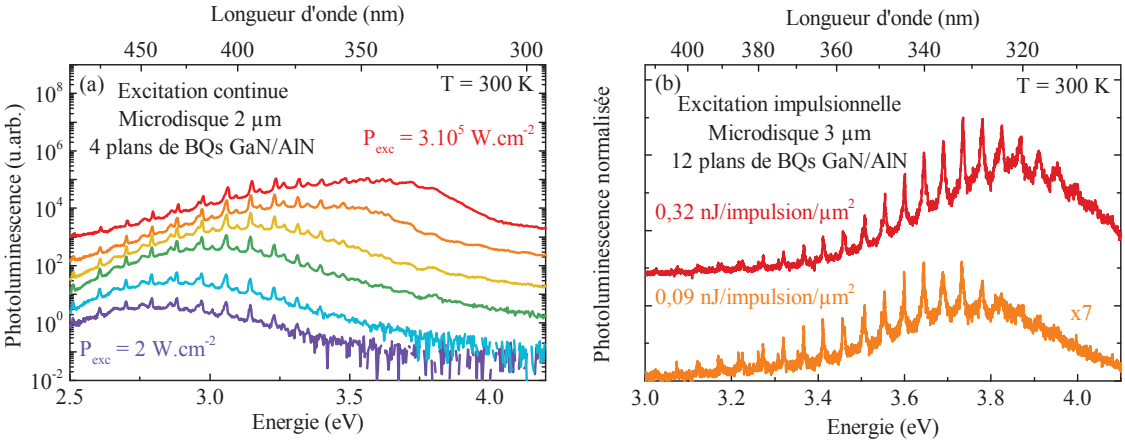


FIGURE 3.2 – *(a) Spectre de photoluminescence pour plusieurs puissances d'excitation, sous excitation continue à 266 nm, d'un microdisque de 2 µm de diamètre contenant quatre plans de boîtes quantiques GaN/AlN. (b) Spectre de photoluminescence sous excitation impulsionnelle d'un microdisque de 3 µm de diamètre contenant douze plans de boîtes quantiques GaN/AlN. Le laser d'excitation est un laser impulsionnel émettant à 266 nm, avec une fréquence de 4 kHz et une largeur d'impulsion de 400 ps. L'ensemble des spectres est obtenu en détectant la lumière émise par la tranche du microdisque.*

douze plans de boîtes ont été réalisés. En plus du nombre de plans de boîtes, ces échantillons ont été optimisés pour avoir une densité de petites boîtes plus importante et ainsi limiter l'absorption non-résonnante des boîtes quantiques émettant à basse énergie. Le panneau (b) présente des expériences sous excitation impulsionnelle afin d'augmenter la densité de porteurs photo-créés par rapport à une excitation continue. Ces mesures révèlent toujours un décalage vers le bleu lorsque la puissance d'excitation augmente mais aucun signe d'une émission laser n'est observable. L'étude à plus forte puissance d'excitation n'a pu être réalisée car au-dessus de $0,32\ nJ/impulsion/\mu m^2$ les microdisques subissent des dommages irréversibles.

L'absence d'émission stimulée est due à l'influence des grosses boîtes : bien que la luminescence des petites boîtes soit en résonance avec des modes de galerie, vers $3,6\ eV$ et plus, le remplissage des grosses boîtes, dont la transition fondamentale se situe à des énergies inférieures à $3,0\ eV$ et qui ont un temps de vie radiatif pouvant atteindre $1\ \mu s$ [11], limite fortement le phénomène d'inversion de population. Les boîtes quantiques émettant à basse énergie ont une absorption importante aux longueurs d'ondes d'émission des petites boîtes quantiques, due à l'absorption des niveaux excités et du quasi-continuum des paires électron-trou, mais également une faible force d'oscillateur, conséquence du temps de vie radiatif relativement long. Ces deux particularités, inhérente aux nitrures, augmentent fortement le nombre de porteurs nécessaire à l'obtention d'un effet laser et ce dernier est donc conditionné par la nature de la couche active. Bien que présentant de nombreux avantages, les boîtes quantiques ne sont finalement pas aussi bien adaptées qu'elles le laissaient espérer pour de l'émission stimulée. En cause, les techniques de croissance qui, à l'heure actuelle, conduisent à des échantillons ayant une grande dispersion

en taille de boîtes quantiques. Ainsi, les échantillons optimisés pour des boîtes ayant une hauteur de l'ordre de 2-3 mono-couches de GaN présentent une densité encore trop importante de boîtes d'épaisseurs supérieures à 6 mono-couches pour espérer obtenir un effet laser à haute énergie.

L'amélioration des procédés de croissance étant compliquée, une des pistes pour maitriser l'émission stimulée dans des micro-systèmes nitrures est d'utiliser de fins puits quantiques GaN/AlN où l'élargissement inhomogène et l'influence du champ électrique interne seront moins importants. Couplés à des microdisques en AlN, dont le processus de fabrication est bien maîtrisé, ce type de systèmes est prometteur pour une démonstration de micro-laser au vu de nos connaissances sur la physique des semi-conducteurs III-N.

3.2 Microcavités à modes de galerie pour le contrôle de l'émission spontanée.

Depuis 1946 et l'article fondateur d'E. Purcell [121], il est acquis que l'émission spontanée n'est pas une propriété intrinsèque de l'émetteur mais dépend fortement de l'interaction qu'il a avec son environnement électromagnétique. Dès lors, il apparait que l'émission spontanée est une conséquence du couplage entre l'émetteur et le champ électromagnétique qui l'entoure. L'apport fondamental de Purcell réside dans la compréhension du fait que le taux d'émission spontanée peut être significativement modifié par la présence de miroirs à proximité de l'émetteur qui ont pour rôle de modifier le champ électromagnétique du vide. Un tel système est appelé *microcavité* et donne lieu à une discrétisation des modes électromagnétiques accessibles. Les grandeurs caractéristiques d'une microcavité sont son *facteur de qualité* Q, ou sa *finesse* $\mathcal{F}$ qui rend compte du nombre d'aller-retour d'un photon dans la cavité, et son *volume effectif* V_{eff} qui correspond au volume dans lequel le champ électromagnétique est confiné.

3.2.1 Contrôle de l'émission spontanée et effet laser dans une microcavité

Couplage lumière-matière et contrôle de l'émission spontanée

Deux régimes d'interaction lumière-matière peuvent être distingués au sein d'une microcavité comme un microdisque. En régime de couplage fort, l'interaction lumière-matière est tellement importante que le photon et l'exciton n'existent plus de manière indépendante mais forment un nouvel état propre appelé polariton de cavité, qui est l'analogue de l'atome habillé en physique atomique. L'énergie du système est alors échangée périodiquement entre le mode de cavité et l'émetteur et cette périodicité est caractérisée par *la fréquence de Rabi* Ω_R.

Lorsque le couplage exciton-photon n'est pas suffisant pour former des polaritons de cavité, le système est en régime de couplage faible. Dans ce cas, le taux d'émission spontanée pour un système à deux niveaux est donné par la règle d'or de Fermi, ici écrite dans l'approximation dipolaire :

$$\Gamma_{sp} = \frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\langle i| \mathbf{d}.\mathbf{E} |f\rangle|^2 \rho_0(\omega) \tag{3.1}$$

où ω est la fréquence d'émission de l'exciton, $\mathbf{d}$ l'opérateur moment dipolaire, $\mathbf{E}$ l'opérateur champ électrique et $\rho_0(\omega)$ la densité de modes photoniques du vide accessibles à l'émetteur qui vaut :

$$\rho_0(\omega) = \frac{\omega^2 V n_{opt}^3}{\pi^2 c^3} \tag{3.2}$$

avec V le volume du mode et n_{opt} l'indice d'optique du milieu étudié.

A l'intérieur d'une microcavité, la structuration du champ électromagnétique du vide va modifier la densité d'états accessibles $\rho(\omega)$, qui, dans l'approximation d'une cavité monomode de spectre lorentzien, vaudra alors [122] :

$$\rho_{cav}(\omega) = \frac{2}{\pi \Delta\omega_c} \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \tag{3.3}$$

où $\Delta\omega_c$ et ω_c sont respectivement la largeur à mi-hauteur et la position spectrale du mode de cavité.

L'expression de la densité d'états nous permet de voir qu'en présence d'une microcavité, le taux d'émission spontanée peut être modifié en accordant le mode de cavité avec la fréquence d'émission de l'émetteur. Pour un émetteur situé à un maximum du champ électrique de la cavité, le taux d'émission spontanée Γ_{sp} est augmenté d'une grandeur multiplicative appelée *facteur de Purcell*, qui vaut [123] :

$$F_P = \frac{\Gamma_{cav}}{\Gamma_{sp}} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q\lambda_{em}^3}{V_{eff} n_{cav}^3} \tag{3.4}$$

où Γ_{cav} est le taux d'émission spontanée modifié par la présence de la cavité, Q et V_{eff} sont respectivement le facteur de qualité et le volume effectif du mode photonique, λ_{em} la longueur d'onde de l'émetteur et n_{cav} l'indice optique de la microcavité.

Effet laser et facteur β dans une microcavité

Indépendamment de l'accélération de l'émission spontanée par effet Purcell, l'interaction lumière-matière au sein d'une microcavité en régime de couplage faible peut donner lieu à un effet laser. L'observation d'un phénomène d'émission stimulée se traduit par une augmentation non-linéaire du nombre de photon émis au travers du mode de cavité. La proportion de photons émis par l'ensemble de la zone active au travers du mode photonique d'intérêt est caractérisé par le facteur β, qui quantifie les performances d'un micro-laser. Plus il est proche de 1 et plus la proportion de photons émis dans le mode est importante, ce qui a pour conséquence de diminuer la puissance nécessaire à la mise en place d'un effet laser, aussi appelée *puissance seuil*.

L'estimation du facteur β peut se faire à l'aide du modèle développé par E. Rosencher et

B. Vinter dans le livre "Optoélectronique" [124]. Elle résulte des équations suivantes, qui régissent la cinétique de la densité de porteurs n et de la densité de photons s dans l'approximation d'une cavité mono-mode :

$$\frac{dn}{dt} = P - \gamma_{tot} n - c' g s (n - n_{tr}) \tag{3.5}$$

$$\frac{ds}{dt} = c' g s (n - n_{tr}) \Gamma - \gamma_{cav} s + \gamma_{spon} n \tag{3.6}$$

où P est la puissance fournie, γ_{tot} le taux de photons émis hors de la cavité, c' la vitesse de groupe des photons, g le gain dynamique, n_{tr} la densité de porteurs lorsque le système devient transparent, i.e. que le gain compense exactement les pertes, Γ le facteur de recouvrement spatial entre les porteurs et le mode de cavité, γ_{cav} le taux de perte de la cavité et γ_{spon} le taux d'émission spontanée. En régime stationnaire, ces deux équations permettent d'obtenir la densité de porteurs n et la densité de photons s :

$$\frac{P}{P_{tr}} = x + \frac{\beta}{\Gamma} \frac{x(x-1)}{\alpha - x} \tag{3.7}$$

$$s = n_{tr} \beta (\alpha - 1) \frac{\gamma_{spon}}{\gamma_{cav}} \frac{x}{\alpha - x} = A \frac{x}{\alpha - x} \tag{3.8}$$

où P_{tr} est la puissance nécessaire à fournir pour que le système devienne transparent, $x = \frac{n}{n_{tr}}$, β est le facteur global de couplage de l'émission spontanée et tient compte de l'efficacité quantique de la zone active, $\alpha = \frac{n_{clamp}}{n_{tr}}$ est le rapport entre la densité de porteurs pour laquelle la saturation du gain est atteinte et celle à la transparence.

En supposant que $\Gamma = 1$, ce qui dans notre cas semble raisonnable puisque que nous avons 20 puits quantiques dans nos microdisques, la résolution de l'équation implicite 3.7 et son injection dans l'équation 3.8 nous permet d'exprimer la densité de photons en fonction de la puissance fournie au système :

$$s(P) = A \frac{\dfrac{\alpha - \beta + P/P_{tr} - \sqrt{(P/P_{tr})^2 - 4(\alpha - \beta) P/P_{tr}}}{2(1-\beta)}}{\alpha - \dfrac{\alpha - \beta + P/P_{tr} - \sqrt{(P/P_{tr})^2 - 4(\alpha - \beta) P/P_{tr}}}{2(1-\beta)}} \tag{3.9}$$

La figure 3.3 présente des courbes obtenues à partir de l'équation 3.9 pour différentes valeurs de β et pour des puissances seuil et de transparence fixées à respectivement 13 mW et 8 mW.

Pour un facteur β très petit devant 1, le comportement d'un micro-laser est semblable à celui d'une diode laser classique. L'émission sous le seuil est linéaire avec la puissance puis devient non-linéaire à la puissance seuil pour enfin redevenir linéaire au-dessus du seuil. Le seuil peut ainsi être défini simplement et correspond à la puissance nécessaire à injecter pour que l'émission de photons devienne non-linéaire. Nous pouvons remarquer que plus β se rapproche de 1 et moins

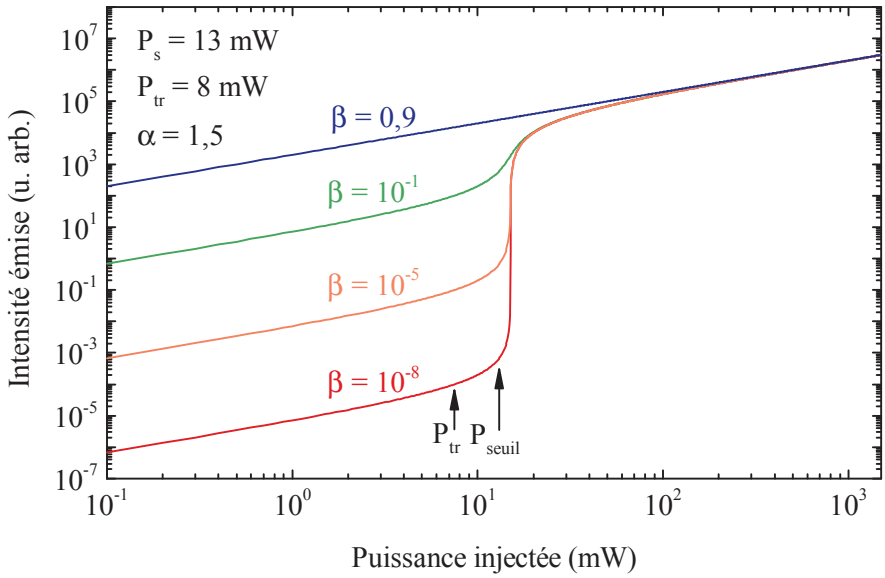


FIGURE 3.3 – *Variation de l'intensité émise dans un mode de cavité en fonction de la puissance injectée, pour différentes valeurs du facteur β. La puissance de transparence et la puissance seuil sont indiquées par des flèches.*

la transition au seuil est brutale. Cela provient du fait que la part d'émission spontanée émise au travers du mode est plus importante, ce qui augmente l'intensité émise sous le seuil. Pour $\beta = 1$, l'intégralité de l'émission spontanée est émise dans le mode photonique et le seuil laser ne peux plus être déterminé à partir du comportement de l'intensité émise en fonction de la puissance d'injection. Bien qu'il s'agisse d'un abus de langage, de tels micro-lasers sont appelés lasers sans seuil. Or, il est toujours possible de définir une valeur de la puissance d'injection à partir de laquelle l'émission passera de non-cohérente à cohérente. Le seuil est alors défini à partir de la fonction de corrélation de second ordre du signal émis $g^{(2)}(0)$, qui vaut 2 pour une source de lumière non-cohérente et 1 pour une source cohérente [125].

3.2.2 Confinement de la lumière dans un microdisque

Au sein d'un microdisque, le confinement du champ électromagnétique donne naissance aux *modes de galerie*, ou *whispering gallery modes* en anglais. Ce terme décrit un type d'onde qui peut se propager le long d'une surface circulaire par réflexion totale. La première description d'un résonateur à modes de galerie remonte à 1877 par Lord Rayleigh lorsque ce dernier s'attela à décrire le phénomène particulier de propagation des ondes acoustiques au sein de la cathédrale St Paul à Londres [126]. Trente ans plus tard, G. Mie met en évidence de fines résonances dans le spectre de diffusion de la lumière par des particules sphériques de grandes tailles devant la longueur d'onde utilisée [127]. En 1912, Lord Rayleigh reprend son idée précédente et l'applique aux longueurs d'onde optiques en interprétant l'observation de Mie comme étant une signature d'interférences constructives au sein d'une sphère dues à la réflexion totale interne de la lumière

en incidence rasante [128].

En première approximation, l'optique géométrique suffit à rendre compte du phénomène des modes de galerie optiques. La différence d'indices de réfraction entre le semi-conducteur composant le microdisque et l'air conduit à un confinement de la lumière très efficace au sein du microdisque. La figure 3.4 (a) présente la condition de réflexion totale interne au dioptre semi-conducteur/air pour la lumière émise par un puits quantique au sein d'un microdisque.

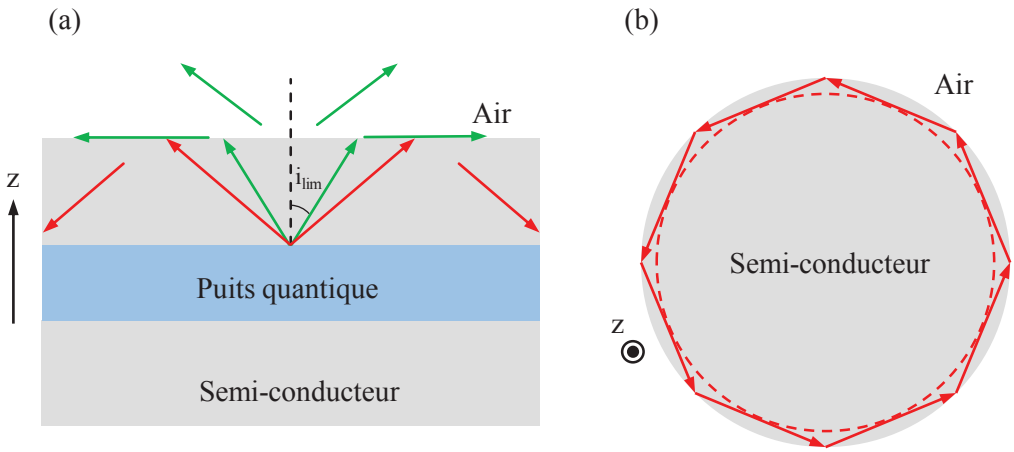


FIGURE 3.4 – *(a) Illustration de la lumière émise, rayonnée vers l'extérieur (en vert) et totalement réfléchie au dioptre semi-conducteur/air (en rouge). (b) Schéma du trajet de la lumière au sein d'un microdisque pour un angle d'incidence supérieur à i_{lim}. Les traits pointillés délimite la caustique, c'est-à-dire la couronne où la lumière peut se propager.*

D'après la loi de Snell-Descartes, il existe un angle limite $i_{lim} = \arcsin(\frac{n_{air}}{n_{sc}})$, au-delà duquel la lumière ne peut plus s'échapper du semi-conducteur (cas en vert) mais reste confinée à l'intérieur du microdisque (cas en rouge). Dans ce dernier cas, la lumière est réfléchie intégralement sur le périmètre du disque (figure 3.4 (b)) et une analogie avec un interféromètre de Fabry-Pérot replié sur lui-même peut être faite. Pour obtenir des interférences constructives, la lumière doit parcourir un aller-retour dans la cavité, ici un périmètre, et revenir au point de départ avec la même phase. Dans la limite des petits angles, c'est-à-dire en incidence rasante, cela se traduit par la condition suivante sur la longueur d'onde :

$$\frac{2\pi n_{sc} R}{p} = \lambda_r \tag{3.10}$$

où n_{sc} est l'indice de réfraction du milieu semi-conducteur confinant la lumière, R le rayon du disque, p un entier naturel et λ_r la longueur d'onde de résonance. Le microdisque présente donc des modes à certaines longueurs d'onde pour lesquelles la lumière émise depuis l'intérieur sera mieux extraite.

La distance spectrale entre les modes est appelée Intervalle Spectral Libre (ISL). Cet intervalle est donné en fréquence car les modes optiques d'un Fabry-Pérot sont périodiques en fréquence, et non en longueur d'onde, et vaut :

$$\Delta\nu = \nu_{p+1} - \nu_p = \frac{c}{2\pi n_{sc} R} \tag{3.11}$$

Cependant, un ISL en longueur d'onde peut-être défini localement si $p >> 1$:

$$\Delta\lambda = \lambda_{p+1} - \lambda_p \simeq \frac{\lambda_p^2}{2\pi n_{sc} R} \tag{3.12}$$

où λ_0 est la longueur d'onde la plus proche de deux pics de transmission maximale.

A ce stade et à partir d'un traitement très simple, deux informations importantes sont à retenir, comme illustré sur la figure 3.1 (a) :

1. Pour une source de lumière polychromatique interne au microdisque, il existe des longueurs d'ondes particulières où l'émission est augmentée à cause d'interférences constructives : ce sont les modes de galerie.
2. Ces longueurs d'ondes sont séparées spectralement d'une grandeur constante appelée intervalle spectral libre et qui est inversement proportionnelle au diamètre du microdisque.

3.2.3 Description analytique des modes de galerie

Contrairement au problème de la lumière confinée dans une sphère, le problème d'un champ électromagnétique confiné dans un microdisque ne peut pas être résolu de façon analytique. Une bonne approximation de la solution de ce problème peut cependant être obtenue dans le cadre de *l'approximation des modes de galerie* [129] qui est valable lorsque $R >> \lambda/n_{sc}$ où R est le rayon du microdisque, λ la longueur d'onde du rayonnement et n_{sc} l'indice de réfraction du disque. La description des modes de galerie commence avec les équations de Maxwell auxquelles la propagation d'une onde lumineuse obéit. Dans le cas d'un milieu sans charges libres ni courant, nous avons :

$$\nabla.\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = 0 \tag{3.13}$$

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r},t) = -j\omega\mu\mathbf{H} \tag{3.14}$$

$$\nabla.\mathbf{H}(\mathbf{r},t) = 0 \tag{3.15}$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r},t) = j\omega\epsilon\mathbf{E} \tag{3.16}$$

Des équations 3.14 et 3.16 nous pouvons établir l'équation de Helmholtz pour les champs électrique $\mathbf{E}$ et magnétique $\mathbf{H}$:

$$\Delta\mathbf{F} - \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \mathbf{F} = 0 \tag{3.17}$$

où $\mathbf{F}$ représente soit le champ $\mathbf{E}$, soit le champ $\mathbf{H}$.

Au vu de la géométrie du problème, il apparait plus judicieux d'exprimer l'équation 3.17 en coordonnées cylindriques :

$$\left[\frac{\partial}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}+\frac{1}{r^2}\frac{\partial^2}{\partial\theta^2}+\frac{\partial}{\partial z}\right]\mathbf{F}+\frac{\omega^2}{c^2}n^2\mathbf{F}=0 \tag{3.18}$$

L'importante différence d'indice optique entre le semi-conducteur et l'air permet un fort confinement du champ électromagnétique dans la direction z. Le microdisque peut alors être vu comme un guide d'onde fini et nous pouvons introduire l'approximation des modes de galerie qui consiste à séparer les solutions du problème en deux types d'ondes : les ondes TE, où le champ **E** est perpendiculaire au plan du disque et les ondes où le champ **H** est perpendiculaire au microdisque, appelées TM. Le problème devient alors scalaire en z et il nous suffit d'étudier la composante F_z. La résolution de l'équation 3.18 s'obtient à l'aide d'une technique bien connue en mathématique pour les équations différentielles partielles, qui est la technique de *séparations des variables* et qui est applicable lorsque chacune des variables apparait dans un terme distinct de l'équation [130]. Le terme F_z peut alors être décomposé selon les trois variables r, θ et z et s'écrit :

$$F_z = R(r)\Theta(\theta)Z(z) \tag{3.19}$$

Cette décomposition permet de réécrire l'équation 3.18 en trois équations distinctes [108, 131]

$$\frac{\partial^2 R}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial R}{\partial r}+\left(\frac{\omega^2 n_{eff}^2}{c^2}-\frac{m^2}{r^2}\right)R=0 \tag{3.20}$$

$$\frac{\partial^2\Theta}{\partial\theta^2}+m^2\Theta=0 \tag{3.21}$$

$$\frac{\partial^2 Z}{\partial z^2}+\frac{\omega^2}{c^2}(n_{sc}^2-n_{eff}^2)Z=0 \tag{3.22}$$

où m est le nombre azimuthal qui caractérise le nombre de lobes du champ électromagnétique sur la périphérie du microdisque et n_{eff} l'indice effectif du guide vu par la lumière à l'intérieur du disque.

Le problème peut alors être résolu en deux temps. En premier lieu, nous considérerons la propagation perpendiculaire au microdisque, ce qui revient à traiter le problème d'un guide d'onde planaire infini et à résoudre l'équation 3.22. Cela nous permettra d'extraire l'indice effectif n_{eff} vu par la lumière : le microdisque ayant une épaisseur comparable à la longueur d'onde de la lumière, l'indice optique ne sera pas celui du semi-conducteur n_{sc} mais aura une valeur plus faible du fait de la pénétration du champ électromagnétique dans l'air. La deuxième partie consistera à traiter la propagation de la lumière dans le plan du microdisque. A partir de l'indice effectif calculé précédemment, nous pourrons résoudre les équations 3.20 et 3.21.

Le guide d'onde infini

Le problème du confinement de la lumière dans un milieu semi-conducteur ressemble fortement au problème du confinement d'un électron dans un puits quantique, à la différence près que le premier est vectoriel et le second scalaire. Nous ne présenterons ici que les résultats relatifs aux modes TE, le calcul pour les modes TM étant identique. Le champ électrique au sein d'un guide d'onde infini s'écrit :

$$E_z = E_0(z)e^{i(\omega t - k_x x)} \tag{3.23}$$

où k_x est la constante de propagation et vaut $k_x = \frac{\omega}{c} n_{eff} = k_0 n_{eff}$, k_0 étant le vecteur d'onde dans le vide.

De la même façon qu'il existe deux types de solutions au problème du puits quantique, les états confinés et les états libres, nous avons deux solutions ayant un sens physique pour l'équation 3.22, qui se traduisent par deux modes différents :

— *Les modes guidés*, où $k_x < k_0 n_{air}$, qui sont des modes où l'amplitude de l'onde a un comportement sinusoïdal dans le guide et décroit exponentiellement à l'extérieur.

— *Les modes de fuites* ($k_x > k_0 n_{air}$) où l'onde oscille sinusoïdalement en n'importe quel point de la structure et où la lumière s'échappe du guide.

La figure 3.5 schématise la propagation de lumière dans un guide d'onde infini (panneau (a)) ainsi que l'analogie pouvant être faite entre le guide et un puits quantique (panneaux (b) et (c)).

Les modes qui nous intéressent afin de déterminer l'indice effectif sont les modes guidés. Nous n'exposerons par la suite que le résultat final du problème, l'ensemble du traitement mathématique pouvant être trouvé dans la référence [124].

L'écriture du champ électrique E_z dans chaque partie de la structure, c'est-à-dire dans l'air et dans le semi-conducteur, ainsi que l'application des conditions de continuité aux interfaces permet de trouver les deux équations transcendantes du problème :

$$\frac{Ah}{2} = \frac{Bh}{2}\tan\left(\frac{Bh}{2}\right), \text{ pour les modes pairs} \tag{3.24}$$

$$\frac{-Ah}{2} = \frac{Bh}{2}\text{cotan}\left(\frac{Bh}{2}\right), \text{ pour les modes impairs} \tag{3.25}$$

où h est l'épaisseur du guide d'onde, $A = \sqrt{k_0^2 n_{eff}^2 - k_0^2 n_{air}^2}$ est la constante de propagation dans l'air et $B = \sqrt{k_0^2 n_{sc}^2 - k_0^2 n_{eff}^2}$ la constante de propagation dans le diélectrique. Notons que pour les modes TM, ces équations ne diffèrent que par l'ajout d'un coefficient multiplicateur qui vaut $\frac{\epsilon_0}{\epsilon_{sc}}$, où ϵ_0 et ϵ_{sc} sont respectivement les constantes diélectriques de l'air et du semi-conducteur.

Ces équations ne possèdent pas de solutions analytiques mais peuvent être résolues graphiquement, en remarquant que :

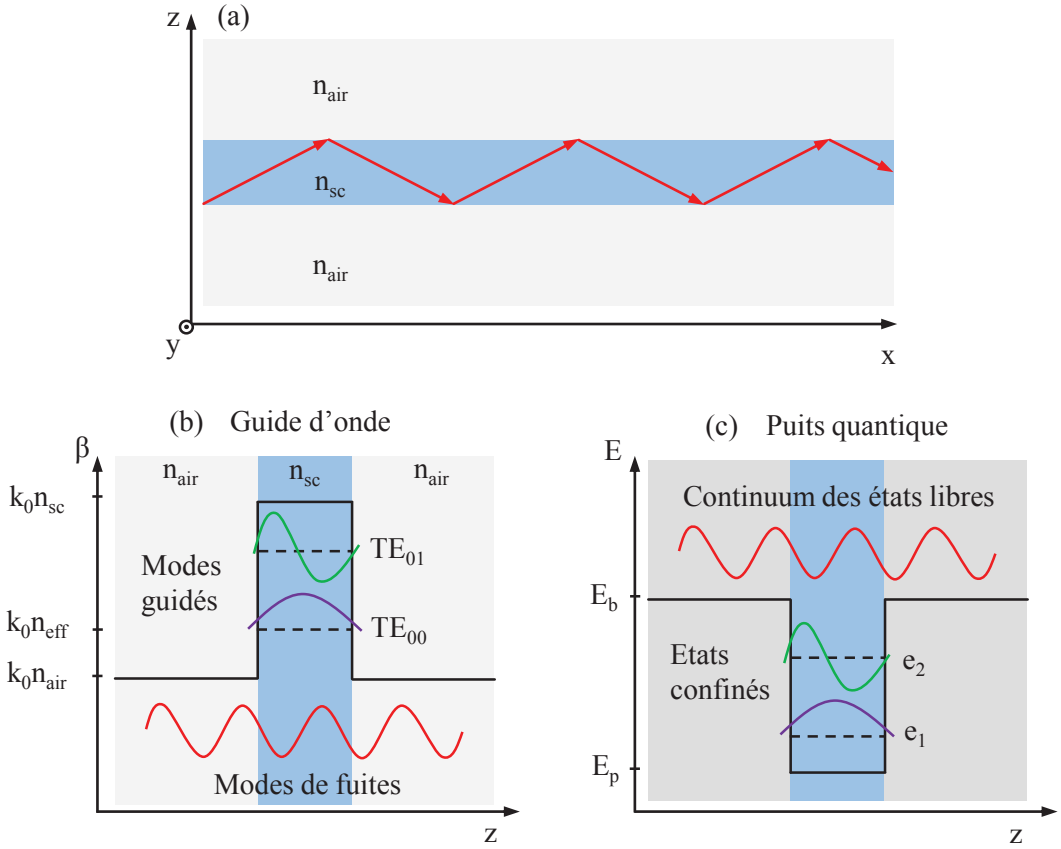


FIGURE 3.5 – *(a) Représentation schématique de la propagation de la lumière dans un guide d'onde infini dans une approche d'optique géométrique. (b) Représentation des modes guidés et des modes de fuites pour un guide d'onde dans une approche d'optique ondulatoire. (c) Représentation des états confinés et des états libres pour un puits quantique.*

$$\left(\frac{Ah}{2}\right)^2 + \left(\frac{Bh}{2}\right)^2 = \left(\frac{k_0 h}{2}\right)^2 (n_{sc}^2 - n_{air}^2) \tag{3.26}$$

La figure 3.6 (a) représente cette résolution graphique pour une épaisseur $h = 200\ nm$, qui correspond à l'épaisseur de certains de nos microdisques étudiés. En traçant les équations 3.24 à 3.26 en fonction de $\frac{Bh}{2}$ nous pouvons déterminer les indices effectifs correspondant aux modes TE. Chaque intersection avec le cercle de rayon $R_{tr} = \left(\frac{k_0 h}{2}\right)^2 (n_{sc}^2 - n_{air}^2)$ correspond à un mode TE et les couples $(A,\ B)$ associés à ces intersections permettent de calculer l'indice effectif vu par le mode étudié grâce aux relations entre n_{eff} et $(A,\ B)$:

$$n_{eff} = \frac{\sqrt{A^2 + k_0^2 n_{air}^2}}{k_0} = \frac{\sqrt{k_0^2 n_{sc}^2 - B^2}}{k_0} \tag{3.27}$$

Notons également que pour des disques de 200 nm d'épaisseur, il existe 4 modes confinés dans l'épaisseur, deux TE et deux TM.

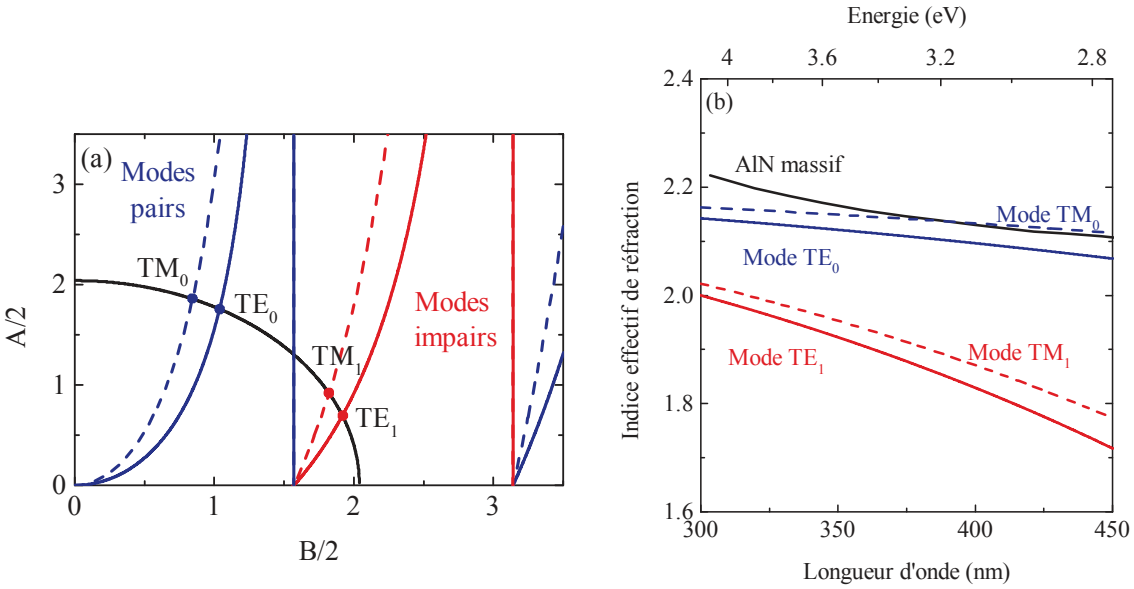


FIGURE 3.6 – *(a) Résolution graphique du problème du guide d'onde infini pour une épaisseur $h = 200\ nm$, $n_{sc} = 2,2$ et $k_0 = 2,1.10^7\ m^{-1}$ soit $\lambda = 300\ nm$. (b) Calcul des indices de réfraction effectifs pour les modes TM_0, TE_0, TM_1 et TE_1, en tenant compte de la dispersion d'indice n_{sc} d'AlN. Les données pour AlN massif proviennent de [53].*

La méthode de résolution graphique nous permet également de déterminer à partir de quelle valeur de l'épaisseur h la cavité ne sera plus mono-mode. La condition sur l'épaisseur pour l'existence d'un mode d'ordre l s'écrit [124] :

$$\frac{h}{\lambda_0} \geqslant \frac{l}{2\sqrt{n_{sc}^2 - n_{air}^2}} \tag{3.28}$$

soit une épaisseur inférieure à 115 nm pour $\lambda_0 = 300\ nm$.

Propagation dans le plan du microdisque

Après avoir déterminé l'indice de réfraction effectif, nous pouvons traiter le problème de la propagation dans le plan du microdisque à partir des équations 3.20 et 3.21.

La résolution de l'équation 3.21 se fait très simplement et les solutions s'écrivent sous la forme :

$$\Theta(\theta) = e^{im\theta} \tag{3.29}$$

avec m le nombre azimutal.

La dernière équation à résoudre nous renseigne sur la dépendance radiale des modes de galerie. Les solutions de 3.20 prennent deux formes différentes, selon que le champ est à l'intérieur du disque ou bien à l'extérieur [132] :

$$R(r) = J_m(k_0 n_{eff}), \text{ pour } r \leqslant d \tag{3.30}$$

$$R(r) = J_m(k_0 n_{eff}) e^{-\eta(r-d)}, \text{ pour } r > d \tag{3.31}$$

où J_m représente la fonction de Bessel d'ordre m, d le diamètre du microdisque et $\eta = k_0 \sqrt{n_{eff}^2 - n_{air}^2}$ est la constante d'atténuation.

Finalement, les modes de galerie d'un microdisque sont décrits par trois indices différents :

— *L'indice l, associé à la coordonnée z.* Il caractérise le nombre de modes TE et TM confinés selon l'épaisseur du microdisque.
— *L'indice m, associé à la coordonnée θ.* m rend compte du nombre de lobes du champ électromagnétique le long de la périphérie du disque. Pour une valeur donnée de m, il existe $2m$ lobes sur la périphérie du microdisque.
— *L'indice n, associé à la coordonnée r.* Ce dernier indice contient le nombre de lobes sur le rayon du disque.

L'ensemble des solutions établis précédemment pour le groupe d'équations 3.20 à 3.22 nous permet de tracer les modes d'un microdisque. Ces modes sont représentés sur la figure 3.7 pour un disque de rayon $R = 1,03\ \mu m$.

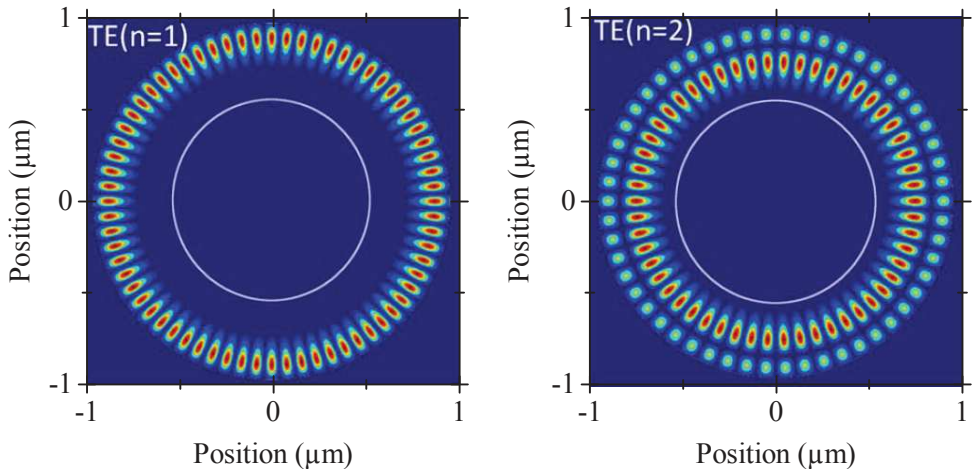


FIGURE 3.7 – *Représentation des modes TE_0 d'indices $n = 1$, $m = 33$ et $n = 2$, $m = 27$ pour un microdisque de diamètre $d = 2,06\ \mu m$. Le cercle blanc représente le pied du microdisque (figure extraite de [120]).*

3.2.4 Caractéristiques des modes de galerie

Facteur de qualité

L'une des grandeurs caractéristiques des modes de galerie est leur facteur de qualité. Il dépend directement du nombre de tour effectué par les photons dans le résonateur, et donc de leur temps de stockage dans ce dernier, et est défini à partir de la formule :

$$Q = \frac{\lambda_{mode}}{\Delta\lambda_{mode}} \tag{3.32}$$

où λ_{mode} est la longueur d'onde du mode de galerie et $\Delta\lambda_{mode}$ sa largeur à mi-hauteur.

Ce facteur de qualité, qui est limité par trois phénomènes différents, peut également s'écrire :

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{rad}} + \frac{1}{Q_{diff}} + \frac{1}{Q_{abs}} \tag{3.33}$$

Le terme Q_{rad} correspond au facteur de qualité intrinsèque du microdisque et est limité par l'échappement de la lumière par effet tunnel. Pour un microdisque de 2 μm, Q_{rad} est de l'ordre de 10^4 et peut monter jusqu'à 10^{15} car il varie exponentiellement avec le nombre azimutal m [108].

La diffusion des photons par des imperfections du microdisque est contenue dans le terme Q_{diff}. La principale cause de dégradation de Q_{diff} est la rugosité du microdisque. Pour des microdisques nitrures fabriqués avec le même procédé que ceux étudiés dans ce mémoire, le facteur de qualité lié à la diffusion atteint des valeurs de l'ordre de 10^4 [20].

Le dernier terme Q_{abs} tient compte de l'absorption de lumière par le microdisque et son piédestal ainsi que la couche active et vaut [133] :

$$Q_{abs} = \frac{2\pi n_{eff}}{\alpha\lambda} \tag{3.34}$$

où le terme α est l'absorption des différents matériaux sondés par le mode optique. Dans nos microdisques, l'absorption provient principalement du milieu actif et du pied en silicium et est d'autant plus importante que les modes sont spatialement proches de ce dernier. C'est essentiellement ce terme qui va limiter les valeurs des facteurs de qualité de nos microdisques.

Volume effectif

Le volume effectif V_{eff} d'un mode photonique quantifie le volume sur lequel le champ électromagnétique est confiné. Plus il est petit et plus l'interaction lumière-matière est importante. Il s'écrit comme [122] :

$$V_{eff} = \frac{\iiint n_{eff}^2(\mathbf{r})|\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 d^3\mathbf{r}}{n_{eff}^2|\mathbf{E}_{max}|^2} \tag{3.35}$$

où l'intégrale se fait sur tout l'espace et où $\mathbf{E}$ est le champ électrique du mode. Le maximum

du champ électrique est inversement proportionnel au volume effectif, la diminution de ce dernier exalte donc le couplage lumière-matière. L'un des avantages des microdisques réside dans la faible emprise spatiale des modes de galerie qui permet d'avoir des volumes effectifs ayant deux ou trois ordres de grandeurs de moins que la taille de la structure.

3.3 Fabrication des échantillons

La fabrication des microdisques utilisés dans nos travaux résulte de la collaboration avec l'équipe de F. Semond au CRHEA [2], où la croissance des couches actives a été réalisée, et celle de P. Boucaud à l'IEF [3], en charge de la fabrication des microdisques.

3.3.1 Croissance des couches actives

La réalisation d'un micro-laser passe avant tout par une couche active efficace à température ambiante et ayant un élargissement inhomogène aussi faible que possible. Ce dernier point est crucial afin d'avoir le plus d'émetteurs possible dans une plage spectrale restreinte et ainsi limiter la réabsorption de la lumière émise. Pour cette raison, nous avons choisi d'utiliser des puits quantiques GaN/AlN très fins, ayant une épaisseur nominale de 2,8 mono-couches de GaN. L'utilisation de composé binaire nous permet également de nous affranchir du désordre d'alliage qui génère un élargissement inhomogène, comme nous l'avons vu dans la partie 1.2.3.

Les échantillons sont crûs par EJM sur substrat silicium. La croissance débute par une couche tampon d'AlN ayant une épaisseur de 100 nm, crûe à 1000 $°C$. Elle se continue par la croissance de vingt puits quantiques de GaN d'épaisseur nominale $0,7$ nm intercalés entre des barrières en AlN de 5 nm crûes à 800 $°C$.

La figure 3.8 présente plusieurs micrographies d'un échantillon à vingt puits quantiques GaN/AlN. Le panneau (a) présente une vue du dessus de l'échantillon au microscope électronique à transmission où les points rouges pointent les dislocations traversantes. Une étude statistique en plusieurs points de l'échantillon révèle que la densité de ces dislocations est de l'ordre de 8.10^{10} cm^{-2}. Le panneau (b) est une image de la surface en AlN de l'échantillon au microscope à force atomique. Cette image permet de distinguer clairement les terrasses et marches atomiques, entourées en rouge. Elle nous permet également d'établir la rugosité de surface, qui est de l'ordre de $0,2$ nm. Une image en coupe au microscope électronique constitue le panneau (c). Nous pouvons voir la zone active et la couche tampon d'AlN, ainsi que les nombreuses dislocations traversantes. Un zoom sur la couche active est présenté sur le panneau (d). Cette micrographie, faite au microscope électronique à transmission permet de mettre en évidence une interface très marquée entre les matériaux GaN et AlN, signe qu'il n'y a pas eu d'interdiffusion entre le GaN et l'AlN. Nous pouvons également observer une légère fluctuation dans l'épaisseur, comprise entre deux et quatre mono-couches. Nous verrons cependant dans la suite (figure 3.15), à l'aide

2. Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications, situé à Valbonne
3. Institut d'Electronique Fondamentale, situé à Orsay

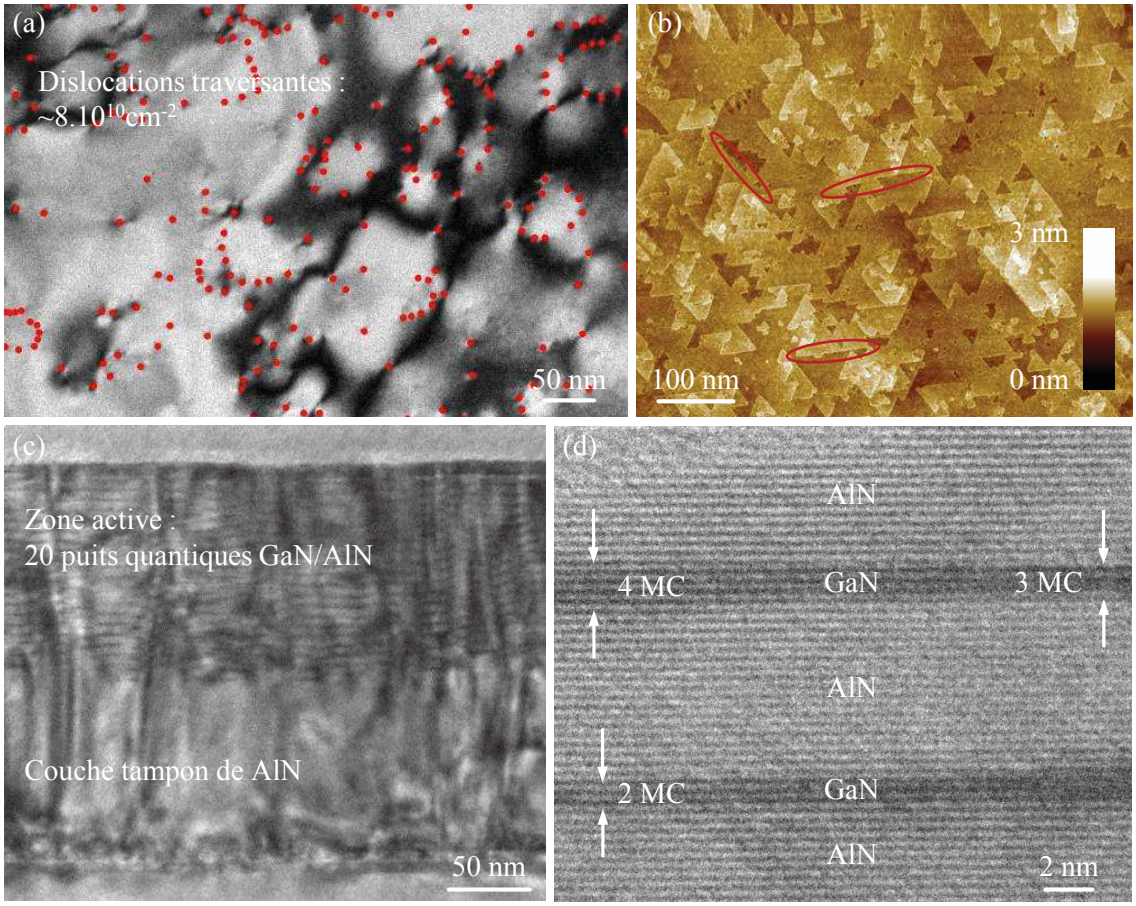


FIGURE 3.8 – *(a) Micrographie au microscope électronique à transmission de la surface de l'échantillon à vingt puits quantiques GaN/AlN. Les points rouges représentent les dislocations traversantes. (b) Micrographie au microscope à force atomique. (c) Micrographie en coupe au microscope électronique à transmission. (d) Micrographie en coupe au microscope électronique à transmission. L'ensemble des images a été réalisé par M. Mexis et P. Vénnéguès au CRHEA.*

d'expériences de cathodoluminescence, que les zones où les puits quantiques ont une épaisseur de 4 mono-couches sont peu nombreuses.

3.3.2 Fabrication des microdisques

La figure 3.9 schématise les principales étapes de fabrication de nos microdisques, effectuées par Iännis Roland à l'IEF.

En premier lieu, nous déposons une couche de SiO_2 par dessus laquelle une photo-résine vient définir les contours du microdisque. Une partie du masque en SiO_2 est retirée par une gravure aux ions réactifs alors que les matériaux nitrures superflus sont gravés par plasma chloré à couplage inductif. La résine et le SiO_2 sont gravés à l'acide fluorhydrique (HF) et une partie du silicium est ensuite retirée avec du difluorure de xénon pour former le piédestal sur lequel repose le microdisque. Les microdisques étudiés ont un diamètre compris entre 2 μm et 12 μm

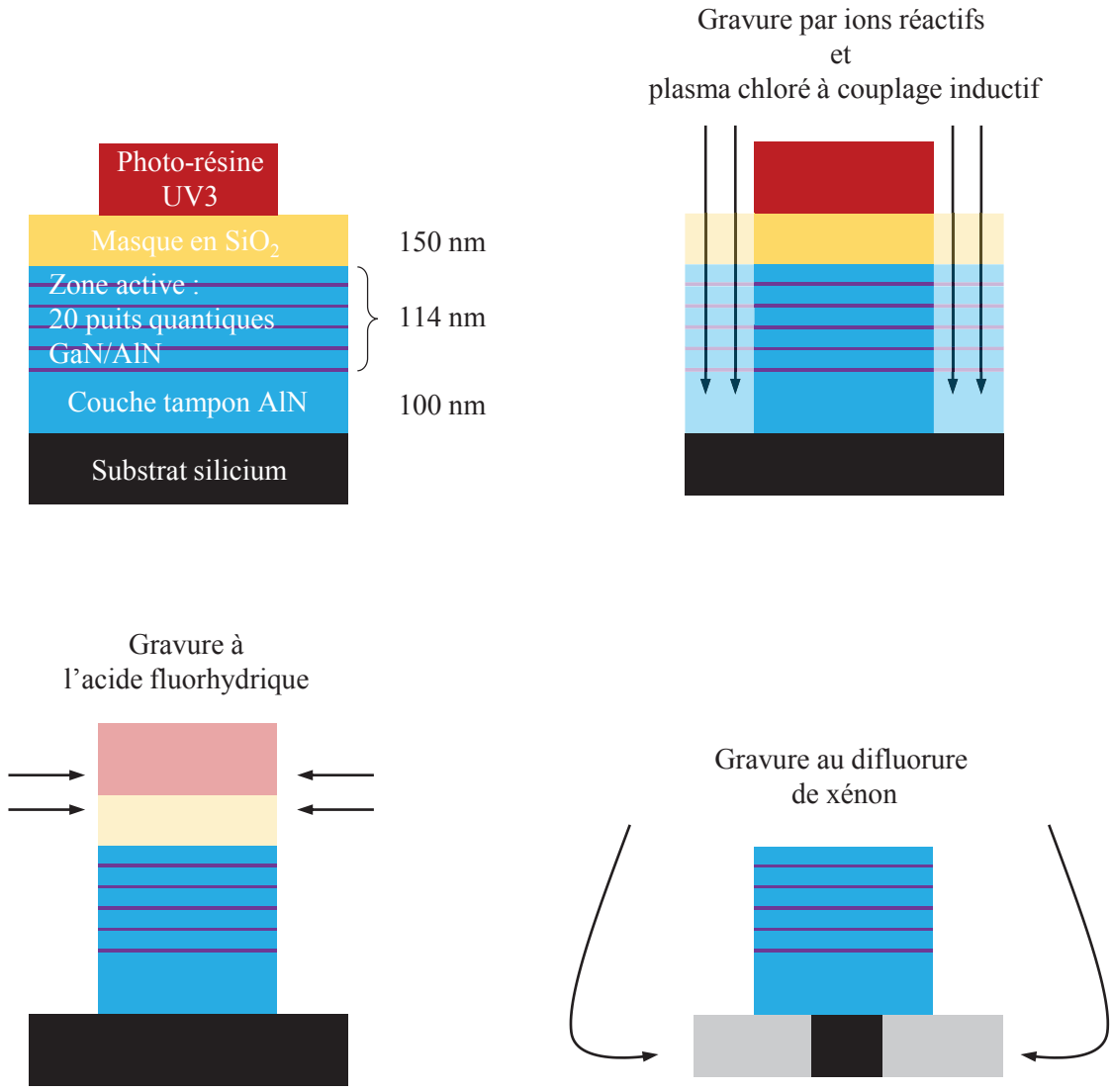


FIGURE 3.9 – *Schéma des différentes étapes du processus de fabrication effectuées par I. Roland (IEF) lors de la réalisation des microdisques.*

et le diamètre moyen des pieds est de 1 μm pour les microdisques ayant un diamètre inférieur à 6 μm, 4 μm pour les autres. Cette différence provient du temps de sous-gravure du silicium qui n'est pas le même pour tous les disques.

La figure 3.10 présente deux microdisques de différents diamètres vus au microscope électronique à balayage. Les panneaux (a) et (b) présentent respectivement un microdisque de 8 μm et de 3 μm de diamètre. Le panneau (c), qui est un zoom sur le bord du microdisque présenté sur la micrographie (b), permet de mettre en évidence la faible rugosité sur les bords de nos microdisques ainsi qu'une légère inclinaison des flancs.

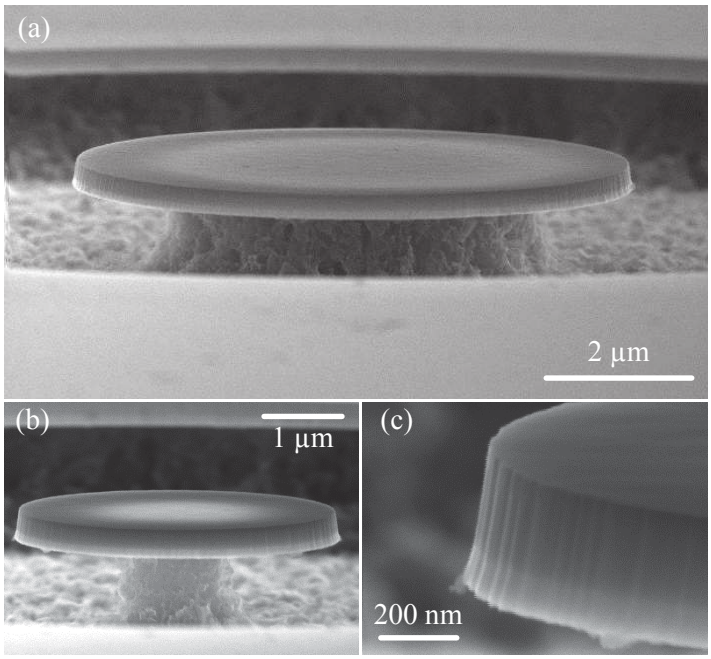


FIGURE 3.10 – *Micrographie au microscope électronique au balayage d'un disque de* 8 μm *de diamètre (a) et* 3 μm*. (c) Zoom sur le bord du microdisque présenté en (b). Les images ont été réalisées par I. Roland à l'IEF.*

3.4 Études des propriétés optiques linéaires

Nous présentons dans cette section les propriétés optiques linéaires de notre couche active ainsi que celles de nos microdisques. Nous présenterons également le dispositif expérimental de détection par la tranche utilisé pour l'étude des microdisques. Lorsque les résultats présentés ont été obtenus par d'autres membres de la collaboration, l'information est indiquée dans la légende.

3.4.1 Caractérisation de la couche active

En vue de réaliser un micro-laser opérant à température ambiante, les propriétés optiques de la couche active sont d'une importance capitale. En plus de l'élargissement inhomogène qui doit être aussi faible que possible pour ne pas limiter le gain accessible, l'effet du champ électrique interne doit être minimisé et l'émission de lumière à 300 K doit être suffisamment importante. Cette dernière condition peut s'avérer compliquée à réaliser compte tenu de la densité de défauts de notre couche qui atteint les 8.10^{10} cm^{-2}.

Estimation de l'efficacité quantique interne

La figure 3.11 présente l'évolution de la luminescence de vingt puits quantiques GaN/AlN en fonction de la température. L'émission de l'échantillon est centrée à $4,40$ eV à température ambiante et présente un élargissement inhomogène de l'ordre de 260 meV. Comparée aux échan-

tillons à boîtes quantiques qui émettent sur environ 2 eV, la largeur à mi-hauteur de l'émission des puits quantiques laisse espérer une augmentation considérable du gain potentiel.

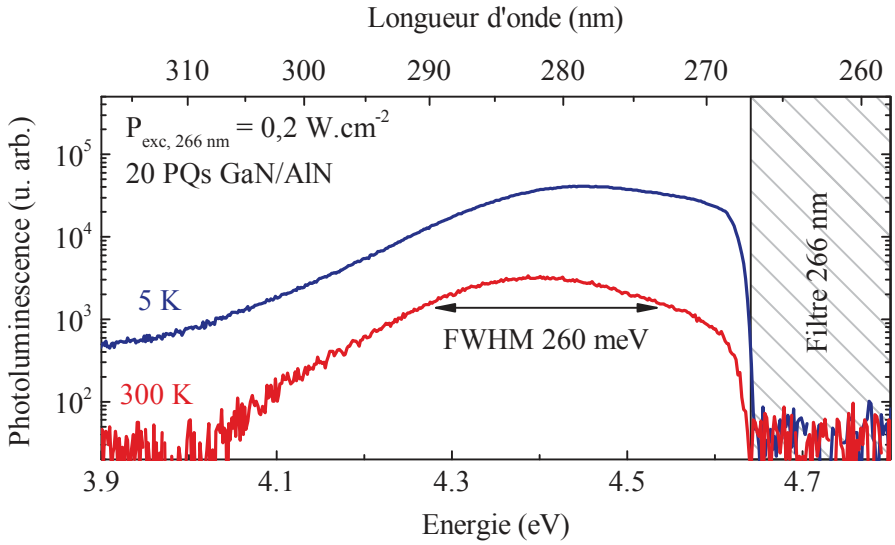


FIGURE 3.11 – *Spectres de photoluminescence à 5 K et 300 K d'un échantillon à vingt puits quantiques GaN/AlN. Les mesures ont été réalisées par B. Gayral à l'INAC à l'aide d'un laser impulsionnel femtoseconde à 266 nm.*

Afin de caractériser au mieux nos échantillons, il est important de connaitre l'efficacité quantique interne. L'estimation de l'EQI peut paraitre simple au premier abord, puisqu'elle est définie comme étant le rapport entre le nombre de photons émis et le nombre de paires électron-trou crées, mais présente quelques subtilités dans les faits. Habituellement, elle est calculée comme le rapport entre l'intensité émise à $300K$ et celle à $5K$, en supposant que la contribution des défauts non-radiatifs est nulle aux températures cryogéniques. Cette estimation nécessite que l'émission collectée soit proportionnelle à la puissance d'excitation, ce qui n'est pas le cas dans nos expériences puisque nous ne collectons pas la totalité de la lumière émise par les puits quantiques. L'EQI dépend également de la longueur d'onde du laser d'excitation car l'absorption des puits quantique n'est pas la même si le laser est en résonance avec la transition ou non. Nous avons présenté sur le panneau (a) de la figure 3.12 l'évolution de l'intensité émise normalisée à la puissance d'excitation en fonction de la température. Ce traitement nous permet de passer outre le problème de collection de lumière et d'avoir une limite haute pour l'EQI.

Nous pouvons voir que jusqu'à $150K$, l'intensité de luminescence reste stable et augmente d'un facteur deux lorsque la puissance d'excitation augmente de trois décades. Cette augmentation traduit une saturation des canaux non-radiatifs lorsque la puissance d'excitation augmente, ce qui entraine une amélioration de l'efficacité d'émission. Au-delà de $150K$, l'intensité de luminescence diminue, signe que les processus non-radiatifs prennent le dessus sur la recombinaison radiative. Ceci est dû à l'agitation thermique qui augmente la diffusion des excitons du puits vers des défauts structuraux.

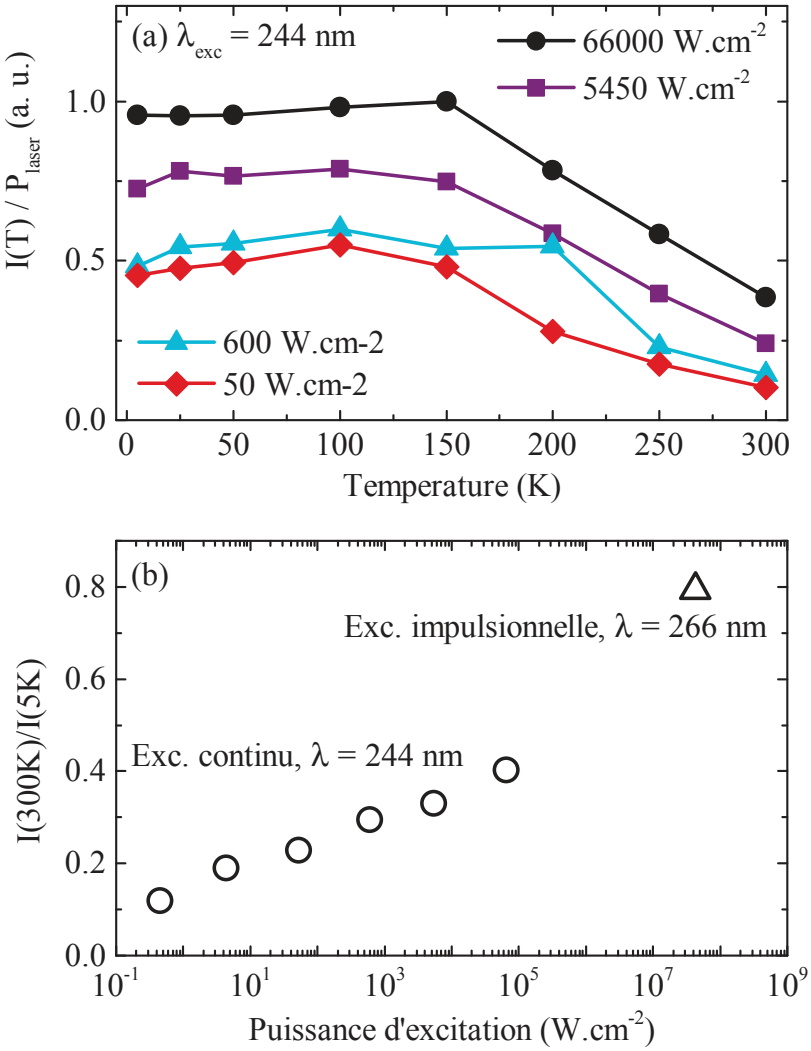


FIGURE 3.12 – *(a) Intensité intégrée de la photoluminescence de l'échantillon à vingt puits quantique GaN/AlN en fonction de la température, normalisée par la puissance d'excitation. (b) Valeur de l'IQE en fonction de la puissance d'excitation. Les mesures ont été prises par B. Gayral à l'INAC à l'aide d'un laser continu émettant à 244 nm, excepté le point du panneau (b) réalisé sous excitation impulsionnelle à 266 nm, qui a été pris au laboratoire Charles Coulomb.*

L'étude de l'EQI de notre échantillon en fonction de la puissance, tracée sur le panneau (b), révèle des valeurs allant de 10 % à 80 % d'efficacité à température ambiante. Ces points sont mesurés sous excitation continu à 244 *nm*, excepté le point triangulaire qui correspond à la puissance d'injection la plus importante accessible et qui est réalisé sous excitation impulsionnelle à 266 *nm*. L'EQI n'est donc pas une propriété intrinsèque de l'échantillon mais dépend de plusieurs paramètres comme la puissance d'excitation ou la longueur d'onde du laser utilisé.

Influence du champ électrique interne

L'étude de la photoluminescence des puits quantiques pour plusieurs puissances d'excitation est présentée figure 3.13.

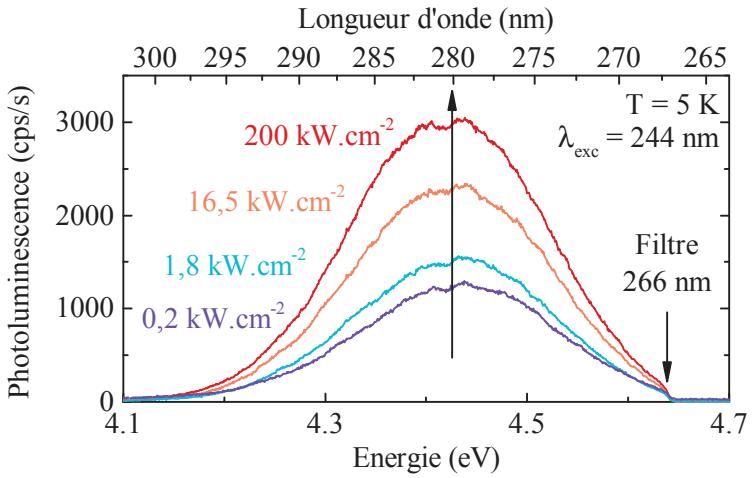


FIGURE 3.13 – *Spectres de photoluminescence pour plusieurs puissances d'excitation. Les mesures ont été réalisées par B. Gayral à l'INAC à l'aide d'un laser continu émettant à* 244 *nm et focalisé sur l'échantillon sur un diamètre d'environ* 100 μm.

Nous pouvons voir qu'en augmentant la puissance d'excitation de trois décades, le signal de photoluminescence ne se décale pas vers les hautes énergies comme c'est le cas pour les boîtes quantiques. L'absence de décalage vers le bleu montre que les puits quantiques sont suffisamment fins pour que le champ électrique interne n'affecte pas la force d'oscillateur de la transition excitonique.

Photoluminescence résolue temporellement

En vue d'étudier la dynamique d'émission ainsi que l'influence du champ électrique interne, nous avons réalisé des expériences de photoluminescence résolue en temps en fonction de la température (figure 3.14). L'excitation de l'échantillon se fait avec la quatrième harmonique du laser titane-saphir à 200 $nm/6,2\ eV$, afin d'exciter au mieux les puits quantiques, et avec un taux de répétition de 4 MHz. Ces expériences sont complémentaires à celle présentée dans la publication en cours, réalisée par B. Gayral sous excitation à 266 nm.

Le panneau (a) nous permet d'observer que temporellement, la luminescence des puits quantiques ne se décale pas vers le rouge, ce qui confirme que l'effet Stark quantique confiné a une influence négligeable sur la force d'oscillateur de la transition exctonique et corrobore donc les résultats présentés figure 3.13. Les courbes rouge et noire du panneau (b) présentent respectivement l'intensité intégrée entre 0 ps et 500 ps et entre $0,5\ ns$ et $1,75\ ns$. La courbe rouge est associée à l'émission de lumière depuis les puits quantiques, alors que celle en noir provient vraisemblablement des vacances d'azote dans les couches de nitrure d'aluminium [134].

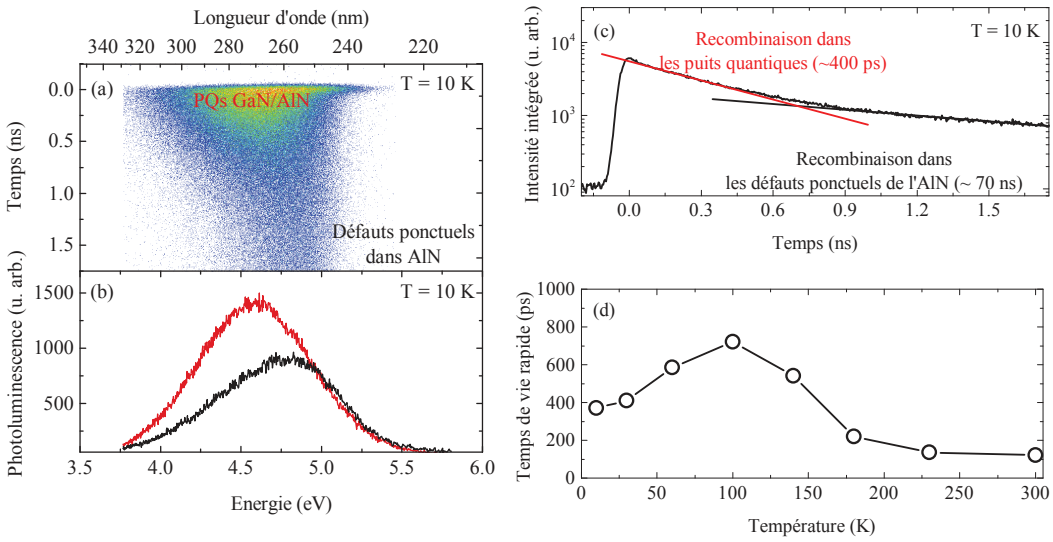


FIGURE 3.14 – *(a) Image d'un déclin de photoluminescence de vingt puits GaN/AlN obtenue à la caméra à balayage de fentes. (b) Photoluminescence des puits quantiques, en rouge, et des défauts ponctuels dans l'AlN, en noir. La courbe rouge est intégrée temporellement entre* 0 *ps et* 500 *ps, celle en noir entre* $0,5$ *ns et* $1,75$ *ns. (c) Déclin de photoluminescence intégré sur toute la plage spectrale disponible. (d) Temps de vie des excitons dans les puits quantiques en fonction de la température. Les mesures sont réalisées à l'aide de la quatrième harmonique (*200 *nm) d'un laser titane-saphir ayant un taux de répétition de* 4 MHz.

Le panneau (c) présente le déclin de photoluminescence à $T = 10\ K$, intégré sur toute la plage spectral disponible. Ce déclin est bi-exponentiel, la composante rapide est associée à la recombinaison radiative des excitons dans les puits quantiques et la composante lente provient de l'émission de lumière des excitons piégés par des vacances d'azote. L'ajustement de la courbe expérimentale est faite à partir de l'équation 2.1. A basse température, le temps de vie des excitons dans le puits est de l'ordre de 400 ps, signe que la force d'oscillateur de la transition n'est pas affectée par le champ électrique interne [84]. Ce temps est identique à celui mesuré par B. Gayral sous excitation à 266 nm.

L'étude en température de la composante rapide est présentée sur le panneau (d). Nous pouvons voir que le temps de vie des excitons augmente linéairement jusqu'à 100 K pour ensuite chuter brutalement. L'augmentation linéaire du temps de déclin de photoluminescence peut être comprise en considérant les excitons comme des excitons purement bi-dimensionnels. D'après le modèle développé par Andreani *et al.*, le temps de vie d'excitons libres dans un puits quantique est proportionnel à la température, à cause de la population d'excitons dont le vecteur d'onde est supérieur à $\frac{2\pi n_{sc}}{\lambda}$ et qui se trouvent en dehors du cône de lumière à température ambiante [68]. L'observation de ce comportement a déjà été réalisée dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs [135], ainsi que dans des matériaux à grand gap comme des puits ZnO/ZnMgO [136] ou GaN/AlGaN [137]. A première vue, cette interprétation peut sembler

contradictoire car jusqu'à 150 K l'intensité de luminescence reste constante (figure 3.12 (a)), signe que les excitons ne diffusent pas vers des centres de recombinaison non-radiatifs et sont donc localisés, alors que l'augmentation linéaire du temps de vie ne peut-être comprise qu'en considérant des excitons libres de se propager. Les travaux de Béaur *et al.* sur des puits quantiques ZnO/ZnMgO ont montré le contraire, en étudiant la dépendance en température de l'émission des excitons libres et localisés. Une augmentation de température a pour conséquence de dépiéger les excitons localisés, créant ainsi une population d'excitons libres. Finalement, la somme des intensités de photoluminescence des excitons libres et localisés reste constante jusqu'à 300 K [136]. Cette étude a pu être réalisée grâce aux faibles largeurs de raies, de l'ordre de 15 meV, permettant d'isoler spectralement les excitons libres et localisés. Dans notre cas, l'augmentation linéaire du temps de vie radiatif avec la température peut-être expliquée en supposant que l'élargissement inhomogène est beaucoup plus important que la séparation en énergie entre excitons libres et localisés. Au-delà de 150 K, la décroissance du temps de déclin associé aux puits quantique corrobore ce que nous avons pu observer avec l'intensité de luminescence (figure 3.12 (a)). L'augmentation de la température accélère la diffusion des excitons vers des défauts non-radiatifs, de sorte qu'elle soit plus rapide que le temps de recombinaison des excitons.

Expériences de cathodoluminescence

Bien que l'EJM permette de contrôler le dépôt de matière à la mono-couche près, des fluctuations d'épaisseurs peuvent apparaitre localement contribuant ainsi à une augmentation de l'élargissement inhomogène. Habituellement, la caractérisation de ces fluctuations passe par des études poussées de microscopie électronique. Ces techniques présentent le désavantage d'être très lourdes en termes de préparation d'échantillons, qui peuvent prendre jusqu'à une journée. Des techniques alternatives, comme la cathodoluminescence, ne nécessitent pas de préparations particulières et ont de bien meilleures résolutions spatiales que celles accessibles avec une expérience de photoluminescence.

La figure 3.15 présente un spectre de photoluminescence sur des boîtes quantiques GaN/AlN (panneau (a)) et plusieurs spectres de cathodoluminescence, pris à différents endroits de l'échantillon, d'un puits quantique GaN/AlN similaire à l'échantillon à vingt puits quantiques (panneau (b)). Les panneaux (c) et (d) sont des cartographies effectuées en cathodoluminescence de 1 μm par 1 μm pour respectivement la transition à 4 mono-couches/$4,2$ eV et celle à 3 mono-couches/$4,4$ eV.

Le panneau (a) permet d'associer énergie d'émission et hauteur de boîtes. Comme le confinement latéral ne modifie que peu les niveaux d'énergie dans une boîte quantique nitrure, nous pouvons comparer ces derniers avec les niveaux d'un puits quantique. Nous pouvons voir sur le panneau (b) que l'énergie d'émission dominante est celle associée à des puits de 3 mono-couches de hauteur ainsi qu'une faible contribution de la transition reliée à des puits quantiques de 4 mono-couches. Cette impression est confirmée grâce aux cartographies de cathodolumines-

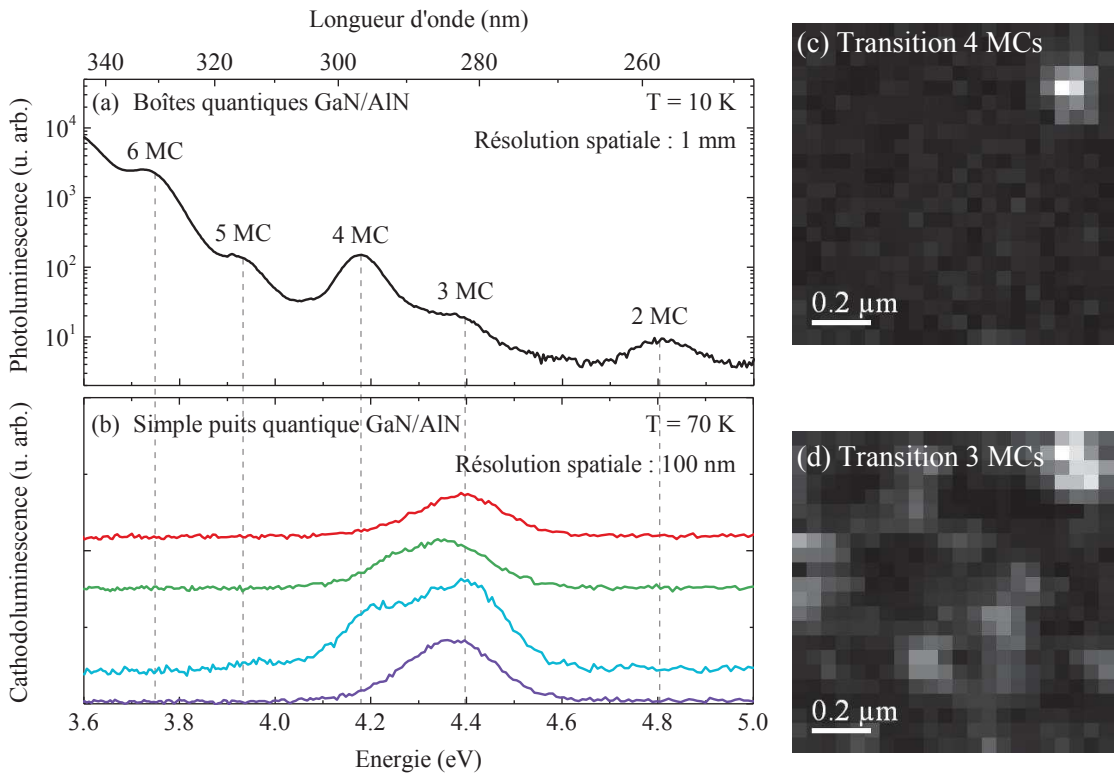


FIGURE 3.15 – *(a) Spectre de photoluminescence à 10 K d'un échantillon à un seul plan de boîtes quantiques GaN/AlN. (b) Spectres de cathodoluminescence en différents points de l'échantillon à un puits quantique GaN/AlN, pris à 70 K. (c) Cartographie de la transition à 4 mono-couches faite en cathodoluminescence. (d) Cartographie de la transition à 3 mono-couches faite en cathodoluminescence. Ces mesures ont été réalisées par M. Mexis au CRHEA.*

cence présentées sur les panneaux (c) et (d). Nous pouvons voir que sur une surface de 1 μm^2, l'émission associée à des puits de 4 mono-couches d'épaisseur est beaucoup moins importante que celle associée à des puits quantiques de 3 mono-couches. L'élargissement inhomogène de nos échantillons provient donc essentiellement de la localisation des excitons dans le plan des puits de 3 mono-couches d'épaisseur et non à une fluctuation d'épaisseur puisqu'aucun spectre de cathodoluminescence ne révèle d'émission de structures ayant une hauteur de 5 ou 6 mono-couches. Il est également intéressant de noter que la largeur à mi-hauteur moyenne de l'émission d'un seul puits quantique mesurée en cathodoluminescence est de l'ordre de 260 meV, valeur similaire à celle observée pour l'échantillon à vingt puits et présentée figure 3.11. Les fluctuations d'épaisseur d'un puits à l'autre dans l'échantillon à vingt puits quantiques sont donc négligeables en terme d'élargissement inhomogène.

3.4.2 Caractérisation des microdisques GaN/AlN

Particularités du dispositif expérimental pour les microdisques

Excitation

Le dispositif de micro-photoluminescence (Annexe A) utilisé nous permet de focaliser le faisceau laser sur une zone d'environ 1 μm^2. En regard des surfaces des microdisques étudiés, qui vont de 7 μm^2 à 310 μm^2, l'utilisation optimale du microscope (figure 3.16 (a)) ne nous permet pas d'exciter de façon homogène l'ensemble des structures photoniques. Afin d'élargir la taille du faisceau sur l'échantillon deux possibilités s'offrent à nous :

— La façon la plus simple consiste à changer la position de l'objectif de microscope par rapport à l'échantillon. Cette méthode, représentée sur le panneau (b) de la figure 3.16, a pour inconvénient de défocaliser également l'image en lumière blanche ce qui ne nous permet pas d'avoir une visualisation claire des microdisques.

— L'élargissement du faisceau laser sur l'échantillon peut également passer par la préparation du faisceau en amont de l'objectif. Pour cela, il suffit de changer la position de la première lentille de l'élargisseur, présenté en annexe A, de façon à ce que le plan conjugué de l'échantillon ne soit plus au foyer image de L_1 (panneau (c)). Ainsi, nous obtenons un faisceau laser défocalisé sur l'échantillon tout en conservant une lumière blanche focalisée pour garder la visualisation des microdisques.

En choisissant cette dernière, la tâche d'excitation laser a un diamètre d'environ 14 μm, ce qui nous permet d'exciter de façon homogène les microdisques ayant un diamètre compris entre 2 et 14 μm.

Détection

L'émission de lumière provenant des microdisques se faisant par la tranche, nous devons apporter quelques modifications au montage de micro-photoluminescence classique qui ne permet que la détection par le haut. Le montage présenté figure 3.17 schématise la détection utilisée.

La lentille qui collecte la lumière a une ouverture numérique de $0,16$ et est placée à distance focale de l'échantillon, soit 75 mm, pour avoir un faisceau parallèle en sortie. L'ensemble de la chaine de détection est inclinée d'un angle α, adapté au diamètre de la lentille de collection, afin de récolter le maximum de lumière émise par le microdisque. Le signal émis passe ensuite par un polariseur de Glan-Taylor, qui permet de séparer la lumière polarisée TE, où le champ électrique est perpendiculaire au plan du disque, et TM, dont le champ électrique oscille dans le plan du disque. Le signal TE est transmis alors que celui polarisé TM est réfléchi. Il est crucial de travailler avec un faisceau parallèle en entrée du cube séparateur car un faisceau convergent ou divergent introduit un fort astigmatisme en sortie du polariseur. Les signaux sont ensuite collectés par deux lentilles et sont focalisés sur une fibre optique multi-coeur. Aux longueurs d'ondes où nous travaillons, les variations d'indices optiques sont très importantes. Les deux voies présentent ainsi une forte dispersion spatiale de la luminescence en fonction

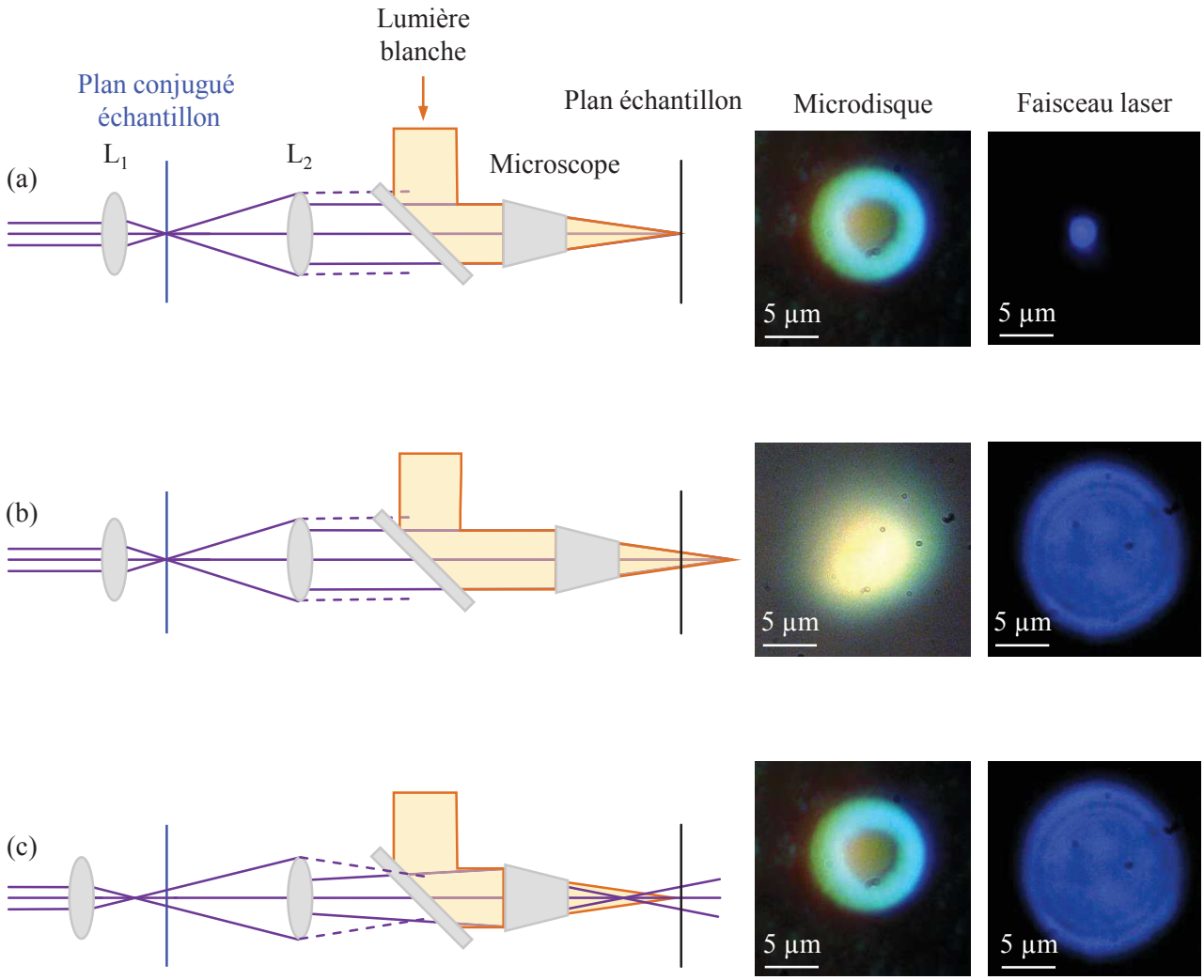


FIGURE 3.16 – *Schéma du système optique de préparation du faisceau d'excitation. (a) Cas idéal où l'objectif de microscope est utilisé de façon optimale pour obtenir un spot de diamètre* 1 μm. *(b) Cas où le spot d'excitation a un diamètre d'environ* 10 μm *et où la visualisation en lumière blanche est défocalisée. (c) Cas où le spot du faisceau laser a un diamètre d'environ* 10 μm *et où la visualisation en lumière blanche est focalisée.*

de sa longueur d'onde, analogue à un effet de décomposition spectrale par un prisme. Nous ne pouvons pas récolter toutes les longueurs d'ondes et la plage spectrale valide est d'environ 10 $nm/200\ meV$. La fibre optique utilisée a quatre entrées indépendantes et quatre sorties régulièrement espacées le long de la fente d'entrée du spectromètre. Le diamètre total est de 200 μm. Nous pouvons donc étudier la lumière polarisée TE et TM en même temps, en définissant deux zones différentes sur notre caméra CCD. Ceci est très important pour une étude pertinente des propriétés de polarisation de la lumière émise par un microdisque. En effet, comme nous le verrons dans la partie consacrée aux propriétés optiques non-linéaires des microdisques, des problèmes de thermique liés au laser d'excitation font que l'épaisseur ou la forme du disque

peuvent potentiellement changer. Or, le changement d'épaisseur introduit un changement sur la polarisation des modes de galerie. En effectuant les mesures au même moment dans les deux polarisations, nous nous affranchissons de ce problème, et nous pouvons alors comparer les mesures en polarisation TE avec celles en polarisation TM.

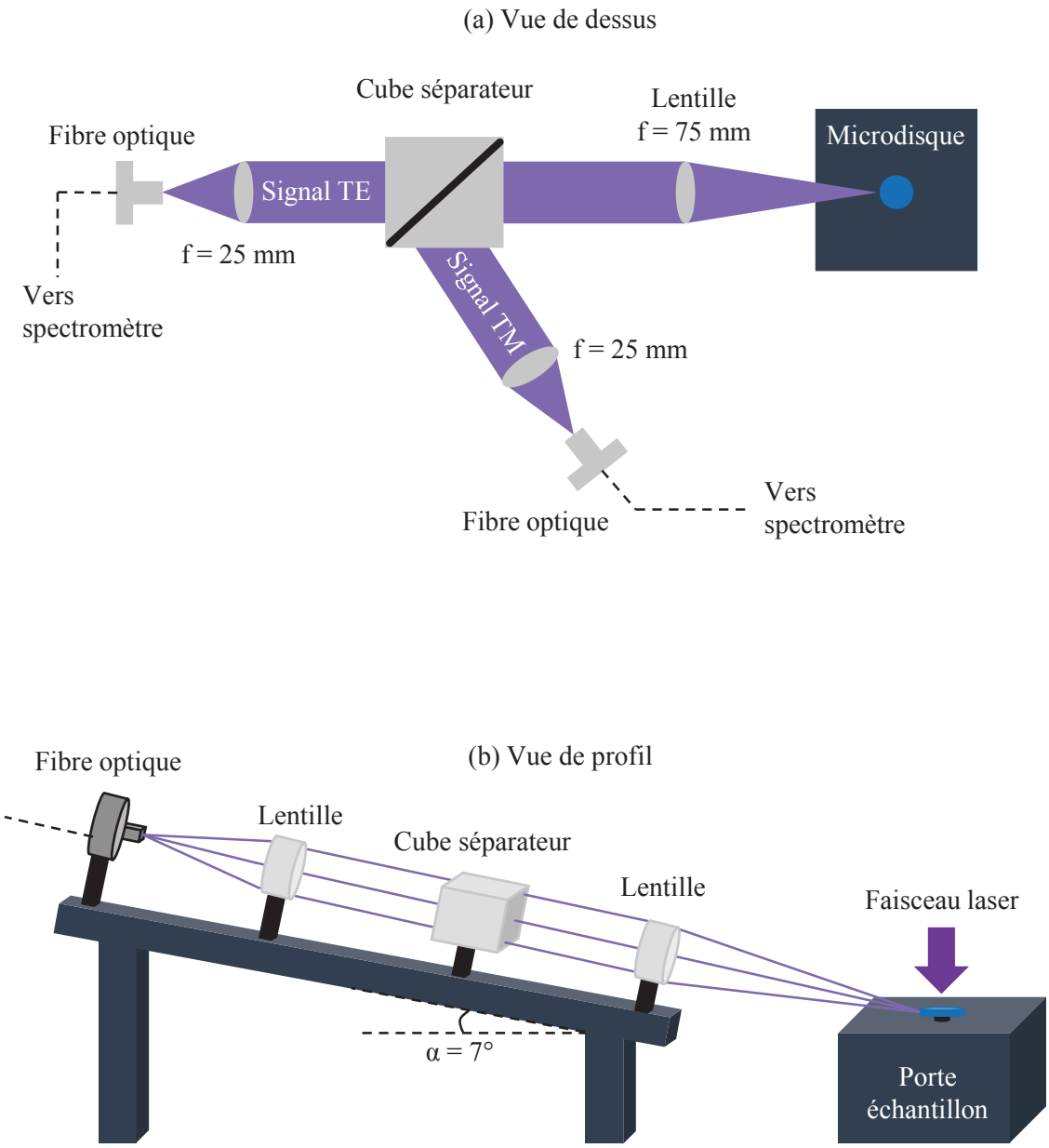


FIGURE 3.17 – *Schéma du dispositif expérimental de détection par la tranche. (a) Vue de dessus, (b) vue de profil.*

3.4.3 Spectroscopie des microdisques

Comme nous l'avons précédemment vu, la capacité d'une microcavité optique à confiner la lumière en son sein est caractérisée par le facteur de qualité de ses modes optiques. Afin d'étudier les propriétés des modes de galerie de nos microdisques, nous utilisons la luminescence des puits quantiques comme sonde.

Variation du facteur de qualité en fonction de l'énergie

La figure 3.18 présente un spectre de photoluminescence d'un microdisque de 3 μm de diamètre, réalisé à température ambiante. Chaque pic correspond à un mode de galerie et les courbes rouges, indiquées par une flèche, sont des ajustements gaussiens de ces modes.

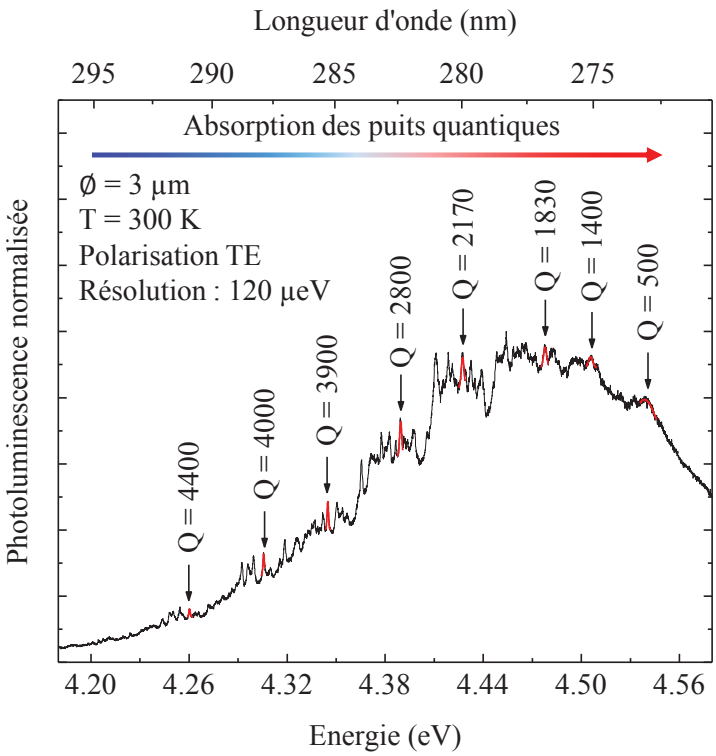


FIGURE 3.18 – *Spectre de photoluminescence d'un microdisque de 3 μm de diamètre. Le laser utilisé est un laser continu émettant à $4,6$ $eV/266$ nm et le réseau utilisé possède 3600 traits/mm, permettant une résolution de 120 μeV. Le signal collecté est le signal polarisé TE. Les courbes rouges représentent les ajustements des modes de galerie à l'aide d'une fonction gaussienne. Les facteurs de qualité associés à chaque mode sont inscrits au-dessus.*

A partir de ces ajustements, nous pouvons calculer le facteur de qualité associé à chaque mode, comme indiqué sur la figure 3.18. Nous pouvons voir qu'à basse énergie les facteurs de qualité ont des valeurs relativement élevées pour des systèmes nitrures, de l'ordre de 4000, restant cependant éloignées des valeurs mesurées dans des microdisques arséniures, qui atteignent les 10^5 [138]. A l'image de ce qui a été observé pour des boîtes quantiques GaN/AlN, figure 3.1 et 3.2,

les valeurs des facteurs de qualité chutent brutalement lorsque l'énergie augmente. La principale cause de cette dégradation est l'absorption des puits quantiques à haute énergie ainsi que la queue basse énergie de l'absorption des différents états électroniques de l'AlN qui ne sont plus négligeables aux énergies auxquelles nous travaillons.

Notons enfin qu'il est impossible d'indexer avec certitude les modes de galerie. Comme nous l'avons vu dans la partie 3.2.3, l'épaisseur des microdisques fait que nous avons deux modes TE et deux modes TM, chacun possédant des modes radiaux n et azimutaux m. Le fait que nos structures soient multi-modes dans l'épaisseur ne nous permet donc pas d'attribuer des valeurs propres de n et m à chaque pic observé.

Dépendance du facteur de qualité en fonction du diamètre

Le facteur de qualité étant proportionnel au temps de stockage des photons dans la microcavité, nous nous attendons à ce que les valeurs de Q augmentent avec le diamètre des microdisques. La figure 3.19 (a) présente des spectres de photoluminescence, obtenus à l'aide d'un laser continu émettant à 266 nm, pour plusieurs diamètres de microdisques.

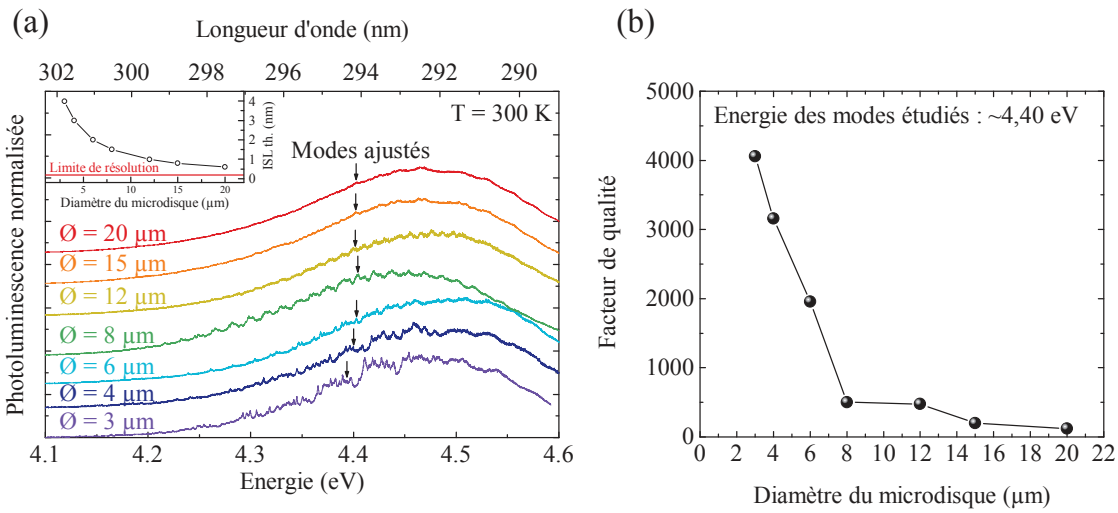


FIGURE 3.19 – *(a) Spectres de photoluminescence, sous excitation continue à 266 nm, pour plusieurs microdisques ayant des diamètres différents. L'encart présente les valeurs de l'intervalle spectral libre théorique pour les modes azimutaux TE_0, d'ordre radial $n = 1$ en fonction du diamètre du disque aux alentours de $\lambda = 295$ nm, obtenues à partir de l'équation 3.12. La ligne rouge représente la limite de résolution de notre spectromètre. (b) Facteur de qualité en fonction du diamètre des microdisque pour un mode de galerie situé aux alentours de $4,4$ eV (294 nm).*

Nous pouvons voir que plus le diamètre du microdisque augmente et plus les modes semblent s'élargir spectralement. Le panneau (b) présente les valeurs du facteur de qualité Q en fonction du diamètre pour les modes de galerie aux alentours de $4,4$ eV (294 nm) et indiqués par une flèche sur le panneau (a). Les facteurs de qualité sont obtenus à l'aide d'un ajustement gaussien de chaque mode et nous pouvons voir que plus le diamètre augmente et plus la valeur de Q chute.

En réalité, il ne s'agit pas d'un élargissement des modes, mais d'une superposition d'un nombre trop important de modes de galerie pour être résolus spectralement, même avec notre réseau le plus dispersif. Cette superposition provient du fait que l'intervalle spectral libre, grandeur qui dans un microdisque caractérise la distance spectrale entre deux pics appartenant au même mode radial, diminue lorsque le diamètre augmente comme nous pouvons le voir sur l'encart de la figure 3.19 pour les modes azimutaux TE_0, d'ordre radial $n = 1$.

Polarisation des modes de galerie

L'épaisseur de notre échantillon permettant l'existence de modes polarisés TE et TM, il est intéressant d'étudier la luminescence des microdisques en fonction de la polarisation. La figure 3.20 présente deux spectres de photoluminescence polarisée TE et TM, acquis en même temps, pour un microdisque de 4 μm de diamètre.

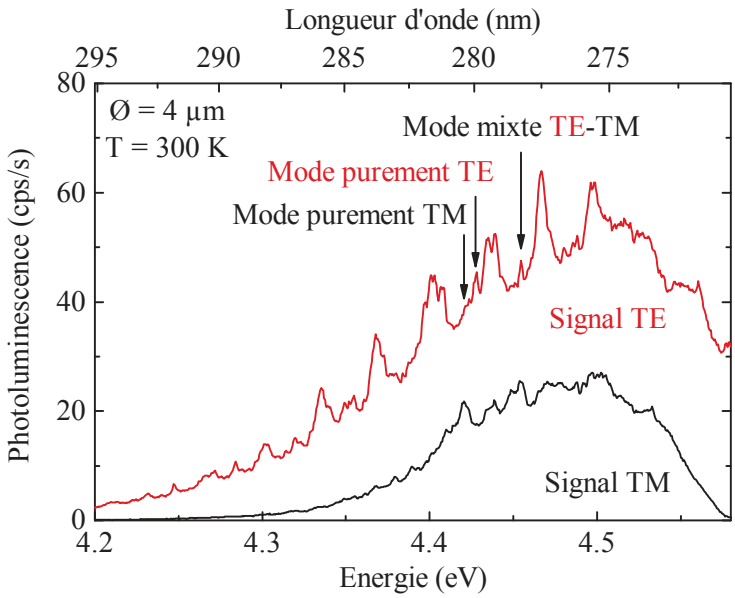


FIGURE 3.20 – *Spectres de photoluminescence d'un même microdisque de 4 μm de diamètre. Les courbes rouge et noire représentent respectivement les signaux polarisés TE et TM. Les deux spectres proviennent de la même acquisition.*

Nous pouvons voir que globalement, l'ensemble des modes présente une polarisation TE plus prononcée. Cependant, nous observons quelques modes purement TM ou mixtes TE-TM. L'existence de tels modes peut s'expliquer de deux façons. Nous avons vu dans la partie 1.2.3 que dans le cas du GaN non contraint, l'exciton A est purement TE alors que les excitons B et C sont des hybrides TE-TM. L'observation de modes TM peut provenir soit de photons issus de l'exciton A, dont la polarisation linéaire aura été changée à cause de la contrainte, par l'interaction avec un défaut du microdisque ou encore à cause du fait que le disque ne soit pas symétrique selon z et présente des flancs inclinés (cf. figure 3.10), soit d'une contribution des excitons B et C. Nous verrons dans la partie suivante que la première hypothèse est la plus

plausible.

3.5 Études des propriétés optiques non-linéaires

L'objectif de nos travaux étant de réaliser un micro-laser dans l'ultra-violet fonctionnant à température ambiante, nous abordons dans cette partie les propriétés optiques non-linéaires de nos microdisques. Les études présentées dans la suite sont effectuées soit sous excitation continue, soit sous excitation impulsionnelle, à 266 *nm*.

3.5.1 Expériences de photoluminescence sous forte injection optique

Expériences de photoluminescence sous excitation continue

Le comportement de la photoluminescence de nos microdisques sous pompage optique continu est présenté figure 3.21 (a).

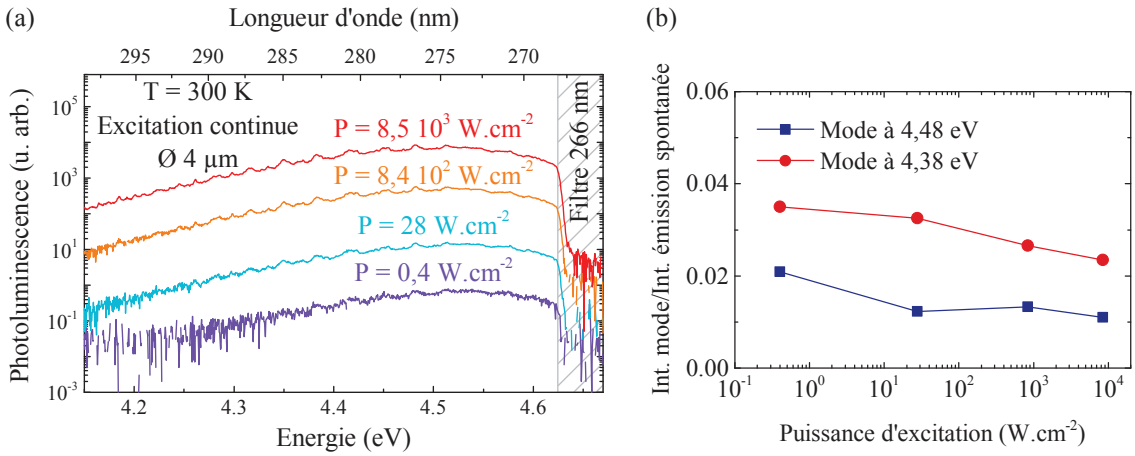


FIGURE 3.21 – *(a) Spectres de photoluminescence pour plusieurs puissances d'excitation d'un microdisque de diamètre* 4 μm. *Les expériences sont réalisées sous excitation continue à* 266 *nm, à température ambiante. (b) Évolution en fonction de la puissance d'excitation du rapport entre l'intensité d'un mode de galerie et l'émission spontanée non-couplée aux modes. Les ronds rouges correspondent à un mode à* $4,38$ *eV* (282 *nm*), *les carrés bleus à un mode à* $4,48$ *eV* (276 *nm*).

A l'inverse des microdisques à boîtes quantiques GaN/AlN, dont les spectres ont été présentés figure 3.2, l'augmentation de la puissance n'introduit pas de décalage vers le bleu. La force d'oscillateur des excitons susceptibles de participer au gain n'est donc pas affectée par le champ électrique interne.

Bien que la signature d'un effet laser par l'émergence de modes de galerie très intenses ne soit pas visible, nous pouvons nous intéresser au gain de notre milieu actif. Un moyen très simple de le mesurer, mais conduisant toutefois à une légère sous-estimation, est d'utiliser la méthode de Hakki-Paoli [139] ou celle de Cassidy [140]. Ces deux techniques, la seconde étant une amélioration de la première, ont en commun de déterminer le gain à partir du rapport des

intensités associées aux modes de galerie et à l'émission spontanée non-couplée à ces derniers. Nous pouvons voir sur le panneau (b) que ce rapport reste constant, signe que les pertes sont encore trop importantes pour blanchir l'absorption et rentrer dans un régime d'émission non-linéaire. L'explication la plus probable à cette absence d'émission stimulée est la densité de défauts des puits quantiques, encore trop importante pour permettre un fonctionnement en régime continu aux puissances d'excitation qui nous sont accessibles.

Expériences de photoluminescence sous excitation impulsionnelle

Afin d'augmenter le nombre de porteurs photo-créés, nous utilisons un laser à excitation impulsionnelle, dont la fréquence de répétition est de 4 kHz et la durée d'impulsion de 400 ps.

Le panneau (b) de la figure 3.22 présente le spectre de photoluminescence sous excitation continue d'un microdisque de 3 μm de diamètre, pour la plus haute puissance accessible. Nous pouvons identifier un certain nombre de modes de galerie et extraire leurs facteurs de qualité. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, les valeurs du facteur de qualité Q diminuent lorsque l'énergie augmente à cause de l'absorption des puits quantiques et des différentes états électroniques de l'AlN.

Le panneau (a) présente des spectres de photoluminescence du même microdisque mais sous excitation impulsionnelle, pour plusieurs densités d'excitation, et dont la plage spectrale d'étude a été réduite par rapport au panneau (b). Les spectres où la densité d'excitation est inférieure à $11,1\ nJ/impulsion$ ont été obtenus à partir de la moyenne de trente spectres ayant chacun un temps d'acquisition de 190 s, ceux dont l'excitation est supérieur à $11,1\ nJ/impulsion$ sont issus de la moyenne de dix spectres acquis pendant 5 s chacun. A faible densité d'excitation nous pouvons identifier une première famille de modes de galerie, indiquée par les lettres A_1, A_2 et A_3, et ayant un intervalle spectral libre d'environ 30 meV. En augmentant la densité d'excitation, nous pouvons voir une augmentation de l'intensité des modes de la famille A ainsi que l'apparition de deux autres familles indexées par les lettres B_i et C_i. L'intensité de chacun des modes semble augmenter non-linéairement avec l'énergie de pompe, ce qui est la caractéristique principale d'une émission laser avec l'amincissement des modes de galerie. A partir d'une énergie de $18,4\ nJ/impulsion$, les modes s'élargissent et présentent un profil asymétrique. Cela n'est pas un effet intrinsèque au fonctionnement du micro-laser mais provient de l'excitation optique utilisée. La largeur temporelle d'une impulsion est la même que le temps de vie des porteurs (400 ps), ce qui nous conduit à une situation où nous pouvons considérer l'excitation comme quasi-continue. Dans ce cas, certains effets, comme l'échauffement du microdisque ou l'importante densité de porteurs, peuvent générer un décalage en énergie. Le fait d'intégrer temporellement sur la durée entière de l'impulsion peut créer un élargissement et une asymétrie artificielle comme nous l'observons. Chaque mode laser présente également un décalage vers les hautes énergies lorsque la densité d'excitation diminue. Ce phénomène n'est pas réversible et correspond à une dégradation dans le temps du microdisque qui change la position spectrale des modes. Nous reviendrons en détail sur cette particularité dans la sous-section 3.5.2.

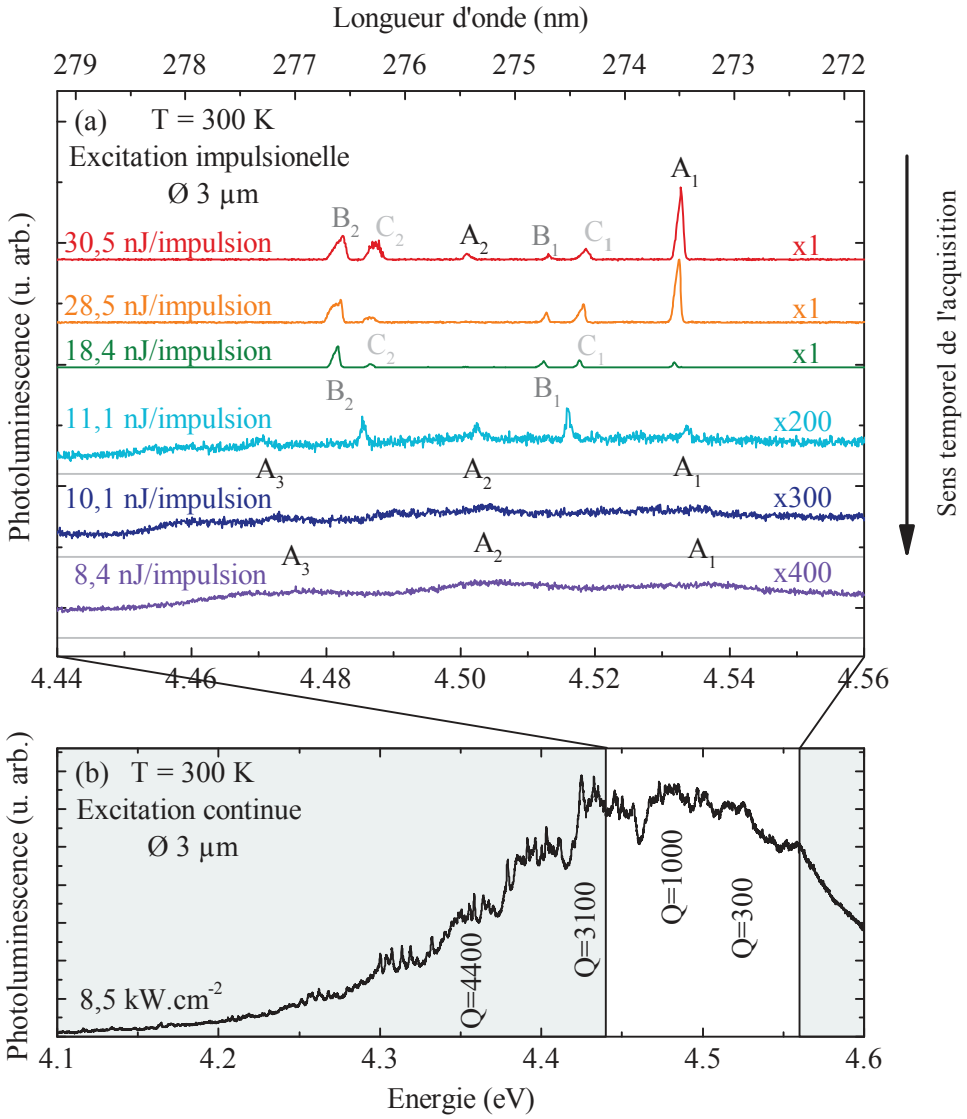


FIGURE 3.22 – *(a) Spectres de photoluminescence d'un microdisque de 3 µm de diamètre, sous excitation impulsionnelle et pour différentes densités d'excitation. (b) Spectre de photoluminescence sous excitation continue du même microdisque.*

Afin d'être sûrs que nous sommes bien en présence d'un régime d'émission stimulée, nous avons déterminé la largeur à mi-hauteur ainsi que l'amplitude du mode A_1 en fonction de la densité d'excitation. L'ensemble des valeurs sont obtenues à l'aide d'un ajustement gaussien du pic et sont tracées sur la figure 3.23.

L'amplitude du mode A_1, tracée sur le panneau (b), suit le comportement typique d'un laser. En régime d'émission spontanée, à faible densité d'excitation, l'intensité augmente de façon linéaire. Aux alentours de 15 $nJ/impulsion$, l'amplitude du mode croît alors de façon non-linéaire signe que la transition émission spontanée vers émission stimulée est train de se réaliser. Au-delà de 24 $nJ/impulsion$, l'intensité intégrée redevient linéaire, nous avons alors

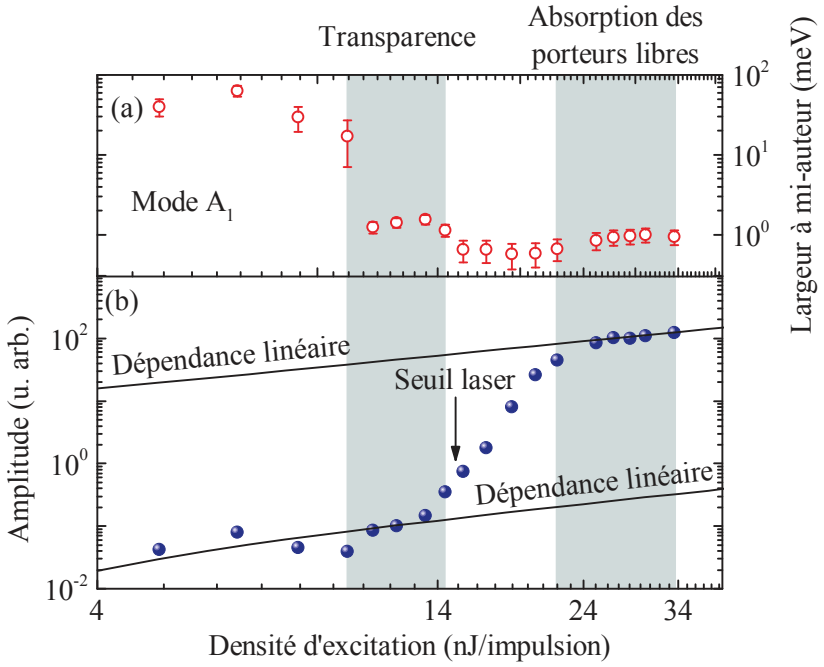
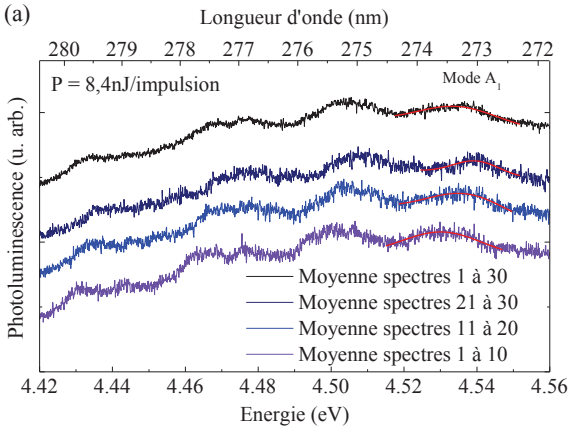


FIGURE 3.23 – *(a) Largeur à mi-hauteur en fonction de la densité d'excitation pour le mode de galerie A_1. (b) Intensité d'émission à l'énergie du mode de galerie A_1 en fonction de l'énergie d'excitation. Les valeurs proviennent d'un ajustement gaussien des données expérimentales.*

une émission laser.

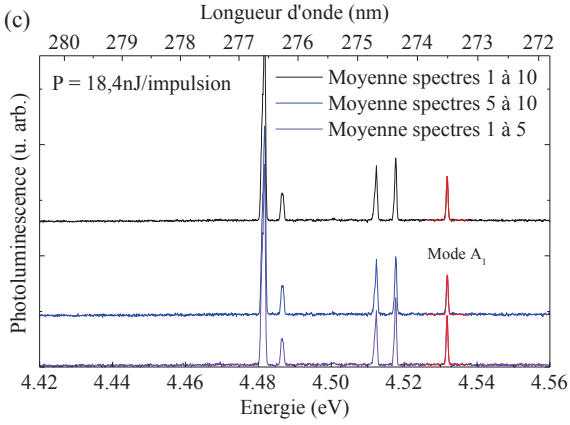
L'affinement spectral du mode, présenté sur le panneau (a), vient appuyer cette observation. Nous pouvons voir qu'il débute avant le seuil laser du mode A_1. Cela provient du fait que le gain du milieu actif est plus important et compense exactement les pertes. Le système est alors en régime de transparence ce qui conduit à une réduction de la largeur spectrale. Ce comportement, déjà observé dans de nombreux systèmes basés sur des arséniures [141, 142], signifie que nous sommes limités par l'absorption de notre émetteur et non par le facteur de qualité propre à la cavité. La largeur à mi-hauteur continue de diminuer lorsque nous passons le seuil laser puis réaugmente lorsque le micro-laser est en régime linéaire d'émission stimulée. Cet élargissement s'explique en général par l'absorption due aux porteurs libres, plus importante à forte densité d'excitation [143].

Nous avons vu que les modes présentent un décalage spectral, dû à l'endommagement du microdisque, qui peut introduire un élargissement artificiel lorsque les temps d'acquisitions sont supérieurs au temps caractéristique du décalage. Ce dernier est difficilement quantifiable et dépend énormément du microdisque étudié. Afin d'être certain que la largeur mesurée n'est pas sur-estimée, et pouvoir introduire des barres d'erreurs, nous avons étudié l'ensemble des données servant à la moyenne des spectres présentés figure 3.22.



(b)

Spectre (30x190s)	Fit gaussien de A1	
	FWHM (meV)	Energie (eV)
1 à 10	26	4,531
11 à 20	25	4,537
21 à 30	16	4,539
1 à 30	26	4,535



(d)

Spectre (10x5s)	Fit gaussien de A1	
	FWHM (meV)	Energie (eV)
1 à 5	0,57	4,5318
6 à 10	0,57	4,5319
1 à 10	0,57	4,5318

FIGURE 3.24 – *(a) Moyenne sur 10 et 30 spectres de photoluminescence pour une énergie d'excitation de* $8,4$ *nJ/impulsion. (b) Valeur de la largeur à mi-hauteur (FWHM) et de l'énergie de chacun des spectres présentés en (a). (c) Moyenne sur 5 et 10 spectres de photoluminescence pour une énergie d'excitation de* $18,4$ *nJ/impulsion. (d) Valeur de la largeur à mi-hauteur (FWHM) et de l'énergie de chacun des spectres présentés en (c).*

La figure 3.24 (a) présente quatre spectres de photoluminescence issus de la même acquisition, sous excitation impulsionnelle à $8,4$ $nJ/impulsion$. Trois d'entre eux sont une moyenne sur dix acquisitions de 190 s alors que le dernier est la moyenne des trente spectres, identique à celui présenté figure 3.22 (a). L'ajustement par une fonction gaussienne du mode A_1 nous permet d'extraire la largeur à mi-hauteur du mode ainsi que son énergie centrale d'émission. Ces valeurs sont reportées pour chaque spectre sur le panneau 3.24 (b). Le décalage en énergie entre le premier et le dernier spectre est d'environ $0,1$ meV, soit deux ordres de grandeurs plus petit que la largeur à mi-hauteur mesurée. La contribution du décalage spectral à l'élargissement du mode est donc négligeable et le traitement séparé des spectres nous permet d'obtenir une incertitude de ± 10 meV pour les largeurs à mi-hauteur issue des mesures ayant 30 acquisitions de 190 s. Nous avons tracé sur le panneau (c) deux spectres issus d'une moyenne sur cinq acquisitions de 5 s et un spectre résultant de la moyenne des dix acquisitions, qui correspond à la courbe présentée

figure 3.22 (a) obtenue pour une densité d'excitation de $18,4\ nJ/impulsion$. La figure 3.24 (d) présente les valeurs de la largeur à mi-hauteur et de l'énergie centrale du mode A_1, obtenues à partir d'un ajustement par une fonction gaussienne. La largeur à mi-hauteur estimée est la même pour les trois jeux de données, ce qui nous permet d'écarter tout élargissement artificiel dû au décalage en énergie du mode. Les barres d'erreurs présentées figure 3.23 (a) concernant l'élargissement spectral obtenu à partir des mesures de 10x5 s sont estimées à l'aide du décalage en énergie, qui est d'environ $0,1\ meV$ et qui nous permet de les évaluer à $0,2\ meV$.

3.5.2 Caractéristiques du micro-laser

Seuil laser et facteur de couplage β

Nous avons vu que l'énergie d'excitation à partir de laquelle l'émission stimulée se met en place est d'environ 15 $nJ/impulsion$. La durée temporelle de l'impulsion étant de 400 ps, valeur identique au temps de vie des porteurs, nous pouvons exprimer l'énergie d'excitation impulsionnelle en puissance d'excitation continue. Le seuil laser est alors de l'ordre de 17 $MW.cm^{-2}$, ce qui peut paraitre élevé en comparaison de ceux mesurés pour des lasers à barreaux UV-C qui sont de l'ordre $0,1-1\ MW.cm^{-2}$ [111]. Contrairement à ces derniers, nous utilisons une excitation quasi-résonante avec les puits quantiques. Les porteurs ne sont alors créés que dans la couche active, dont l'absorption est au mieux de l'ordre de 1 % par puits quantique, et nous ne profitons pas d'une absorption totale du laser de pompe par la barrière. Le diamètre du faisceau d'excitation a également sa part d'importance puisqu'il permet d'exciter l'ensemble du microdisque alors que les modes sont situés à la périphérie de ce dernier. Il en résulte donc que seulement une faible partie de l'excitation est utilisée pour fournir du gain aux modes qui présentent un effet laser. Pour ces deux raisons, le seuil de notre micro-laser est plus grand d'un à deux ordres de grandeur comparé aux meilleurs lasers à barreaux [14, 113] ou micro-laser UV [115] où le pompage est fait dans la barrière. Cependant, il reste comparable avec celui obtenu pour un laser à barreau dont le milieu actif est excité en résonance et qui vaut 13 $MW.cm^{-2}$ [15].

La figure 3.25 présente les points expérimentaux de l'amplitude du mode A_1, tracée figure 3.23, en fonction de l'énergie d'excitation ainsi que plusieurs ajustements obtenus à partir de l'équation 3.9 pour différentes valeurs de β, et un coefficient $\alpha = \dfrac{n_{clamp}}{n_{tr}} = 1,5$.

La puissance seuil et la puissance de transparence, et donc le facteur α, ne sont pas des paramètres ajustables et sont déterminés à partir de la figure 3.23. La puissance seuil est estimée à partir du moment où l'amplitude du mode A_1 ne suit plus un comportement linéaire et vaut environ 15 $nJ/impulsion$. La puissance de transparence est donnée par le début de l'amincissement spectral du mode et est évaluée à 10 $nJ/impulsion$.

Cet ajustement nous permet d'évaluer le facteur β de notre micro-laser, qui est de l'ordre de $(4 \pm 2)10^{-4}$. Cette estimation doit cependant être vue comme une limite basse car nous utilisons une excitation impulsionnelle, avec une durée d'impulsion identique au temps de vie des porteurs, ce qui peut introduire des effets de saturation qui vont modifier la valeur de β [144].

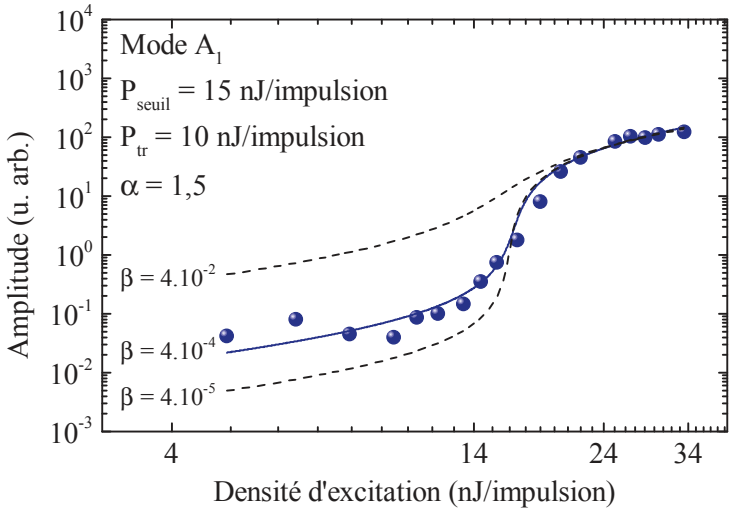


FIGURE 3.25 – *Evolution de l'amplitude du mode A_1 en fonction de l'énergie d'excitation (points bleus) et son ajustement obtenu à partir de l'équation 3.9 (ligne pleine bleu). Les lignes pointillées représentent des ajustement pour différents facteur β.*

Il est également important de noter que le β déterminé tient compte de l'efficacité quantique de la couche active, comme nous l'avons discuté partie 3.2.1, ce qui implique une légère sur-estimation. Le facteur de couplage de l'émission spontanée se situe en-dessous d'autres micro-lasers nitrures fonctionnant en régime d'effet Purcell, où le taux d'émission spontanée est augmenté et où β est compris entre $0,1$ et 1 [117], mais reste du même ordre de grandeur que les facteurs de couplage des lasers type VCSEL ayant un volume effectif beaucoup plus étendu et où β est de l'ordre de 10^{-4}. Ceci s'explique principalement par le fait que nous n'avons pas encore un volume effectif suffisamment petit pour espérer être en régime d'effet Purcell et que notre laser est fortement multi-mode. L'existence de quatre modes verticaux, deux TE et deux TM, d'au moins deux modes radiaux et trois azimutaux contraint l'émission spontanée à se coupler à plusieurs modes laser, limitant ainsi le facteur β.

Influence du diamètre

Afin de déterminer l'influence du diamètre sur les caractéristiques du micro-laser, nous avons effectué le même genre de mesures sur des microdisques ayant un diamètre allant de 4 μm à 12 μm. Ces résultats sont présentés sur la figure 3.26.

Le panneau (a) présente trois spectres de photoluminescence normalisés et décalés selon la verticale pour une meilleure lisibilité, obtenus avec une énergie d'excitation de 26 $nJ/impulsion$. Les flèches indiquent le mode ayant le plus faible seuil laser. Contrairement aux autres travaux effectués sur des microdisques nitrures à base de GaN massif [145] ou de puits quantiques InGaN/GaN [16] où un effet laser est observé seulement sur des disques ayant des diamètres inférieurs à 3 μm, nous observons de l'émission stimulée sur une large gamme de diamètre allant de 4 μm à 12 μm. Notons que ceci peut être lié à des propriétés intrinsèques de ces microdisques,

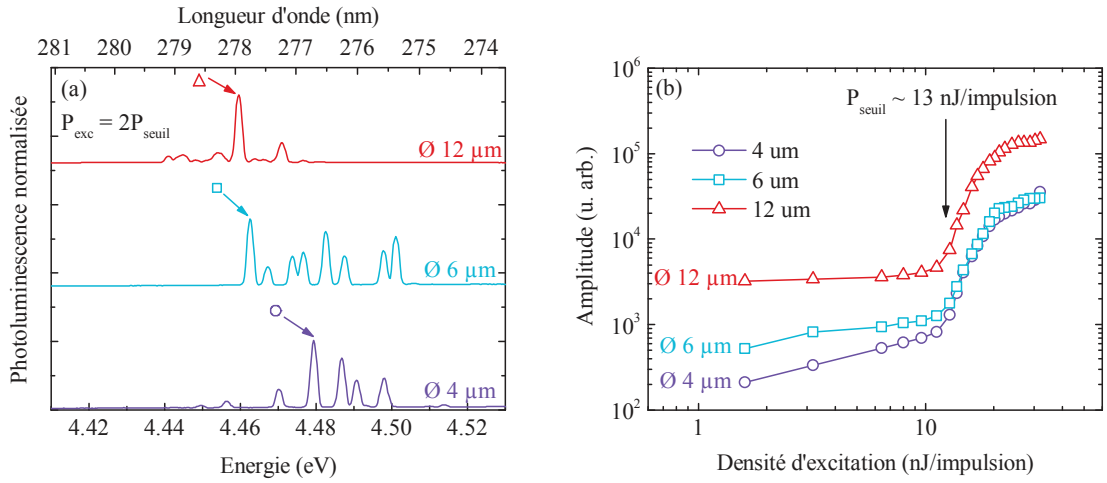


FIGURE 3.26 – *(a) Spectres de photoluminescence de microdisques pour plusieurs diamètres. La densité d'excitation est de 26 $nJ/impulsion$. (b) Amplitude des modes lasers, indiqués par une flèche sur le panneau (a), en fonction de l'énergie d'excitation.*

ou à la spécificité de notre montage d'excitation défocalisée particulièrement adapté aux grands microdisques.

Le panneau (b) présente l'amplitude des trois modes repérés par des flèches. Nous pouvons voir que le seuil laser est le même quel que soit le diamètre et vaut aux alentours de 13 $nJ/impulsion$. Pour comparaison, parmi le peu de travaux étudiant la dépendance du seuil laser d'un microdisque en fonction de son diamètre, ceux de Baba *et al.* ont le mérite d'être les plus complets. Ils portent sur des microdisques InGaAsP et présentent un courant de seuil variant comme le carré du diamètre, ce qui implique une puissance de seuil par unité de surface constante avec le diamètre [146], en accord avec nos résultats.

En ce qui concerne le facteur β, il n'est pas possible de faire une étude comparative en fonction de la taille des microdisques, car comme nous l'avons vu dans la partie 3.4.3, il nous est impossible d'isoler avec certitude un mode de galerie sous le seuil pour les microdisques ayant un diamètre supérieur à 6 μm. L'extraction du facteur β, toujours complexe dans la communauté des microlasers, ne peut donc pas être menée avec rigueur sur tous les dispositifs que nous avons étudiés.

Glissement temporel des modes lasers et endommagement du micro-laser

Comme nous l'avons vu précédemment, les modes lasers présentent un décalage irréversible vers les hautes énergies d'émission en fonction du temps de photo-excitation. La figure 3.27 est une carte en fausses couleurs de l'évolution spectrale des modes lasers en fonction du temps écoulé. Chaque spectre est intégré 10 s et l'énergie d'excitation utilisée est de 26 $nJ/impulsion$, soit deux fois l'énergie d'excitation nécessaire pour observer un effet laser.

Nous pouvons voir que sur les quatre heures et demi d'acquisition, l'ensemble des modes

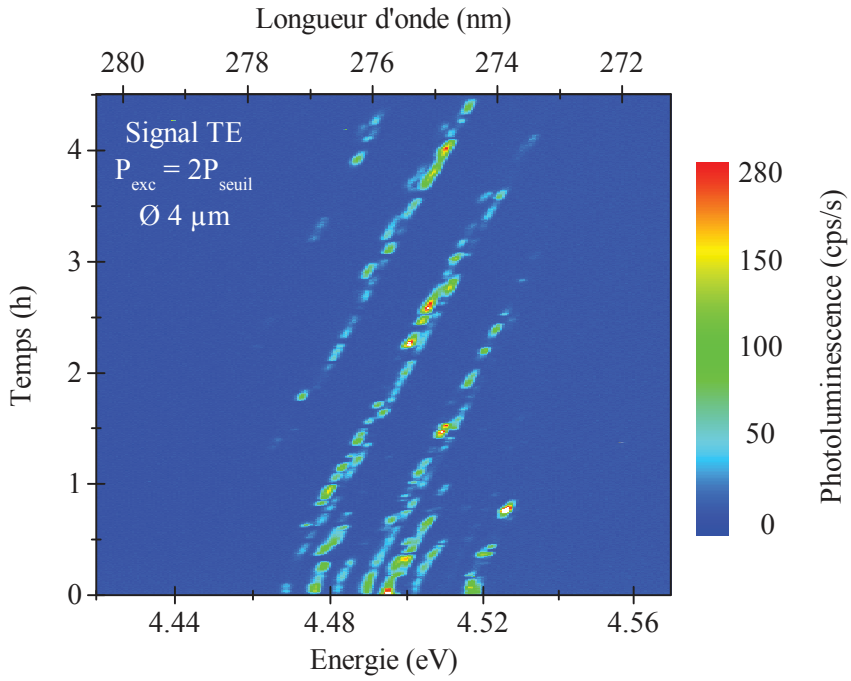


FIGURE 3.27 – *Carte en fausses couleurs de l'évolution spectrale des modes de galerie en fonction du temps pour un microdisque de* 4 μm *de diamètre. Chaque spectre composant la carte est intégré* 10 s *et la densité d'excitation est de* 26 $nJ/impulsion$, *soit* $2P_{seuil}$.

présente un décalage vers les hautes énergies, similaire à celui observé sur les figures 3.22 et 3.24. Cet effet est attribué à une modification des propriétés diélectriques du microdisque et/ou à une modification de sa structure. Les travaux de Aharonovich *et al.*, effectués sur des microdisques InGaN/GaN immergés dans de l'eau, présentent le même genre de décalage spectral [147]. Les auteurs attribuent ce décalage à un effet similaire à de la gravure photo-électro-chimique. La surface du microdisque subit une oxydation causée par les radiations ultra-violettes suivie d'une dissolution de cet oxyde dans l'eau, ce qui modifie son épaisseur et entraine un décalage spectral des modes de galerie.

Afin de vérifier si nous nous trouvions dans le même cas de figure, nous avons réalisé des images au microscope électronique à balayage de la surface de nos microdisques après une expérience de micro-photoluminescence UV. La figure 3.28 présente la surface d'un microdisque de 2 μm de diamètre après quatre heures et demi d'exposition au faisceau laser impulsionel à 266 nm.

Nous pouvons voir que la surface du disque présente des zones où le microdisque est fortement endommagé et où l'AlN semble avoir été gravé. Nous pouvons donc en conclure que le décalage spectral observé est essentiellement dû à une modification de l'épaisseur du disque induit par les radiations UV utilisées.

Notons également que la forte absorption du silicium aux longueurs d'ondes UV peut entrainer un échauffement local important et ainsi dégrader la structure de nos microdisques.

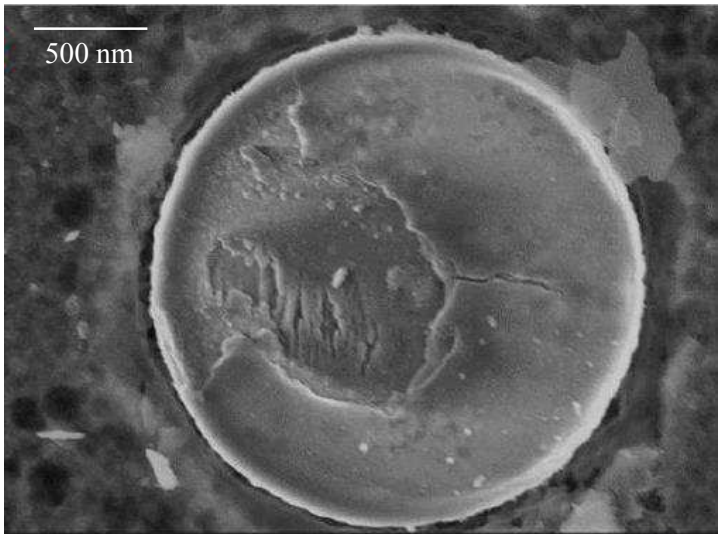


FIGURE 3.28 – *Micrographie au microscope électronique à balayage de la surface d'un microdisque après une expérience de micro-photoluminescence UV de dix heures sous excitation impulsionnelle. L'image a été prise par M. Mexis au CRHEA.*

Courbe de gain et polarisation de l'émission

Bien que cette dégradation soit rédhibitoire pour envisager une application immédiate à nos microdisques, elle n'en reste pas moins intéressante pour étudier certaines propriétés de la couche active, en particulier sa plage de gain. La modification de l'épaisseur du microdisque conduit à un déplacement spectral des modes de galerie et nous pouvons voir sur la figure 3.27 que ces derniers présentent un effet laser seulement sur une certaine plage énergétique, qui correspond à la plage de gain. Le glissement spectral des modes nous permet donc d'avoir une estimation de la plage spectrale de gain en effectuant une moyenne de tous les spectres composant la carte en fausses couleurs. Cette moyenne est présentée sur la figure 3.29 pour les signaux polarisés TE (a) et TM (b).

L'ajustement des points expérimentaux à l'aide d'une fonction gaussienne nous permet d'obtenir l'énergie centrale de la plage spectrale de gain ainsi que sa largeur à mi-hauteur. Que ce soit pour une polarisation TE ou TM, le gain est centré à $4,51\ eV$ et son élargissement spectral est d'environ 30 meV. Cette étude nous permet également de répondre à la question posée en sous-section 3.4.3, à savoir quels sont les excitons qui contribuent à l'émission polarisée TM. Le fait que l'énergie centrale soit la même dans les deux polarisations laisse à penser que ce sont les excitons A qui contribuent à l'émission TM. En effet, une participation des excitons B et C au signal TM introduirait un décalage en énergie au moins égal au champ cristallin dans GaN, qui vaut $10,1\ meV$ [35], par rapport au signal TE.

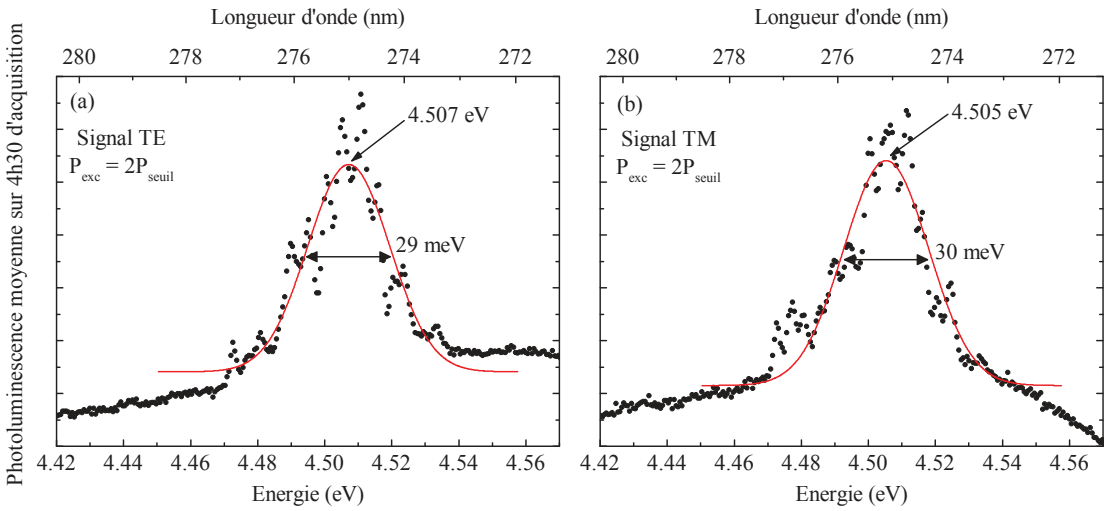


FIGURE 3.29 – *Photoluminescence moyenne polarisée TE (a) ou TM (b) sur quatre heures et demi d'acquisition (points noirs). Les courbes rouges représentent un ajustement gaussien des données expérimentales.*

3.5.3 Influence de la passivation de surface

Nous avons vu dans la section 3.5.2 que le décalage temporel des modes de galerie et l'endommagement du microdisque étaient principalement dus à des effets de photo-chimie surfaciques. Afin de limiter l'oxydation de nos cavités, Iännis Roland [4] a procédé à une passivation de surface à l'aide de deux diélectriques différents, du SiN et du HfO_2, dont les épaisseurs déposées sont d'environ 5 nm. L'avantage de ces matériaux est qu'ils sont les seuls à être transparents dans la gamme de longueur d'onde que nous étudions.

Effet sur le facteur de qualité

La figure 3.30 présente des spectres de photoluminescence sous excitation continue de trois microdisques de 3 μm de diamètre, ayant des passivations différentes.

Nous pouvons voir que les passivations utilisées ne dégradent pas les facteurs de qualité. A haute énergie, nous observons une dégradation du facteur de qualité Q sur tous les types de microdisques, provenant de l'absorption des puits quantiques composant le milieu actif.

Effet sur le seuil laser et le facteur β

En vue d'étudier l'influence de la passivation sur les caractéristiques de notre micro-laser, des mesures sous excitation impulsionnelle ont été réalisées. Le panneau (a) de la figure 3.31 présente des spectres de photoluminescence de trois microdisques de 4 μm de diamètre ayant trois états de surface différents. La variation de l'amplitude des modes indexés par une flèche en

4. Post-doctorant à l'IEF

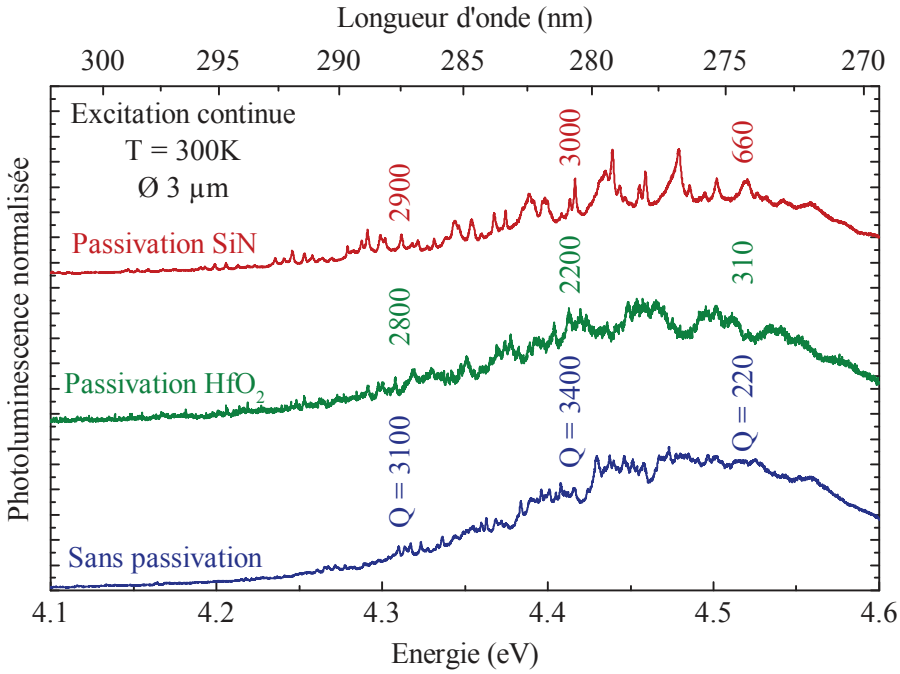


FIGURE 3.30 – *Spectres de photoluminescence sous excitation continue pour différentes passivations de surface. Les microdisques étudiés font 3 µm de diamètre.*

fonction de la puissance présentée sur le panneau (b) nous permet de voir que la passivation de surface ne joue pas sur l'obtention d'un effet laser, ni sur la puissance seuil.

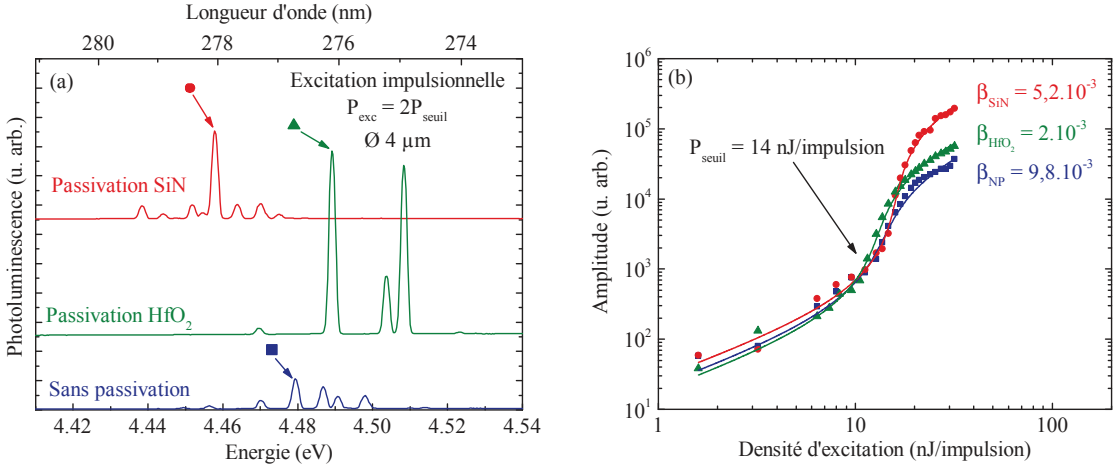


FIGURE 3.31 – *(a) Spectres de photoluminescence pour différentes passivations de surface, sur des microdisques de 4 µm de diamètre. L'énergie d'excitation est de $2P_{seuil}$ et les spectres sont décalés verticalement pour une meilleure lisibilité. (b) Variation de l'amplitude en fonction de l'énergie d'excitation des modes indiqués par une flèche sur le panneau (a). Les facteurs β sont obtenus à partir de l'ajustement des points expérimentaux, à l'aide de l'expression 3.9.*

La puissance seuil mesurée, qui vaut environ 14 $nJ/impulsion$, est la même quel que soit

le type de passivation du microdisque. L'ajustement, à l'aide de l'équation 3.9, des valeurs de l'amplitude en fonction de la densité d'excitation nous permet d'extraire le facteur de couplage β de chacun des microdisques. Les valeurs sont de $(10 \pm 2)10^{-3}$, $(2 \pm 2)10^{-3}$ et $(5 \pm 2)10^{-3}$ pour respectivement le microdisque non-passivé, celui passivé HfO_2 et celui passivé SiN. Ces valeurs sont légèrement meilleures que celles mesurées sur la figure 3.25. Nous pensons que la différence provient essentiellement du fait que les microdisques étudiés dans cette partie, passivés ou non, n'ont pas été fabriqués en même temps que les précédents, ce qui peut influencer les caractéristiques de nos micro-lasers.

Effet sur la dégradation du microdisque

L'intérêt principal de la passivation de surface réside dans la protection du microdisque. La figure 3.32 présente plusieurs spectres de photoluminescence intégrés sur 1 s et pris à différents instants sur une acquisition de 2 h. Le microdisque étudié a une passivation à base de SiN et un diamètre de 4 μm.

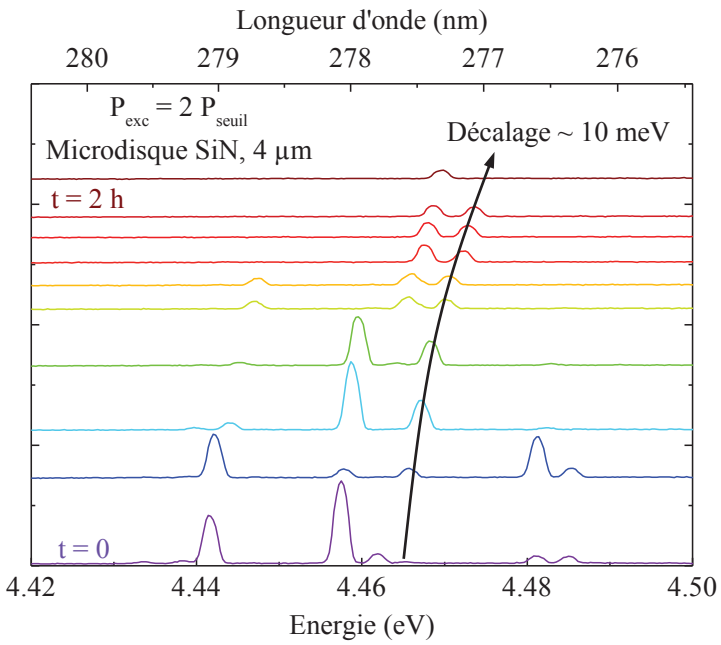


FIGURE 3.32 – *Spectres de photoluminescence d'un microdisque de 4 μm de diamètre, passivé SiN. Chaque spectre est intégré sur une seconde et le microdisque reste exposé durant 2 h sous le faisceau laser. La puissance d'excitation est de $P_{exc} = 2P_{seuil}$.*

Nous pouvons voir que sur deux heures d'acquisition, les modes de galerie se décalent d'environ 10 meV vers les hautes énergies. Une étude statistique sur 9 microdisques nous a permis de voir que malgré la passivation de surface, que ce soit avec du SiN ou du HfO_2, les modes de galerie présentent un décalage spectral moyen de 20 meV. Cette valeur est identique à celle que nous pouvons mesurer figure 3.27, pour une échelle de temps similaire. Malgré l'absence de

micrographie similaire à celle présentée figure 3.28, tout laisse à penser que la passivation de surface n'améliore pas la durée de vie de notre micro-laser et que l'endommagement subi est comparable avec celui des microdisques non-passivés. Ceci est certainement dû à l'épaisseur des couches de passivation déposées, qui sont de l'ordre de 5 nm, probablement trop faibles pour assurer la protection de l'AlN.

3.6 Conclusion et perspectives

Ce dernier chapitre a été l'occasion de présenter nos travaux sur les micro-lasers opérant dans l'UV profond et à température ambiante. Le savoir-faire technologique du CRHEA et de l'IEF nous a permis la réalisation de micro-lasers à base de microdisques nitrures à puits quantiques GaN/AlN. L'originalité de nos études se situe essentiellement au niveau de la couche active utilisée, composée de puits quantique GaN/AlN d'une épaisseur d'environ $0,7$ nm crûs sur substrat silicium. Contrairement aux lasers à barreaux plus conventionnels émettant à $300K$, **où les milieux actifs sont des puits AlGaN peu profond crûs sur des couches tampons ayant une épaisseur supérieure à 1 μm**, nos micro-lasers utilisent comme couche active des composés binaires, moins sujet au désordre d'alliages, et sont crûs sur de faibles épaisseurs d'AlN sur silicium, typiquement 100 nm. En contrepartie, **la densité de défauts est de l'ordre de 8.10^{10} cm^{-2}, soit deux ordres de grandeur supérieurs à celle requise dans les lasers à barreaux, ce qui contraint nos micro-lasers à opérer en régime impulsionnel.**

Le choix de puits quantiques GaN/AlN provient des précédentes études effectuées au laboratoire sur des boîtes quantiques GaN/AlN. Bien que prometteuses, **ces dernières se sont révélées être de mauvaises couches actives en vue de réaliser un micro-laser UV profond**. En cause, **l'élargissement inhomogène de l'émission des boîtes, qui s'étend sur presque 2 eV** et qui entraine **une dilution spectrale du gain** et **une absorption trop importante** pour espérer avoir un régime d'émission stimulée. Les expériences de photoluminescence menées sur un échantillon de vingt puits quantiques GaN/AlN ont mis en évidence **une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 200 meV, soit dix fois moins importante que celle de l'échantillon à boîtes quantiques**. **L'autre avantage des puits quantiques GaN/AlN très fins est la faible influence du champ électrique interne sur les transitions excitoniques**. Les expériences de photoluminescence résolues temporellement sur la couche active nous ont permis de mettre en évidence **un temps de vie de l'ordre de 400 ps, signe que la force d'oscillateur de la transition excitonique n'est que peu affectée par le champ interne**.

Nous avons mis en oeuvre des expériences de spectroscopie délicates et complètes pour étudier ces microdisques et leur caractérisation nous a permis de mesurer **des facteurs de qualité allant d'environ 4000 à basse énergie jusqu'à 500 à haute énergie**. **Cette diminution du facteur de qualité** est essentiellement due à **l'absorption des puits quantiques et celle des différents états électroniques de l'AlN, plus importantes à haute énergie**.

L'étude des propriétés optiques non-linéaires nous a permis de mesurer la puissance seuil de nos micro-lasers, qui est de l'ordre de 17 $MW.cm^{-2}$. Cette valeur relativement élevée s'explique par le fait que **nous excitons en quasi-résonnance les puits quantiques**. L'analyse de la variation de l'amplitude d'un mode laser en fonction de l'énergie d'excitation nous a permis d'extraire **une limite haute pour le facteur de couplage de l'émission spontanée β de notre micro-laser, qui vaut $(4 \pm 2).10^{-4}$ et qui est principalement limitée par le caractère fortement multi-mode de notre système qui contraint l'émission spontanée à se coupler à un nombre important de modes lasers**.

Nous avons également pu voir que **les radiations UV endommageaient la surface de nos microdisques**. **Afin de prévenir les dommages** conséquents à l'excitation optique, nous avons procédé à **une passivation de surface à l'aide de diélectriques comme le HfO_2 ou le SiN**. **Cette passivation s'est révelée inefficace dans la protection de notre micro-laser sans toutefois en altérer ses propriétés**.

Les perspectives de ces travaux sont, à terme, **la réalisation d'un micro-laser UV profond mono-mode**, où le facteur de couplage β se rapproche le plus possible de l'unité. **Le résonateur optique idéal** pour ce genre de système est **la cavité à cristal photonique**, qui, selon la géométrie utilisée, **peut avoir uniquement un mode confiné**. La réalisation d'un laser à micro-disque a permis de valider l'efficacité de la couche active. La réalisation de cristaux photoniques ayant une bande interdite photonique à **275 nm** nécessitera de travailler sur **deux points distincts, qui sont l'épaisseur de la couche active et les dimensionnels requis pour un cristal photonique dans l'UV profond**.

Afin de limiter le nombre de mode optique dans l'épaisseur de la structure, il peut être intéressant de **travailler sur des microdisques composés de 10, 5 voire 1 puits quantique** et déterminer le nombre minimal de puits pour lequel une émission laser est observée. L'étude de tels systèmes s'inscrit directement dans les travaux effectués au cours de cette thèse. **Le second point peut s'avérer plus compliqué** car le diamètre des trous du cristal photonique doit être de $\frac{\lambda}{4}$ soit **environ 70 nm pour l'UV-profond**. **L'utilisation de puits légèrement plus épais**, et émettant donc à plus haute longueur d'onde, est **la piste la plus intéressante pour maîtriser par étapes la réalisation de cristaux photoniques dans l'UV profond**, en partant des dessins maitrisés au sein de la collaboration dont le diamètre est de 110 nm.

Conclusion et perspectives

Les travaux effectués au cours de cette thèse ont permis d'explorer les propriétés optiques de nanostructures GaN/AlN encapsulées dans des microcavités optique, crûes sur substrat silicium. Les hétérostructures étudiées au long de ce manuscrit présentent un important champ électrique interne qui dégrade leurs propriétés optiques. Afin d'être peu affecté par ce champ interne, nous avons étudié des boîtes et des puits quantiques ayant une faible épaisseur, entre 2 et 3 nm pour les boîtes quantiques et aux alentours de $0,7$ nm pour les puits, pour lesquels le confinement quantique est plus important et où le champ électrique n'apporte qu'un effet perturbatif.

Les expériences de photoluminescence résolue temporellement effectuées sur des ensembles de "petites" boîtes quantiques GaN/AlN ont révélé l'existence d'un déclin de luminescence bi-exponentiel, jusqu'alors inobservé sur des systèmes nitrures émettant à haute énergie. Nous avons vu que l'explication la plus probable pour comprendre ce déclin bi-exponentiel est la contribution d'un état excitonique optiquement noir, repeuplant l'état brillant à l'aide d'interactions excitons-phonons. La confirmation de cette hypothèse passe par la réalisation d'expériences de photoluminescence résolue en temps sur des boîtes quantiques uniques. La faible efficacité radiative des boîtes quantiques GaN/AlN, essentiellement due au phénomène de réflexion totale interne et à la mauvaise qualité cristalline des nitrures, nous a amené à utiliser des microcavités planaires afin de modifier le diagramme de rayonnement des boîtes. Pour cela, nous avons développé des simulations numériques nous permettant d'optimiser le dessin de nos structures avant leur fabrication. Cette optimisation s'est faite en étroite collaboration avec F. Semond afin d'utiliser des paramètres le plus réalistes possible lors de l'élaboration du cahier des charges. Les deux microcavités réalisées, en AlN ou en $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$, permettent d'augmenter la lumière collecté d'un facteur 5 pour la microcavité AlN et d'un facteur 20 pour la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$. Ces prévisions théoriques ont été confirmées par des expériences de micro-photoluminescence accomplies sur nos microcavités. L'utilisation de microcavités planaires nous a également permis d'améliorer la qualité cristalline de la barrière dans laquelle sont crûes les boîtes quantiques, ce qui a pour conséquence de réduire l'élargissement inhomogène de la luminescence d'une boîte quantique à des valeurs de l'ordre de 500 μeV, ce qui représente l'état de l'art. L'amélioration du nombre de photons collectés ouvre de nombreuses possibilités pour la suite. Ainsi, les expériences nécessitant des temps d'acquisitions très longs, comme l'étude de la statistique d'émission d'une boîte quantique unique, peuvent être significativement simplifiées. La structuration de nos microcavités planaires en micropilliers peut également laisser espérer l'observation d'un couplage

fort lumière-matière ou la réalisation d'un micro-laser, qui sont les prochaines étapes à atteindre avec des boîtes quantiques nitrures.

En parallèle de l'analyse des mécanismes fondamentaux intervenant dans les processus d'émission de lumière de boîtes quantiques GaN/AlN, nous avons étudié les propriétés optiques non-linéaires de puits quantiques GaN/AlN insérés dans des microdisques en AlN. L'utilisation de puits quantiques très fins, environ $0,7\ nm$, dont la luminescence présente une largeur à mi-hauteur d'environ 200 meV, couplés à des microdisques dont le facteur de qualité est de l'ordre de 500, nous a permis la réalisation de micro-laser émettant à 275 nm, sous pompage optique impulsionnel et à température ambiante. Les mesures de micro-photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation ont révélé un seuil laser d'environ 17 $MW.cm^{-2}$, 4 à 5 ordre de grandeur au-dessus de ceux des microlasers arsénuires, et un facteur de couplage de l'émission spontanée β de l'ordre de 4 10^{-4}. De telles valeurs s'expliquent principalement par le fait que nos microdisques sont fortement multi-mode, ce qui a pour conséquence d'augmenter le seuil laser et de réduire la proportion d'émission spontanée qui se couple avec un mode photonique. Les conditions d'excitation sont également à l'origine du seuil élevé car nous utilisons un laser résonnant avec les puits quantiques, ce qui a pour conséquence de diminuer fortement la puissance absorbé par la couche active. Ces travaux ont été l'occasion de montrer le potentiel de notre couche active pour la réalisation de micro-laser UV profond mono-mode. Nous avons également pu voir que le rayonnement UV de notre laser d'excitation endommageait fortement l'état de surface de nos microdisques. Pour pallier à ce problème, nous avons déposé plusieurs diélectriques sur nos microdisques, qui se sont révélés être sans effet sur la protection de nos disques, sans toutefois en altérer leurs propriétés optiques non-linéaires. Les perspectives directes résident dans la réalisation de laser à microdisques ayant un nombre moins important de puits quantiques, pour réduire le nombre de modes optiques liés à l'épaisseur de la structure, et ensuite utiliser ces couches actives dans des cavités à cristal photonique. Les principaux enjeux de tels systèmes résident dans l'obtention d'un micro-laser mono-mode, où le facteur β sera beaucoup plus proche de l'unité que nos microdisques, tout en ayant une puissance seuil plus faible. A terme, il est imaginable d'utiliser ces dispositifs pour de l'optique intégrée, comme des laboratoires sur puces permettant la détection ou la destruction de quelques molécules ciblées.

Annexe A

Dispositif de micro-photoluminescence UV

Cette section présente le dispositif de micro-photoluminescence mis au point lors de la thèse de Richard Bardoux[1] et amélioré au fil du temps.

Expériences de photoluminescence continue

La photoluminescence continue, dont le principe est schématisée figure A.1, est une des caractérisations optiques de base des semi-conducteurs.

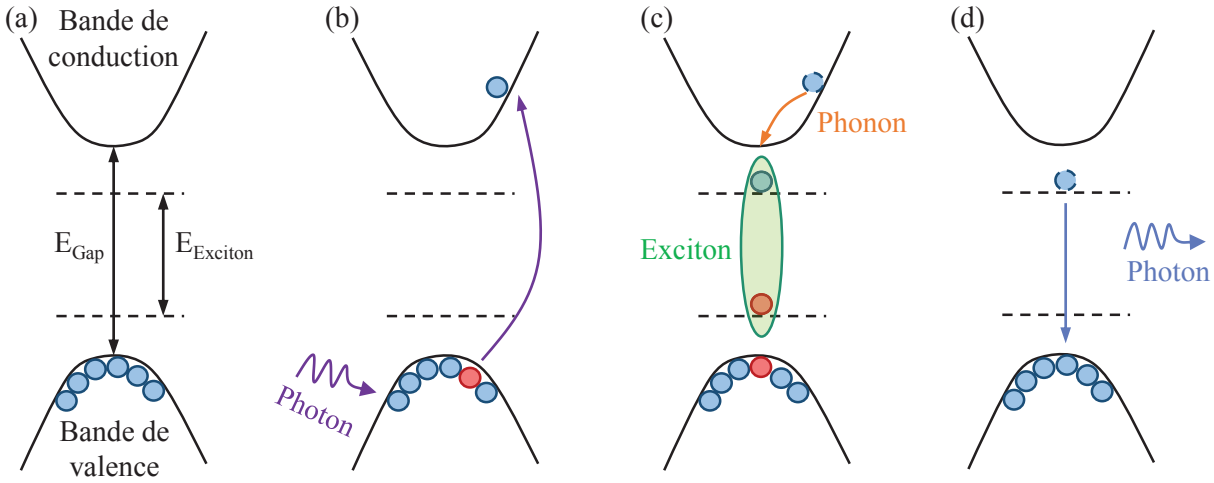


FIGURE A.1 – *Schéma de principe d'une expérience de photoluminescence.*

Le cas (a) présente le cas idéal à une température de 0 K. L'ensemble des électrons se trouve dans la bande de valence et la bande de conduction est vide. En fournissant de l'énergie au

1. Thèse de doctorat intitulée *Spectroscopie de boîtes quantiques individuelles GaN/AlN en phase hexagonale*, sous la direction de T. Guillet et P. Lefebvre, 2007

système via une excitation laser (cas (b)), nous pouvons faire passer un électron vers la bande de conduction, laissant ainsi un trou dans la bande de valence. L'électron va alors émettre un ou plusieurs phonons pour annuler l'excès d'énergie et rejoindre le minimum de la bande de conduction. Une fois cette énergie évacuée, l'électron et le trou interagissent pour former un exciton (panneau (c)). Au bout d'un certain temps, qui va dépendre de l'interaction entre l'exciton et son environnement, l'électron et le trou se recombinent en émettant un photon (cas (d)). C'est la détection et l'analyse de ces photons qui vont nous permettre d'obtenir des informations sur le matériau étudié. Le mécanisme décrit ici est bien entendu simplifié à l'extrême. En réalité, la présence d'impuretés au sein du semi-conducteur, l'interaction avec l'environnement ou encore le champ électrique interne pour les nitrures font que ce processus de photoluminescence peut être fortement modifié.

La figure A.2 présente le montage expérimental utilisé lors de nos différentes expériences de micro-photoluminescence. Pour l'excitation de nos échantillons, nous disposons de trois sources différentes :

— Un laser continu, de marque Crylas, de longueur d'onde 266 nm et de puissance comprise entre 10 mW et 50 mW.
— Un laser impulsionnel (type Q-Switch), de marque Teem Photonics, ayant un taux de répétition accordable entre 4 kHz et 1 Hz, une largeur d'impulsion d'environ 400 ps et une longueur d'onde de 266 nm. L'énergie d'excitation est d'environ 32 $nJ/pulse$ sur l'échantillon.
— Un laser titane-saphir à blocage de modes, de marque Cohérent, accordable en longueur d'onde (690 nm - 1040 nm). Cette gamme est étendue dans le bleu et l'ultra-violet (450 $nm - 250$ nm) en utilisant des cristaux doubleur et tripleur de fréquence. Le laser opère avec un taux de répétition de 82 MHz et nous pouvons modifier ce taux en utilisant un sélecteur d'impulsions. La puissance moyenne à 800 nm est de $4,2$ W et nous pouvons récupérer 25 % et 10 % de cette puissance pour respectivement la seconde et la troisième harmonique.

La puissance d'excitation est contrôlée par une lame demi-onde suivi d'un cube polariseur. Le faisceau est ensuite réfléchi sur un miroir dichroïque à 266 nm. Il est focalisé sur l'échantillon par un objectif de microscope ayant une ouverture numérique de $0,4$, prévu pour une utilisation sur la plage spectrale 195 $nm - 450$ nm. Le faisceau est élargi juste avant l'objectif de microscope afin d'éclairer uniformément sa pupille pour pouvoir former une tache d'environ 1 μm de diamètre sur l'échantillon. Nous utilisons un cryostat à circuit ouvert où nous pouvons faire varier la température entre 5 K et 300 K. La luminescence de l'échantillon est récoltée par le même objectif de microscope et est transmise par la lame dichroïque. L'angle de collection maximal associé à l'ouverture numérique de $0,4$ vaut 24 ° par rapport à la normale à l'échantillon.

Le signal est focalisé sur l'entrée d'un spectromètre, de marque Horiba Jobin-Yvon, à l'aide d'une lentille achromatique sur la plage 210 $nm - 405$ mn permettant de limiter les aberrations chromatiques relativement importantes dans l'UV. La lumière peut ensuite être analysée avec

trois réseaux différents, 150 $traits/mm$, 1200 $traits/mm$ et 3600 $traits/mm$, avec une résolution respective de $2,4\ meV$, $300\ \mu eV$ et $100\ \mu eV$.

Le détecteur utilisé est une camera CCD (pour Charge Cooled Device), modèle Symphony conçus par Horiba. Le capteur est composé de 1024x256 pixels, chaque pixel ayant une dimension de 26 μm par 26 μm. Nous avons également utilisé une caméra CCD modèle Synapse, également fabriquée par Horiba. Son capteur est composé de 2048x512 pixels, chaque pixel ayant une dimension de $13,5\ \mu m$ par $13,5\ \mu m$ et son efficacité de détection sur l'intervalle spectral $200\ nm - 400\ \ nm$ vaut en moyenne 60 %. Cette dernière est en configuration *back-illuminated*, ce qui augmente considérablement l'efficacité de collection des photons. Traditionnellement, la conception des détecteurs se fait en configuration *front-illuminated*, où la zone active se trouve derrière une série de transistors et de câblages. De fait, une partie de la lumière incidente est réfléchie et absorbée par la couche où se trouve la connectique et est donc perdue pour les mesures.

Les récents progrès technologiques en terme de retrait de substrat ont permis de concevoir des dispositifs back-illuminated, où la zone active se trouve devant les connectiques, qui permettent d'augmenter le nombre de photons utiles aux mesures. Plus d'informations sur les technologies front-illuminated et back-illuminated peuvent être trouvées dans la référence [148].

Expériences de micro-photoluminescence résolue temporellement

La photoluminescence résolue en temps permet d'obtenir des informations relative à la dynamique de recombinaison des excitons au sein d'un semi-conducteur. C'est par cette technique que des estimations précises du champ électrique interne des nitrures ont pu être réalisées.

Le principe de fonctionnement est assez simple : une impulsion laser avec une largeur temporelle très petite devant le temps de vie de l'exciton est envoyée et le déclin de la photoluminescence en fonction du temps est mesuré grâce à une caméra à balayage de fente.

L'excitation de l'échantillon se fait à l'aide du laser titane-saphir à blocage de modes. Sa largeur temporelle d'impulsion est de l'ordre de 100 fs et sa fréquence de répétition est de 82 MHz, ce qui correspond à une impulsion toutes les 12 ns. Les nitrures étant des systèmes où les temps de vie peuvent être supérieurs de plusieurs ordres de grandeur à la dizaine de nanoseconde, une fréquence de 82 MHz est beaucoup trop importante. Ce taux de répétition n'est pas adapté aux nanostructures dont le temps de vie est supérieur à 10 ns puisqu'il va conduire à une ré-excitation du système alors que l'ensemble des porteurs ne se sont pas recombinés.

Pour réduire la fréquence de répétition, nous utilisons un *sélecteur d'impulsions*, ou *pulse picker* en anglais. Le sélecteur utilisé dans notre montage est basé sur un modulateur acousto-optique. Ce dispositif est composé d'un cristal de quartz (TeO_2) reposant sur un oscillateur piézoélectrique. L'application d'un signal électrique sur l'oscillateur permet d'envoyer une onde acoustique dans le cristal de quartz modifiant ainsi ses propriétés optiques. Lorsque le laser passe au travers du TeO_2, une partie des impulsions sont défléchies et récupérées pour être utilisées.

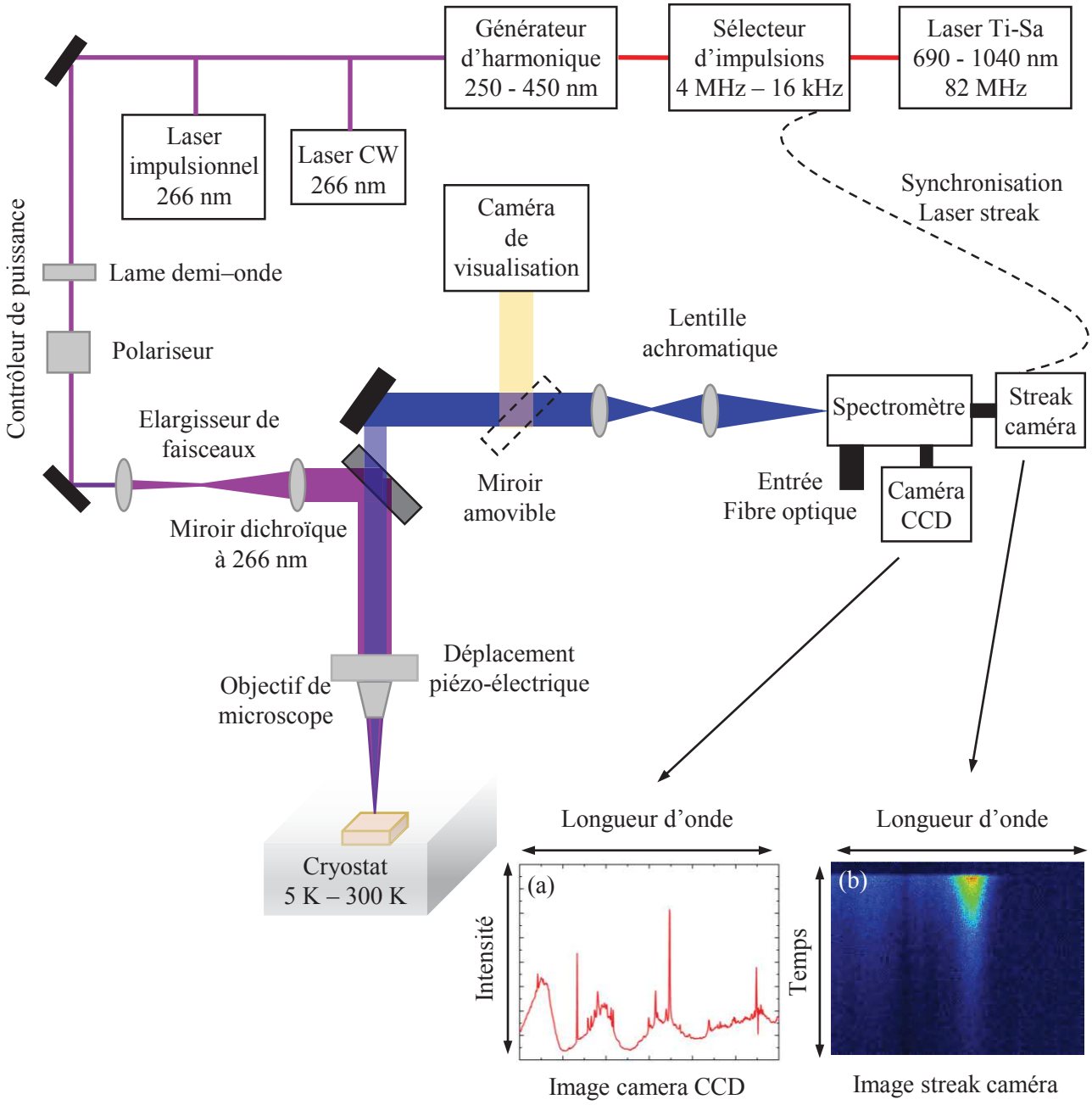


FIGURE A.2 – *Schéma du montage expérimental de micro-photoluminescence. Le panneau (a) présente une image à la caméra à balayage de fentes de la photoluminescence résolue temporellement d'un ensemble de boîtes quantiques GaN/AlN. Le panneau (b) présente un spectre de microphotoluminescence continue de quelques boîtes quantiques GaN/AlN où les pics fins représentent la signature optique d'une boîte quantique unique.*

Le signal électrique appliqué à l'oscillateur permet de choisir le taux de répétition en sortie du sélecteur d'impulsions.

Le signal de luminescence de l'échantillon est analysé par le spectromètre et au lieu d'être

renvoyé sur la caméra CCD, nous l'envoyons sur une caméra à balayage de fentes. La caméra est synchronisée avec le sélecteur d'impulsions de façon à ce que le départ de chaque mesure coïncide avec une impulsion laser. Les photons récoltés sont alors transformés en électrons à l'aide d'une photocathode. Ces électrons sont ensuite envoyés sur un écran phosphorescent en passant entre deux électrodes à balayage de tension. La tension entre les deux électrodes augmente avec le temps de façon à ce que les électrons arrivés en premiers ne soit pas défléchis au même endroit que ceux arrivés en derniers. La figure A.3, extraite de la référence [149] où des informations complémentaires peuvent être trouvées, présente le schéma de principe d'une caméra à balayage de fentes.

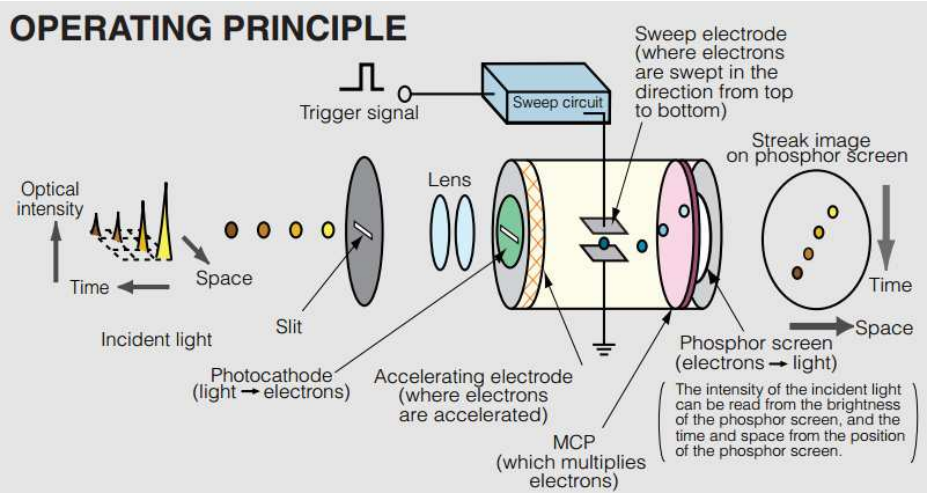


FIGURE A.3 – *Schéma de principe d'une caméra à balayage de fente.*

Notre caméra peut être utlisée dans deux modes différents ; le mode vidéo, qui permet une acquisition en temps réel mais dont le rapport signal/bruit est très mauvais, et un mode comptage de photons, où les durées d'acquisitions dépendent de l'émission de l'échantillon et peuvent atteindre plusieurs heures, mais qui ont l'avantage d'avoir un rapport sinal/bruit d'au moins deux décades.

Finalement, l'image obtenue correspond à la luminescence de l'échantillon, moyennée sur le temps d'acquisition choisi, résolue spectralement et temporellement. Le détecteur de notre caméra permet de faire des mesures sur la plage spectrale 200 $nm - 800$ nm avec une résolution temporelle ultime de 1 ps.

Annexe B

Simulation numérique : émetteur intégré en microcavité planaire

Nous présentons dans cette annexe le modèle développé, avec l'aide de B. Guizal, pour réaliser l'optimisation du dessin de nos microcavités planaires. Nous traiterons dans un premier temps le cas d'une microcavité sans source interne pour développer par la suite les calculs relatifs au cas d'un émetteur dans une microcavité planaire. Seul les calculs relatifs à une onde polarisée TE seront détaillés, ceux pour une onde TM étant strictement identique et ne se différenciant que par l'ajout d'une constante multiplicative valant $\frac{1}{\epsilon_p}$ [150].

B.1 Transmission et réflectivité d'une microcavité

La transmission et de réflectivité d'une cavité optique de type Fabry-Pérot, schématisée figure B.1, peuvent être calculées simplement à l'aide de *la méthode des matrices de transfert*. Cette technique permet de déterminer, grâce à un calcul de proche en proche, les coefficients de transmission et de réflectivité de la structure en utilisant les conditions de continuité aux interfaces pour la propagation d'une onde plane monochromatique.

Au sein d'une couche p composant la microcavité, l'expression de l'amplitude d'une onde électromagnétique est donnée par la partie réelle de la somme de deux ondes planes contra-propagative :

$$u_p(x,z) = a_p e^{i(k_x^p x + k_z^p z)} + b_p e^{i(k_x^p x - k_z^p z)} \tag{B.1}$$

où a_p et b_p représentent respectivement les amplitudes des ondes se propageant vers la droite et vers la gauche et k_x^p et k_z^p sont respectivement les vecteurs d'ondes selon l'axe x et l'axe z.

L'écriture des équations de Fresnel nous permet d'avoir les conditions de continuité à l'interface entre deux couches :

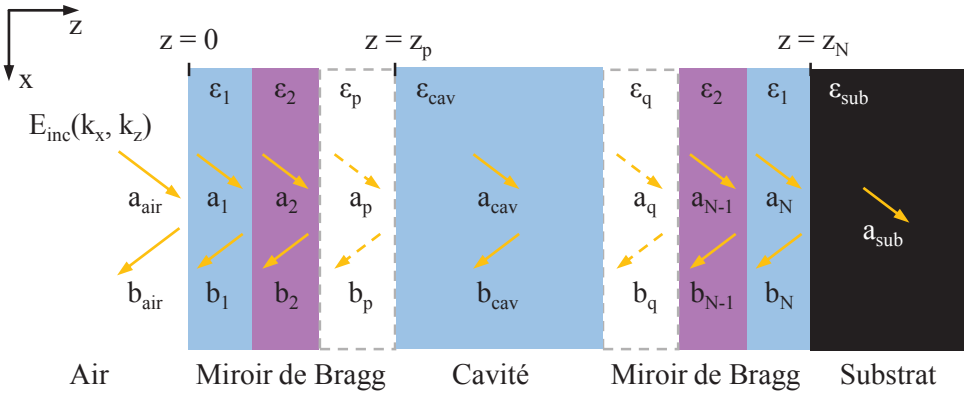


FIGURE B.1 – *Schéma de la propagation d'une onde plane au sein d'une microcavité planaire de type Fabry-Pérot. Les coefficients a_p et b_p représentent les amplitudes de l'onde plane se propageant respectivement vers la gauche et vers la droite.*

$$u_p(x,z) = u_{p+1}(x,z) \tag{B.2}$$

$$\frac{\partial}{\partial z}u(x,z) = \frac{\partial}{\partial z}u_{p+1}(x,z) \tag{B.3}$$

L'utilisation de ces conditions va nous permettre de calculer les coefficients de transmission et de réflexion de la structure en calculant les amplitudes a_p et b_p à chaque interface. Ainsi, en $z = 0$, nous avons :

$$a_{air}e^{ik_z^{air}\times 0} + b_{air}e^{-ik_z^{air}\times 0} = a_1 e^{ik_z^1\times 0} + b_1 e^{-ik_z^1\times 0} \tag{B.4}$$

$$k_z^{air}\left[a_{air}e^{ik_z^{air}\times 0} - b_{air}e^{-ik_z^{air}\times 0}\right] = k_z^1\left[a_1 e^{ik_z^1\times 0} - b_1 e^{-ik_z^1\times 0}\right] \tag{B.5}$$

en $z = z_p$:

$$a_p e^{ik_z^p\times z_p} + b_p e^{-ik_z^p\times z_p} = a_{cav}e^{ik_z^{cav}\times z_p} + b_{cav}e^{-ik_z^{cav}\times z_p} \tag{B.6}$$

$$k_z^p\left[a_p e^{ik_z^p\times z_p} - b_p e^{-ik_z^p\times z_p}\right] = k_z^{cav}\left[a_{cav}e^{ik_z^{cav}\times z_p} - b_{cav}e^{-ik_z^{cav}\times z_p}\right] \tag{B.7}$$

et finalement, en $z = z_N$:

$$a_N e^{ik_z^N\times z_N} + b_N e^{-ik_z^N\times z_N} = a_{sub}e^{ik_z^{sub}\times z_N} + 0\times e^{-ik_z^{sub}\times z_N} \tag{B.8}$$

$$k_z^N\left[a_N e^{ik_z^N\times z_N} - b_N e^{-ik_z^N\times z_N}\right] = k_z^{sub}\left[a_{sub}e^{ik_z^{sub}\times z_N} - 0\times e^{-ik_z^{sub}\times z_N}\right] \tag{B.9}$$

Pour ce dernier cas, nous supposons que le substrat est un milieu semi-infini et il n'y a donc

pas d'onde réfléchie provenant de l'infini, d'où $b_{sub} = 0$.

Afin d'alléger l'ensemble des notations, nous passons en notation matricielle. En $z = 0$, les expressions précédemment établies deviennent :

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{air} & -k_z^{air} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{air} \\ b_{air} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{1} & -k_z^{1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_1 \\ b_1 \end{bmatrix} \tag{B.10}$$

en $z = z_p$, nous avons :

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{p} & -k_z^{p} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{ik_z^p z_p} & 0 \\ 0 & e^{-ik_z^p z_p} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_p \\ b_p \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{cav} & -k_z^{cav} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{ik_z^{cav} z_p} & 0 \\ 0 & e^{-ik_z^{cav} z_p} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{cav} \\ b_{cav} \end{bmatrix} \tag{B.11}$$

et en $z = z_N$:

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{N} & -k_z^{N} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{ik_z^N z_N} & 0 \\ 0 & e^{-ik_z^N z_N} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_N \\ b_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{sub} & -k_z^{sub} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{sub} \\ 0 \end{bmatrix} \tag{B.12}$$

Le calcul de proche en proche des amplitudes a_n et b_n va nous permettre de remonter aux amplitudes transmise et réfléchie par la microcavité grâce à la formule :

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{air} & -k_z^{air} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{air} \\ b_{air} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{1} & -k_z^{1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{-ik_z^1 z_1} & 0 \\ 0 & e^{ik_z^1 z_1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{1} & -k_z^{1} \end{bmatrix}^{-1} \times \ldots \times \begin{bmatrix} a_{sub} \\ 0 \end{bmatrix} \tag{B.13}$$

Soit :

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{air} & -k_z^{air} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{air} \\ b_{air} \end{bmatrix} = \underbrace{T_1 \times \ldots \times T_p \times \ldots \times T_N}_{=\mathcal{T}} \times \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{sub} & -k_z^{sub} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{sub} \\ 0 \end{bmatrix} \tag{B.14}$$

où le terme :

$$T_p = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{p} & -k_z^{p} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{-ik_z^p (z_{p+1} - z_p)} & 0 \\ 0 & e^{ik_z^p (z_{p+1} - z_p)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{p} & -k_z^{p} \end{bmatrix}^{-1} \tag{B.15}$$

est appelé matrice de transfert du système.

B.2 Source à l'intérieur d'une microcavité

Nous considérons maintenant une microcavité à l'intérieur de laquelle est placé un émetteur comme schématisé sur la figure B.2.

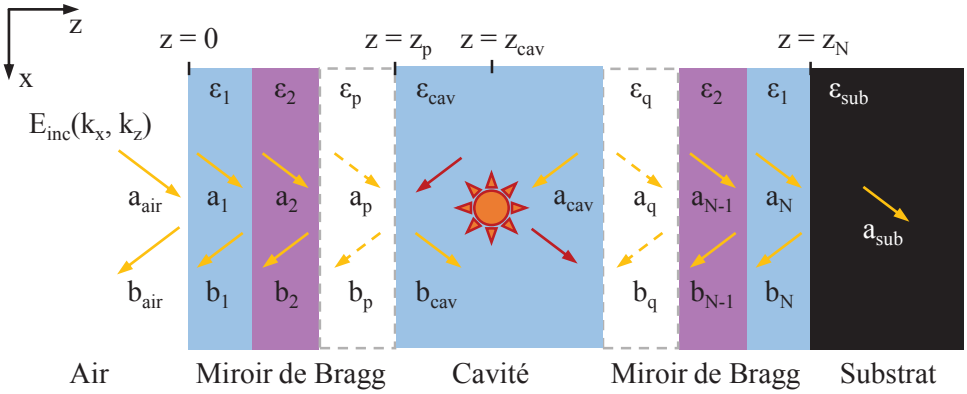


FIGURE B.2 – *Schéma de propagation d'une onde plane émise par une source au sein d'une cavité type Fabry-Perot. Les flèches rouges représentent l'onde émise par la source.*

Dans ce cas, l'expression de l'amplitude d'une onde électromagnétique au sein de la cavité vaut :

$$u_{cav}(x,z) = a_{cav}e^{i(k_x^{cav}x+k_z^{cav}z)} + b_{cav}e^{i(k_x^{cav}x-k_z^{cav}z)} + e^{i(k_x^{cav}x+k_z^{cav}(|z-z_{cav}|))} \tag{B.16}$$

où le terme $e^{i(k_x^{cav}x+k_z^{cav}(|z-z_{cav}|))}$ représente l'émission d'ondes planes par l'émetteur.

L'équation B.14 devient alors :

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{air} & -k_z^{air} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{air} \\ b_{air} \end{bmatrix} = \mathcal{T}_{tot} \times \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ k_z^{sub} & -k_z^{sub} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{sub} \\ b_{sub} \end{bmatrix} + \mathcal{T}_{cav} \begin{bmatrix} 1 \\ k_z^{cav} \end{bmatrix} e^{ik_z^{cav}(z-z_{cav})} - \mathcal{T}_{\mathrm{DBR1}} \begin{bmatrix} 1 \\ -k_z^{cav} \end{bmatrix} e^{ik_z^{cav}z_{cav}} \tag{B.17}$$

où $\mathcal{T}_{tot}$ est la matrice de transfert totale de la structure, $\mathcal{T}_{cav}$ est la matrice de transfert du miroir de Bragg supérieur et de la cavité et $\mathcal{T}_{\mathrm{DBR1}}$ est la matrice de transfert du miroir de Bragg supérieur.

L'air et le substrat étant considérés comme semi-infinis, nous avons $a_{air} = b_{substrat} = 0$. Cela nous permet de reformuler l'équation B.17 sous forme simplifiée :

$$\begin{bmatrix} 0 \\ b_{air} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{1,1} & T_{1,2} \\ T_{2,1} & T_{2,2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{sub} \\ 0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \end{bmatrix} e^{ik_z^{cav}(z-z_{cav})} - \begin{bmatrix} \beta_1 \\ \beta_2 \end{bmatrix} e^{ik_z^{cav} z_{cav}} \tag{B.18}$$

et ainsi de calculer l'intensité extraite de la structure vers l'air à partir des relations suivantes :

$$0 = T_{1,1} a_{sub} + \alpha_1 e^{ik_z^{cav}(z-z_{cav})} - \beta_1 e^{ik_z^{cav} z_{cav}} \tag{B.19}$$

$$b_{air} = T_{2,1} a_{sub} + \alpha_2 e^{ik_z^{cav}(z-z_{cav})} - \beta_2 e^{ik_z^{cav} z_{cav}} \tag{B.20}$$

B.3 Réalisation des calculs numériques d'optimisation

L'ensemble de nos simulations numériques ont été effectués sous le logiciel de calcul matriciel MATLAB ®. Afin de simplifier le processus d'optimisation de la microcavité, dont les paramètres comme l'épaisseur des miroirs de Bragg ou le nombre de couches les composants sont amenés à changer de nombreuses fois avant de trouver les valeurs idéales, nous avons développé une interface graphique. Cette interface est présentée figure B.3.

La fenêtre encadrée en rouge nous permet de définir les paramètres essentiels de la microcavité, à savoir, la composition des miroirs de Bragg, de la cavité et du substrat, le nombre de couches composant les deux miroirs et l'épaisseur de chaque matériaux formant la structure. Une fois la microcavité définie, il est possible de calculer sa réflectivité en fonction de plusieurs variables comme l'énergie, l'angle d'incidence de l'onde ou l'épaisseur de la cavité.

La fenêtre présentée en haut de la figure B.3, encadrée en bleu, présente le calcul de la réflectivité d'une microcavité AlN à miroirs de Bragg AlN/AlGaN. L'interface graphique nous permet de choisir simplement l'angle d'incidence de l'onde et sa polarisation si elle n'est pas en incidence normale. De plus, nous pouvons facilement sauvegarder le spectre afin de l'analyser avec des outils d'analyse de données comme le logiciel OriginLab ®.

Nous pouvons également calculer l'intensité émise par une boîte quantique située à l'intérieur de la microcavité en fonction de son énergie d'émission, de son angle d'émission à l'intérieur de la cavité ou encore en fonction de sa position dans la microcavité. La fenêtre encadrée en vert au bas de la figure B.3 présente le calcul de l'intensité extraite, pour une microcavité AlN à miroirs de Bragg AlN/AlGaN, en fonction de l'énergie et de l'angle d'émission. Pour finir, nous pouvons également calculer l'intensité intégrée sur toute la plage angulaire de collection, qui va de $-27°$ à $+27°$, pour la comparer au cas sans microcavité et ainsi calculer le facteur d'augmentation de collection.

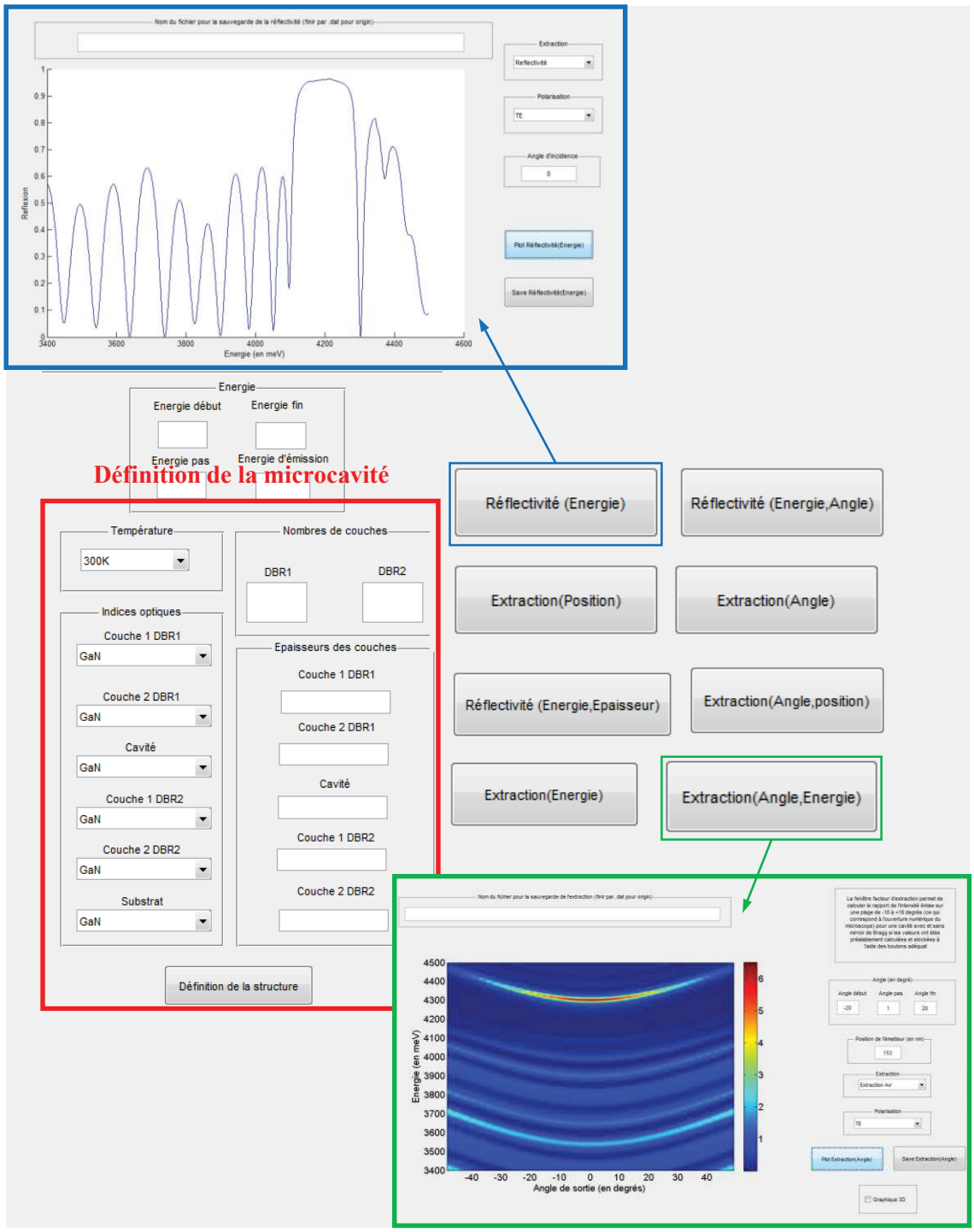


FIGURE B.3 – *Capture d'écran de l'interface graphique permettant de définir la microcavité et de choisir le type de calcul (encadrée en rouge). Exemples de spectre de réflectivité (encadré en bleu) et d'image en fausse de couleur de l'intensité extraite en fonction de l'énergie et de l'angle d'émission.*

Annexe C

Résumé des échantillons de boîtes quantiques en microcavités planaires

Cette annexe décrit brièvement sous forme d'infographie les caractéristiques des échantillons de boîtes quantiques en microcavités planaires étudiés au chapitre 2.

C.1 La microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$

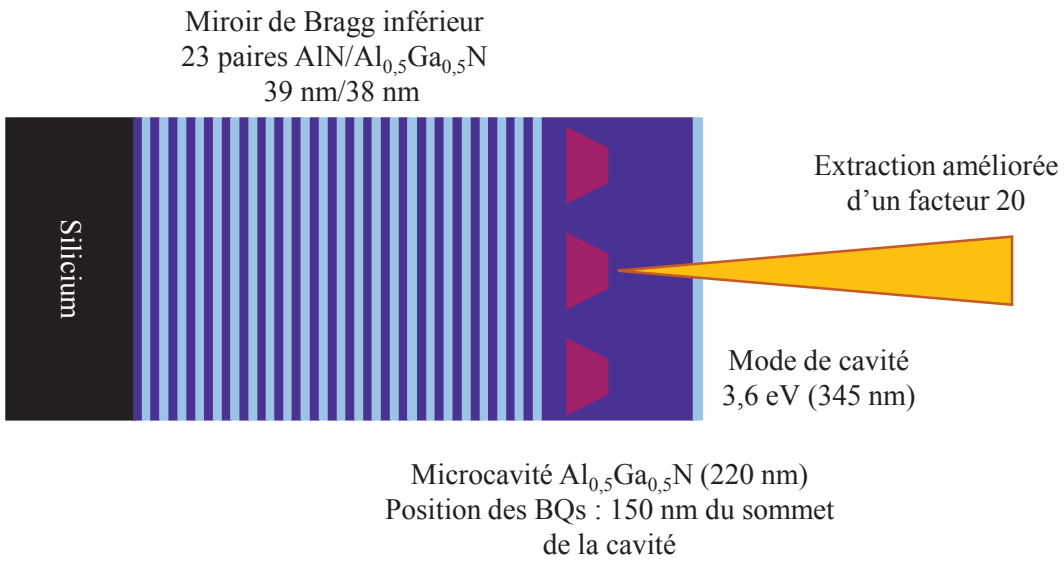


FIGURE C.1 – *Résumé de la microcavité $Al_{0,5}Ga_{0,5}N$.*

C.2 La microcavité AlN

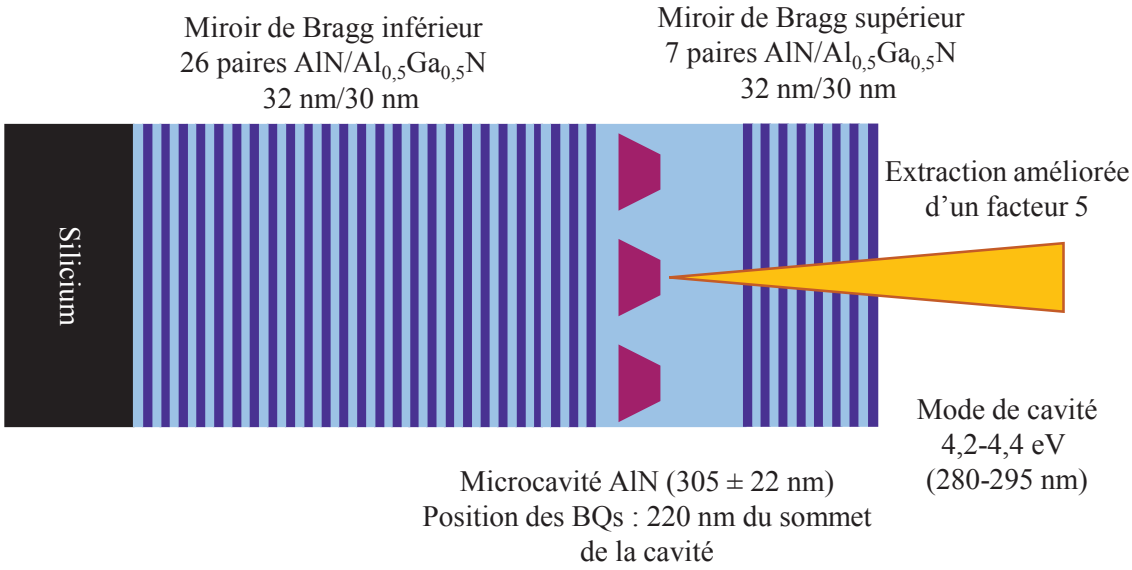


FIGURE C.2 – *Résumé des propriétés de la microcavité AlN.*

C.3 La microcavité AlN/air

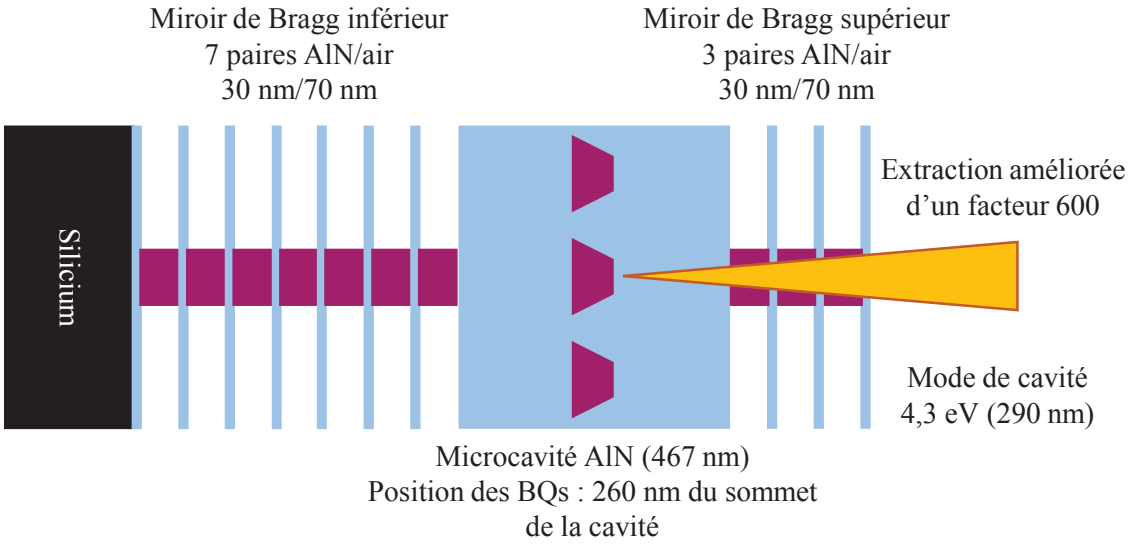


FIGURE C.3 – *Résumé des propriétés de la microcavité AlN/air.*

Bibliographie

[1] Nick Jr Holonyak and S. F. Bevacqua. Coherent (visible) light emission from GaAs1xPx junctions. *Applied Physics Letters*, 1(4) :82–83, December 1962. *Citation page 8*

[2] Shuji Nakamura, Takashi Mukai, and Masayuki Senoh. High-Power GaN P-N Junction Blue-Light-Emitting Diodes. *Japanese Journal of Applied Physics*, 30(12A) :L1998, December 1991. *Citation page 8*

[3] Hiroshi Amano, Masahiro Kito, Kazumasa Hiramatsu, and Isamu Akasaki. P-Type Conduction in Mg-Doped GaN Treated with Low-Energy Electron Beam Irradiation (LEEBI). *Japanese Journal of Applied Physics*, 28(12A) :L2112, December 1989. *Citation page 8*

[4] M. Stutzmann, G. Steinhoff, M. Eickhoff, O. Ambacher, C.E. Nebel, J. Schalwig, R. Neuberger, and G. Müller. GaN-based heterostructures for sensor applications. *Diamond and Related Materials*, 11(3-6) :886–891, March 2002. *Citation page 8*

[5] Markus Hofstetter, John Howgate, Martin Schmid, Sebastian Schoell, Matthias Sachsenhauser, Denis Adigüzel, Martin Stutzmann, Ian D. Sharp, and Stefan Thalhammer. In vitro bio-functionality of gallium nitride sensors for radiation biophysics. *Biochemical and Biophysical Research Communications*, 424(2) :348–353, July 2012. *Citation page 8*

[6] Siddhartha Ghosh and Gianluca Piazza. Piezoelectric actuation of aluminum nitride contour mode optomechanical resonators. *Optics Express*, 23(12) :15477, June 2015. *Citation page 8*

[7] Markus Aspelmeyer, Tobias J. Kippenberg, and Florian Marquardt. Cavity optomechanics. *Reviews of Modern Physics*, 86(4) :1391–1452, December 2014. *Citation page 9*

[8] Mark J. Holmes, Kihyun Choi, Satoshi Kako, Munetaka Arita, and Yasuhiko Arakawa. Room Temperature Triggered Single Photon Emission from a III-Nitride Site-Controlled Nanowire Quantum Dot. *Nano Letters*, January 2014. *Citation page 9*

[9] H. W. Choi, K. N. Hui, P. T. Lai, P. Chen, X. H. Zhang, S. Tripathy, J. H. Teng, and S. J. Chua. Lasing in GaN microdisks pivoted on Si. *Applied Physics Letters*, 89(21) :211101, November 2006. *Citation page 9*

[10] Irina A. Ostapenko, Gerald Hönig, Sven Rodt, Andrei Schliwa, Axel Hoffmann, Dieter Bimberg, Matthias-René Dachner, Marten Richter, Andreas Knorr, Satoshi Kako, and

Yasuhiko Arakawa. Exciton acoustic-phonon coupling in single GaN/AlN quantum dots. *Physical Review B*, 85(8) :081303, February 2012. *Citation page 9*

[11] T. Bretagnon, P. Lefebvre, P. Valvin, R. Bardoux, T. Guillet, T. Taliercio, B. Gil, N. Grandjean, F. Semond, B. Damilano, A. Dussaigne, and J. Massies. Radiative lifetime of a single electron-hole pair in GaNAlN quantum dots. *Physical Review B*, 73(11) :113304, March 2006. *8 citations pages 9, 30, 36, 38, 42, 45, 59, et 90*

[12] D. Simeonov, A. Dussaigne, R. Butté, and N. Grandjean. Complex behavior of biexcitons in GaN quantum dots due to a giant built-in polarization field. *Physical Review B*, 77(7) :075306, February 2008. *Citation page 9*

[13] V. N. Jmerik, A. M. Mizerov, A. A. Sitnikova, P. S. Kop'ev, S. V. Ivanov, E. V. Lutsenko, N. P. Tarasuk, N. V. Rzheutskii, and G. P. Yablonskii. Low-threshold 303 nm lasing in AlGaN-based multiple-quantum well structures with an asymmetric waveguide grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy on c-sapphire. *Applied Physics Letters*, 96(14) :141112, April 2010. *2 citations pages 9 et 87*

[14] Xiao-Hang Li, Theeradetch Detchprohm, Tsung-Ting Kao, Md Mahbub Satter, Shyh-Chiang Shen, P. Douglas Yoder, Russell D. Dupuis, Shuo Wang, Yong O. Wei, Hongen Xie, Alec M. Fischer, Fernando A. Ponce, Tim Wernicke, Christoph Reich, Martin Martens, and Michael Kneissl. Low-threshold stimulated emission at 249 nm and 256 nm from AlGaN-based multiple-quantum-well lasers grown on sapphire substrates. *Applied Physics Letters*, 105(14) :141106, October 2014. *2 citations pages 9 et 124*

[15] Martin Martens, Frank Mehnke, Christian Kuhn, Chirstoph Reich, Viola Kueller, Arne Knauer, Carsten Netzel, Carsten Hartmann, Juergen Wollweber, Jens Rass, Tim Wernicke, Matthias Bickermann, Markus Weyers, and Michael Kneissl. Performance Characteristics of UV-C AlGaN-Based Lasers Grown on Sapphire and Bulk AlN Substrates. *IEEE Photonics Technology Letters*, 26(4) :342–345, February 2014. *3 citations pages 9, 87, et 124*

[16] Adele C. Tamboli, Elaine D. Haberer, Rajat Sharma, Kwan H. Lee, Shuji Nakamura, and Evelyn L. Hu. Room-temperature continuous-wave lasing in GaN/InGaN microdisks. *Nature Photonics*, 1(1) :61–64, January 2007. *2 citations pages 10 et 125*

[17] Alexander Woolf, Tim Puchtler, Igor Aharonovich, Tongtong Zhu, Nan Niu, Danqing Wang, Rachel Oliver, and Evelyn L. Hu. Distinctive signature of indium gallium nitride quantum dot lasing in microdisk cavities. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 111(39) :14042–14046, September 2014. *Citation page 10*

[18] Shigefusa F. Chichibu, Akira Uedono, Takeyoshi Onuma, Benjamin A. Haskell, Arpan Chakraborty, Takahiro Koyama, Paul T. Fini, Stacia Keller, Steven P. DenBaars, James S. Speck, Umesh K. Mishra, Shuji Nakamura, Shigeo Yamaguchi, Satoshi Kamiyama, Hiroshi Amano, Isamu Akasaki, Jung Han, and Takayuki Sota. Origin of defect-insensitive emission probability in In-containing (Al,In,Ga)N alloy semiconductors. *Nature Materials*, 5(10) :810–816, October 2006. *2 citations pages 10 et 87*

[19] M. Bürger, G. Callsen, T. Kure, A. Hoffmann, A. Pawlis, D. Reuter, and D. J. As. Lasing properties of non-polar GaN quantum dots in cubic aluminum nitride microdisk cavities. *Applied Physics Letters*, 103(2) :021107, July 2013. *2 citations pages 10 et 87*

[20] Sylvain Sergent. *Fabrication and study of nitride-based photonic nanocavities containing GaN quantum dots for UV emitters integrated on silicon.* Thèse de doctorat, CRHEA - Valbonne, Université Sophia Antipolis - Nice, 2010. *10 citations pages 12, 14, 33, 43, 44, 73, 78, 79, 80, et 102*

[21] A. Y. Cho and J. R. Arthur. Molecular beam epitaxy. *Progress in Solid State Chemistry*, 10, Part 3 :157–191, 1975. *Citation page 12*

[22] Concept Drawing of a Molecular Beam Epitaxy Growth chamber, 2013. *Citation page 12*

[23] G. Vuye, S. Fisson, V. Nguyen-Van, Y. Wang, J. Rivory, and F. Abelès. Temperature dependence of the dielectric function of silicon using in situ spectroscopic ellipsometry. *Thin Solid Films*, 233 :166–170, 1993. *Citation page 13*

[24] H.-J. Hagemann, W. Gudat, and C. Kunz. Optical constants from the far infrared to the x-ray region : Mg, Al, Cu, Ag, Au, Bi, C, and A1 2 O 3. *JOSA*, 65(6) :742–744, 1975. *Citation page 13*

[25] Peter TB Shaffer. Refractive index, dispersion, and birefringence of silicon carbide polytypes. *Applied optics*, 10(5) :1034–1036, 1971. *Citation page 13*

[26] Michael A. Reshchikov and Hadis Morkoç. Luminescence properties of defects in GaN. *Journal of Applied Physics*, 97(6) :061301, March 2005. *2 citations pages 14 et 24*

[27] Tomoya Sugahara, Hisao Sato, Maosheng Hao, Yoshiki Naoi, Satoshi Kurai, Satoru Tottori, Kenji Yamashita, Katsushi Nishino, Linda T. Romano, and Shiro Sakai. Direct Evidence that Dislocations are Non-Radiative Recombination Centers in GaN. *Japanese Journal of Applied Physics*, 37(Part 2, No. 4A) :L398–L400, April 1998. *Citation page 14*

[28] Tanya Paskova, Drew A Hanser, and Keith R Evans. GaN Substrates for III-Nitride Devices. *Proceedings of the IEEE*, 98(7) :1324–1338, July 2010. *Citation page 15*

[29] B. Beaumont, Ph. Vennéguès, and P. Gibart. Epitaxial Lateral Overgrowth of GaN. *physica status solidi (b)*, 227(1) :1–43, September 2001. *Citation page 15*

[30] M Khoury, A Courville, B Poulet, M Teisseire, E Beraudo, M J Rashid, E Frayssinet, B Damilano, F Semond, O Tottereau, and P Vennéguès. Imaging and counting threading dislocations in c-oriented epitaxial GaN layers. *Semiconductor Science and Technology*, 28(3) :035006, March 2013. *2 citations pages 15 et 16*

[31] I. Grzegory and S. Porowski. GaN substrates for molecular beam epitaxy growth of homoepitaxial structures. *Thin Solid Films*, 367(1–2) :281–289, May 2000. *Citation page 15*

[32] Shuji Nakamura. GaN on sapphire, cross section TEM, 1980. *Citation page 16*

[33] Claudio R. Miskys, Michael K. Kelly, Oliver Ambacher, and Martin Stutzmann. Freestanding GaN-substrates and devices. *physica status solidi (c)*, 0(6) :1627–1650, September 2003. *Citation page 17*

[34] M. Balkanski and J. Des Cloizeaux. Structure de bandes des cristaux de type wurtzite. Transitions optiques intrinsèques dans le CdS. *J. phys. radium*, 21(12) :825–834, 1960. *Citation page 18*

[35] I. Vurgaftman and J. R. Meyer. Band parameters for nitrogen-containing semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 94(6) :3675–3696, August 2003. *3 citations pages 18, 28, et 128*

[36] Neil W. Ashcroft and N. David Mermin. *Solid state physics*. Holt, Rinehart and Winston, New York, 1976. *2 citations pages 18 et 31*

[37] E. S. Hellman. The polarity of GaN : a critical review. *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research*, 3 :e11, 1998. *Citation page 19*

[38] B. Daudin, J. L. Rouvière, and M. Arlery. Polarity determination of GaN films by ion channeling and convergent beam electron diffraction. *Applied Physics Letters*, 69(17) :2480–2482, October 1996. *Citation page 19*

[39] F. Tuomisto, K. Saarinen, B. Lucznik, I. Grzegory, H. Teisseyre, T. Suski, S. Porowski, P. R. Hageman, and J. Likonen. Effect of growth polarity on vacancy defect and impurity incorporation in dislocation-free GaN. *Applied Physics Letters*, 86(3) :031915, January 2005. *Citation page 19*

[40] S. Pezzagna, P. Vennéguès, N. Grandjean, A. D. Wieck, and J. Massies. Submicron periodic poling and chemical patterning of GaN. *Applied Physics Letters*, 87(6) :062106, August 2005. *Citation page 19*

[41] Joseph L. Birman. Polarization of Fluorescence in CdS and ZnS Single Crystals. *Physical Review Letters*, 2(4) :157–159, February 1959. *Citation page 19*

[42] D. G. Thomas and J. J. Hopfield. Exciton Spectrum of Cadmium Sulfide. *Physical Review*, 116(3) :573–582, November 1959. *Citation page 19*

[43] J. J. Hopfield. Fine structure in the optical absorption edge of anistropic crystals. *J. Phys. Chem. Solids*, 15 :97–105, October 1959. *Citation page 20*

[44] Bernard Gil. *Physics of Wurtzite Nitrides and Oxides*, volume 197 of *Springer Series in Materials Science*. Springer International Publishing, 2014. *3 citations pages 20, 22, et 23*

[45] Peter Ramvall, Philippe Riblet, Shintaro Nomura, Yoshinobu Aoyagi, and Satoru Tanaka. Optical properties of GaN quantum dots. *Journal of Applied Physics*, 87(8) :3883–3890, April 2000. *Citation page 22*

[46] T. Onuma, S. F. Chichibu, T. Sota, K. Asai, S. Sumiya, T. Shibata, and M. Tanaka. Exciton spectra of an AlN epitaxial film on (0001) sapphire substrate grown by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy. *Applied Physics Letters*, 81(4) :652–654, July 2002. *Citation page 22*

[47] Huaxiang Fu, Lin-Wang Wang, and Alex Zunger. Excitonic exchange splitting in bulk semiconductors. *Physical Review B*, 59(8) :5568–5574, February 1999. *Citation page 22*

[48] J. J. Hopfield. Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals. *Physical Review*, 112(5) :1555–1567, December 1958. *Citation page 22*

[49] E. F. Schubert, E. O. Göbel, Y. Horikoshi, K. Ploog, and H. J. Queisser. Alloy broadening in photoluminescence spectra of AlGaAs. *Physical Review B*, 30(2) :813–820, July 1984. *Citation page 22*

[50] Andenet Alemu, Bernard Gil, Michel Julier, and Shuji Nakamura. Optical properties of wurtzite GaN epilayers grown on A-plane sapphire. *Physical Review B*, 57(7) :3761–3764, February 1998. *Citation page 23*

[51] K. Kornitzer, T. Ebner, K. Thonke, R. Sauer, C. Kirchner, V. Schwegler, M. Kamp, M. Leszczynski, I. Grzegory, and S. Porowski. Photoluminescence and reflectance spectroscopy of excitonic transitions in high-quality homoepitaxial GaN films. *Physical Review B*, 60(3) :1471–1473, July 1999. *Citation page 24*

[52] M. A. Reshchikov, D. O. Demchenko, A. Usikov, H. Helava, and Yu. Makarov. Carbon defects as sources of the green and yellow luminescence bands in undoped GaN. *Physical Review B*, 90(23) :235203, December 2014. *Citation page 24*

[53] N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, P. Disseix, D. Byrne, F. Semond, and J. Massies. Determination of the refractive indices of AlN, GaN, and AlGaN grown on (111) Si substrates. *J. Appl. Phys.*, 93(9) :5222–5226, 2003. *3 citations pages 25, 77, et 100*

[54] Umit Ozgur, Grady Webb-Wood, Henry O. Everitt, Feng Yun, and Hadis Morkoc. Systematic measurement of Al_xga_{1x}N refractive indices. *Applied Physics Letters*, 79(25) :4103, 2001. *Citation page 25*

[55] Peter Y. Yu and Manuel Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. Graduate Texts in Physics. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2010. *Citation page 25*

[56] N Antoine-Vincent. *Recherche du couplage fort lumière-matière dans des microcavités nitrurées*. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal - Clermont Ferrand, January 2003. *Citation page 26*

[57] Claus Franz Klingshirn. *Semiconductor optics*. Springer, Berlin, 1995. *Citation page 26*

[58] D. Brunner, H. Angerer, E. Bustarret, F. Freudenberg, R. Höpler, R. Dimitrov, O. Ambacher, and M. Stutzmann. Optical constants of epitaxial AlGaN films and their temperature dependence. *Journal of Applied Physics*, 82(10) :5090, 1997. *Citation page 26*

[59] J. F. Nye. *Physical properties of crystals : their representation by tensors and matrices*. Clarendon Press ; Oxford University Press, Oxford [Oxfordshire] : New York, 1st published in pbk. with corrections, 1984 edition, 1984. *Citation page 27*

[60] Fabio Bernardini, Vincenzo Fiorentini, and David Vanderbilt. Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides. *Physical Review B*, 56(16) :R10024–R10027, October 1997. *2 citations pages 28 et 29*

[61] Hadis Morkoç. *Handbook of nitride semiconductors and devices, vol.1.* Wiley-VCH, 2008. *Citation page 28*

[62] E. T. Yu, X. Z. Dang, P. M. Asbeck, S. S. Lau, and G. J. Sullivan. Spontaneous and piezoelectric polarization effects in III–V nitride heterostructures. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 17(4) :1742–1749, 1999. *Citation page 29*

[63] Fabio Bernardini and Vincenzo Fiorentini. Macroscopic polarization and band offsets at nitride heterojunctions. *Physical Review B*, 57(16) :R9427, 1998. *Citation page 29*

[64] N. Grandjean, B. Damilano, S. Dalmasso, M. Leroux, M. Laügt, and J. Massies. Built-in electric-field effects in wurtzite AlGaN/GaN quantum wells. *Journal of Applied Physics*, 86(7) :3714–3720, October 1999. *2 citations pages 30 et 34*

[65] J. Brault, T. Huault, F. Natali, B. Damilano, D. Lefebvre, M. Leroux, M. Korytov, and J. Massies. Tailoring the shape of GaN/AlxGa1xN nanostructures to extend their luminescence in the visible range. *Journal of Applied Physics*, 105(3) :033519, February 2009. *2 citations pages 30 et 59*

[66] Pierre Lefebvre, Jacques Allègre, Bernard Gil, Henry Mathieu, Nicolas Grandjean, Mathieu Leroux, Jean Massies, and Pierre Bigenwald. Time-resolved photoluminescence as a probe of internal electric fields in GaN-(GaAl)N quantum wells. *Physical Review B*, 59(23) :15363–15367, June 1999. *Citation page 30*

[67] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique. Tome I.* Hermann, Paris, 1977. *Citation page 31*

[68] Lucio Claudio Andreani, Francesco Tassone, and Franco Bassani. Radiative lifetime of free excitons in quantum wells. *Solid State Communications*, 77(9) :641–645, March 1991. *2 citations pages 31 et 110*

[69] Gerald Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures.* Monographies de physique. Les Editions de Physique ; Halsted Press, Les Ulis Cedex, France : New York, N.Y, 1988. *2 citations pages 31 et 32*

[70] J. Y. Marzin and G. Bastard. Calculation of the energy levels in InAsGaAs quantum dots. *Solid State Communications*, 92(5) :437–442, November 1994. *Citation page 33*

[71] Wenfang Xie. Exciton states in a disk-like quantum dot. *Physica B : Condensed Matter*, 279(4) :253–256, May 2000. *Citation page 33*

[72] A. J. Williamson, L. W. Wang, and Alex Zunger. Theoretical interpretation of the experimental electronic structure of lens-shaped self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 62(19) :12963–12977, November 2000. *Citation page 33*

[73] S. Kalliakos, P. Lefebvre, and T. Taliercio. Nonlinear behavior of photoabsorption in hexagonal nitride quantum wells due to free carrier screening of the internal fields. *Physical Review B*, 67(20) :205307, May 2003. *Citation page 35*

[74] A. D. Andreev and E. P. O'Reilly. Theory of the electronic structure of GaN/AlN hexagonal quantum dots. *Physical Review B*, 62(23) :15851–15870, December 2000. *Citation page 35*

[75] M. Leroux, J. Brault, A. Kahouli, D. Maghraoui, B. Damilano, P. de Mierry, M. Korytov, Je-Hyung Kim, and Yong-Hoon Cho. Stark effect in ensembles of polar (0001) Al0.5ga0.5n/GaN quantum dots and comparison with semipolar (1122) ones. *Journal of Applied Physics*, 116(3) :034308, July 2014. *Citation page 37*

[76] Jin Seo Im, H. Kollmer, J. Off, A. Sohmer, F. Scholz, and A. Hangleiter. Reduction of oscillator strength due to piezoelectric fields in quantum wells. *Physical Review B*, 57(16) :R9435–R9438, April 1998. *Citation page 38*

[77] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. Homogeneous Linewidths in the Optical Spectrum of a Single Gallium Arsenide Quantum Dot. *Science*, 273(5271) :87–90, July 1996. *Citation page 41*

[78] David Press, Thaddeus D. Ladd, Bingyang Zhang, and Yoshihisa Yamamoto. Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses. *Nature*, 456(7219) :218–221, November 2008. *Citation page 41*

[79] Danny Kim, Samuel G. Carter, Alex Greilich, Allan S. Bracker, and Daniel Gammon. Ultrafast optical control of entanglement between two quantum-dot spins. *Nature Physics*, 7(3) :223–229, March 2011. *Citation page 41*

[80] T. M. Godden, J. H. Quilter, A. J. Ramsay, Yanwen Wu, P. Brereton, S. J. Boyle, I. J. Luxmoore, J. Puebla-Nunez, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. Coherent Optical Control of the Spin of a Single Hole in an InAs/GaAs Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 108(1) :017402, January 2012. *Citation page 41*

[81] R. Bardoux, T. Guillet, P. Lefebvre, T. Taliercio, T. Bretagnon, S. Rousset, B. Gil, and F. Semond. Photoluminescence of single GaNAlN hexagonal quantum dots on Si(111) : Spectral diffusion effects. *Physical Review B*, 74(19) :195319, November 2006. *2 citations pages 41 et 61*

[82] C. Kindel, S. Kako, T. Kawano, H. Oishi, Y. Arakawa, G. Hönig, M. Winkelnkemper, A. Schliwa, A. Hoffmann, and D. Bimberg. Exciton fine-structure splitting in GaN/AlN quantum dots. *Physical Review B*, 81(24) :241309, June 2010. *2 citations pages 41 et 78*

[83] Gerald Hönig, Gordon Callsen, Andrei Schliwa, Stefan Kalinowski, Christian Kindel, Satoshi Kako, Yasuhiko Arakawa, Dieter Bimberg, and Axel Hoffmann. Manifestation of unconventional biexciton states in quantum dots. *Nature Communications*, 5, December 2014. *2 citations pages 41 et 48*

[84] S. Kako, M. Miyamura, K. Tachibana, K. Hoshino, and Y. Arakawa. Size-dependent radiative decay time of excitons in GaN/AlN self-assembled quantum dots. *Applied Physics Letters*, 83(5) :984–986, August 2003. *2 citations pages 42 et 110*

[85] B. Damilano, N. Grandjean, F. Semond, J. Massies, and M. Leroux. From visible to white light emission by GaN quantum dots on Si(111) substrate. *Applied Physics Letters*, 75(7) :962–964, August 1999. *Citation page 43*

[86] M. Nirmal, D. J. Norris, M. Kuno, M. G. Bawendi, Al. L. Efros, and M. Rosen. Observation of the "Dark Exciton" in CdSe Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 75(20) :3728–3731, November 1995. *Citation page 47*

[87] Olivier Labeau, Philippe Tamarat, and Brahim Lounis. Temperature Dependence of the Luminescence Lifetime of Single CdSe/ZnS Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 90(25) :257404, June 2003. *Citation page 47*

[88] Anjana Bagga, P. K. Chattopadhyay, and Subhasis Ghosh. Dark and bright excitonic states in nitride quantum dots. *Physical Review B*, 71(11) :115327, March 2005. *Citation page 48*

[89] Max Born and Emil Wolf. *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Cambridge University Press, Cambridge ; New York, 7th expanded ed edition, 1999. *2 citations pages 50 et 51*

[90] Vincenzo Savona. Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells. In *Confined Photon Systems*, pages 173–242. Springer, 1999. *2 citations pages 51 et 52*

[91] H. Benisty, H. De Neve, and C. Weisbuch. Impact of planar microcavity effects on light extraction-Part I : basic concepts and analytical trends. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 34(9) :1612 –1631, September 1998. *3 citations pages 54, 57, et 58*

[92] A. Kastler. Atomes à I'lntérieur d'un Interféromètre Perot-Fabry. *Applied Optics*, 1(1) :17, January 1962. *Citation page 54*

[93] C. Dill, R. P. Stanley, U. Oesterle, D. Ochoa, and M. Ilegems. Effect of detuning on the angular emission pattern of high-efficiency microcavity light-emitting diodes. *Applied physics letters*, 73(26) :3812–3814, 1998. *Citation page 57*

[94] D. Ochoa, R. Houdré, R. P. Stanley, C. Dill, U. Oesterle, and M. Ilegems. Device simultaneous determination of the source and cavity parameters of a microcavity light-emitting diode. *Journal of Applied Physics*, 85(5) :2994–2996, March 1999. *Citation page 57*

[95] H. D. Robinson and B. B. Goldberg. Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 61(8) :R5086–R5089, February 2000. *2 citations pages 61 et 83*

[96] S. A. Empedocles, D. J. Norris, and M. G. Bawendi. Photoluminescence Spectroscopy of Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 77(18) :3873–3876, October 1996. *Citation page 61*

[97] Richard Bardoux. *Spectroscopie de boîtes quantiques individuelles GaN/AlN en phase hexagonale*. Thèse de doctorat, Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, November 2007. *Citation page 61*

[98] Alexei Altoukhov, Jacques Levrat, Eric Feltin, Jean-François Carlin, Antonino Castiglia, Raphaël Butté, and Nicolas Grandjean. High reflectivity airgap distributed Bragg reflectors realized by wet etching of AlInN sacrificial layers. *Applied Physics Letters*, 95(19) :191102–191102–3, November 2009. *Citation page 66*

[99] Rajat Sharma, Yong-Seok Choi, Chiou-Fu Wang, Aurélien David, Claude Weisbuch, Shuji Nakamura, and Evelyn L. Hu. Gallium-nitride-based microcavity light-emitting diodes with air-gap distributed Bragg reflectors. *Applied Physics Letters*, 91(21) :211108, November 2007. *Citation page 66*

[100] Renchun Tao, Munetaka Arita, Satoshi Kako, and Yasuhiko Arakawa. Fabrication and optical properties of non-polar III-nitride air-gap distributed Bragg reflector microcavities. *Applied Physics Letters*, 103(20) :201118, November 2013. *Citation page 67*

[101] R. Groh, G. Gerey, L. Bartha, and J. I. Pankove. On the thermal decomposition of GaN in vacuum. *physica status solidi (a)*, 26(1) :353–357, November 1974. *Citation page 67*

[102] M. Korytov, M. Benaissa, J. Brault, T. Huault, T. Neisius, and P. Vennéguès. Effects of capping on GaN quantum dots deposited on Al0.5ga0.5n by molecular beam epitaxy. *Applied Physics Letters*, 94(14) :143105, April 2009. *Citation page 72*

[103] A. Dadgar, A. Alam, T. Riemann, J. Bläsing, A. Diez, M. Poschenrieder, M. Strassburg, M. Heuken, J. Christen, and A. Krost. Crack-Free InGaN/GaN Light Emitters on Si(111). *physica status solidi (a)*, 188(1) :155–158, November 2001. *Citation page 72*

[104] Gordon Schmidt, Christoph Berger, Peter Veit, Sebastian Metzner, Frank Bertram, Jürgen Bläsing, Armin Dadgar, André Strittmatter, Jürgen Christen, Gordon Callsen, Stefan Kalinowski, and Axel Hoffmann. Direct evidence of single quantum dot emission from GaN islands formed at threading dislocations using nanoscale cathodoluminescence : A source of single photons in the ultraviolet. *Applied Physics Letters*, 106(25) :252101, June 2015. *Citation page 78*

[105] Gordon Callsen. *Advanced optical signatures of single, wurtzite GaN quantum dots : from fundamental exciton coupling mechanisms towards tunable photon statistics and hybrid-quasiparticles*. PhD Thesis, Technischen Universität Berlin, Berlin, August 2015. *Citation page 83*

[106] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. Few-particle effects in single CdTe quantum dots. *Physical Review B*, 65(12) :121314, March 2002. *Citation page 83*

[107] Y. Yamamoto, S. Machida, and G. Björk. Microcavity semiconductor laser with enhanced spontaneous emission. *Physical Review A*, 44(1) :657–668, July 1991. *Citation page 85*

[108] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton, and R. A. Logan. Whispering-gallery mode microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 60(3) :289–291, January 1992. *3 citations pages 85, 97, et 102*

[109] O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brien, P. D. Dapkus, and I. Kim. Two-Dimensional Photonic Band-Gap Defect Mode Laser. *Science*, 284(5421) :1819–1821, June 1999. *Citation page 85*

[110] S. Reitzenstein, A. Bazhenov, A. Gorbunov, C. Hofmann, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, J. P. Reithmaier, V. D. Kulakovskii, and A. Forchel. Lasing in high-Q quantum-dot micropillar cavities. *Applied Physics Letters*, 89(5) :051107, July 2006. *Citation page 85*

[111] V. N. Jmerik, E. V. Lutsenko, and S. V. Ivanov. Plasma-assisted molecular beam epitaxy of AlGaN heterostructures for deep-ultraviolet optically pumped lasers. *physica status solidi (a)*, 210(3) :439–450, March 2013. *2 citations pages 86 et 124*

[112] Viola Kueller, Arne Knauer, C. Reich, A. Mogilatenko, M. Weyers, J. Stellmach, Tim Wernicke, Michael Kneissl, Zhihong Yang, C.L. Chua, and N.M. Johnson. Modulated Epitaxial Lateral Overgrowth of AlN for Efficient UV LEDs. *IEEE Photonics Technology Letters*, 24(18) :1603–1605, September 2012. *Citation page 87*

[113] Thomas Wunderer, Christopher L. Chua, Zhihong Yang, John E. Northrup, Noble M. Johnson, Gregory A. Garrett, Hongen Shen, and Michael Wraback. Pseudomorphically Grown Ultraviolet C Photopumped Lasers on Bulk AlN Substrates. *Applied Physics Express*, 4(9) :092101, August 2011. *2 citations pages 87 et 124*

[114] M. Athanasiou, R. Smith, B. Liu, and T. Wang. Room temperature continuous–wave green lasing from an InGaN microdisk on silicon. *Scientific Reports*, 4 :7250, November 2014. *Citation page 87*

[115] D. Simeonov, E. Feltin, H.-J. Buhlmann, T. Zhu, A. Castiglia, M. Mosca, J.-F. Carlin, R. Butte, and N. Grandjean. Blue lasing at room temperature in high quality factor GaNAlInN microdisks with InGaN quantum wells. *Applied Physics Letters*, 90(6) :061106, February 2007. *2 citations pages 87 et 124*

[116] Cheng-Chang Chen, M. H. Shih, Yi-Chun Yang, and Hao-Chung Kuo. Ultraviolet GaN-based microdisk laser with AlN/AlGaN distributed Bragg reflector. *Applied Physics Letters*, 96(15) :151115, April 2010. *Citation page 87*

[117] Noelia Vico Triviño, Raphael Butte, Jean-François Carlin, and Nicolas Grandjean. Continuous wave blue lasing in III-nitride nanobeam cavity on silicon. *Nano Letters*, page 150113114106004, January 2015. *2 citations pages 87 et 125*

[118] K. H. Li, X. Liu, Q. Wang, S. Zhao, and Z. Mi. Ultralow-threshold electrically injected AlGaN nanowire ultraviolet lasers on Si operating at low temperature. *Nature Nanotechnology*, 10(2) :140–144, February 2015. *Citation page 87*

[119] Bryan Ellis, Marie A. Mayer, Gary Shambat, Tomas Sarmiento, James Harris, Eugene E. Haller, and Jelena Vučković. Ultralow-threshold electrically pumped quantum-dot photonic-crystal nanocavity laser. *Nature Photonics*, 5(5) :297–300, May 2011. *Citation page 88*

[120] M. Mexis, S. Sergent, T. Guillet, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, F. Semond, M. Leroux, D. Neel, S. David, X. Checoury, and P. Boucaud. High quality factor nitride-based optical cavities : microdisks with embedded GaN/Al(Ga)N quantum dots. *Optics Letters*, 36(12) :2203–2205, June 2011. WOS :000291722100010. *2 citations pages 89 et 101*

[121] EM Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. In *Physical Review*, volume 69, page 681, 1946. *Citation page 91*

[122] Jean-Michel Gérard and Bruno Gayral. Semiconductor microcavities, quantum boxes and the Purcell effect. In *Confined Photon Systems*, pages 331–351. Springer, 1999. *2 citations pages 92 et 102*

[123] Bruno Gayral. Controlling spontaneous emission dynamics in semiconductor microcavities. *Ann. Phys. Fr.*, 26 :1–135, 2001. *Citation page 92*

[124] Emmanuel Rosencher and Borge Vinter. *Optoelectronics*. Cambridge University Press, Cambridge, UK ; New York, NY, 2002. *3 citations pages 93, 98, et 100*

[125] Perry R. Rice and H. J. Carmichael. Photon statistics of a cavity-QED laser : A comment on the laser phase-transition analogy. *Physical Review A*, 50(5) :4318–4329, November 1994. *Citation page 94*

[126] John William Strutt Rayleigh. *The Theory of Sound*, volume 2. Macmillan, 1896. *Citation page 94*

[127] Gustav Mie. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Annalen der Physik*, 330(3) :377–445, 1908. *Citation page 94*

[128] John William Strutt Rayleigh. Scientific papers. Vol. 5 1902-1910. September 2009. *Citation page 95*

[129] H. M. Nussenzveig. *Diffraction effects in semiclassical scattering*. Number 1 in Montroll memorial lecture series in mathematical physics. Cambridge University Press, Cambridge ; New York, 1992. *Citation page 96*

[130] George Cain and Gunter H. Meyer. *Separation of variables for partial differential equations : an eigenfunction approach*. Studies in advanced mathematics. Chapman & Hall/CRC, Boca Raton, Fla., 2006. *Citation page 97*

[131] N. C. Frateschi and A. F. J. Levi. Resonant modes and laser spectrum of microdisk lasers. *Applied physics letters*, 66(22) :2932–2934, 1995. *Citation page 97*

[132] Matthew Borselli. *High-Q microresonators as lasing elements for silicon photonics*. PhD thesis, California Institute of Technology, 2006. *Citation page 100*

[133] R. E. Slusher, A. F. J. Levi, U. Mohideen, S. L. McCall, S. J. Pearton, and R. A. Logan. Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers. *Applied Physics Letters*, 63(10) :1310–1312, September 1993. *Citation page 102*

[134] Barbara Bastek, Frank Bertram, Juergen Christen, Thomas Hempel, Armin Dadgar, and Alois Krost. Analysis of point defects in AlN epilayers by cathodoluminescence spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 95(3) :032106, 2009. *Citation page 109*

[135] M. Colocci, M. Gurioli, A. Vinattieri, F. Fermi, C. Deparis, J. Massies, and G. Neu. Temperature dependence of exciton lifetimes in gaas/algaas quantum well structures. *EPL (Europhysics Letters)*, 12(5) :417, 1990. *Citation page 110*

[136] L. Béaur, T. Bretagnon, B. Gil, A. Kavokin, T. Guillet, C. Brimont, D. Tainoff, M. Teisseire, and J.-M. Chauveau. Exciton radiative properties in nonpolar homoepitaxial ZnO/(Zn,Mg)O quantum wells. *Physical Review B*, 84(16) :165312, October 2011. *2 citations pages 110 et 111*

[137] P. Lefebvre, J. Allègre, B. Gil, A. Kavokine, H. Mathieu, W. Kim, A. Salvador, A. Botchkarev, and Hadis Morkoç. Recombination dynamics of free and localized excitons in GaN/Ga0.93al0.07n quantum wells. *Physical Review B*, 57(16) :R9447–R9450, April 1998. *Citation page 110*

[138] Kartik Srinivasan, Matthew Borselli, Thomas J. Johnson, Paul E. Barclay, Oskar Painter, Andreas Stintz, and Sanjay Krishna. Optical loss and lasing characteristics of high-quality-factor AlGaAs microdisk resonators with embedded quantum dots. *Applied Physics Letters*, 86(15) :151106, April 2005. *Citation page 116*

[139] Basil W. Hakki and Thomas L. Paoli. Gain spectra in GaAs doubleheterostructure injection lasers. *Journal of Applied Physics*, 46(3) :1299, 1975. *Citation page 119*

[140] Daniel T. Cassidy. Technique for measurement of the gain spectra of semiconductor diode lasers. *Journal of Applied Physics*, 56(11) :3096, 1984. *Citation page 119*

[141] S. Strauf, K. Hennessy, M. T. Rakher, Y.-S. Choi, A. Badolato, L. C. Andreani, E. L. Hu, P. M. Petroff, and D. Bouwmeester. Self-Tuned Quantum Dot Gain in Photonic Crystal Lasers. *Physical Review Letters*, 96(12) :127404, March 2006. *Citation page 122*

[142] Masahiro Nomura, Satoshi Iwamoto, Katsuyuki Watanabe, Naoto Kumagai, Yoshiaki Nakata, Satomi Ishida, and Yasuhiko Arakawa. Room temperature continuous-wave lasing in photonic crystal nanocavity. *Optics Express*, 14(13) :6308, 2006. *Citation page 122*

[143] D. K. Young, L. Zhang, D. D. Awschalom, and E. L. Hu. Coherent coupling dynamics in a quantum-dot microdisk laser. *Physical Review B*, 66(8) :081307, August 2002. *Citation page 122*

[144] Christopher Gies, Jan Wiersig, and Frank Jahnke. Output Characteristics of Pulsed and Continuous-Wave-Excited Quantum-Dot Microcavity Lasers. *Physical Review Letters*, 101(6) :067401, August 2008. *Citation page 124*

[145] Seongsik Chang, Nathan B. Rex, Richard K. Chang, Gabel Chong, and Louis J. Guido. Stimulated emission and lasing in whispering-gallery modes of GaN microdisk cavities. *Applied Physics Letters*, 75(2) :166–168, July 1999. *Citation page 125*

[146] T. Baba and D. Sano. Low-threshold lasing and purcell effect in microdisk lasers at room temperature. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 9(5) :1340–1346, September 2003. *Citation page 126*

[147] Igor Aharonovich, Nan Niu, Fabian Rol, Kasey J. Russell, Alexander Woolf, Haitham A. R. El-Ella, Menno J. Kappers, Rachel A. Oliver, and Evelyn L. Hu. Controlled tuning of whispering gallery modes of GaN/InGaN microdisk cavities. *Applied Physics Letters*, 99(11) :111111, September 2011. *Citation page 127*

[148] Richard D. Crisp and Giles Humpston. Back-Illuminated CMOS Image Sensors Come to the Fore, February 2010. *Citation page 138*

[149] Hamamatsu Photonics. Guide to Streak Cameras, February 2010. *Citation page 140*

[150] Kai Li. *Electromagnetic fields in stratified media*. Advanced topics in science and technology in China. Zhejiang Univ. Press, Hangzhou, 2009. *Citation page 141*

Résumé

Cette thèse porte sur l'interaction lumière-matière au sein de nanostructures placées dans des cavités optiques à base de semi-conducteurs nitrures. A l'aide d'expériences de micro-photoluminescence dans l'ultra-violet, nous étudions les propriétés optiques de boîtes quantiques GaN/AlN dans des microcavités planaires et celles de puits quantiques GaN/AlN insérés dans des microdisques AlN. Afin d'améliorer la collection du faible signal de photoluminescence de boîtes quantiques uniques, nous utilisons des microcavités planaires pour modifier le diagramme d'émission d'une boîte quantique. Le dessin des microcavités est optimisé grâce à des simulations numériques basées sur la méthode des matrices de transfert en présence d'un émetteur. Nous montrons que, pour une microcavité nitrure à base de miroirs de Bragg AlN/AlGaN, la collection des photons émis par une boîte quantique peut être théoriquement améliorée d'un ordre de grandeur, ce qui est confirmé par nos mesures sur boîtes quantiques uniques, ouvrant ainsi la voie à des études avancées de corrélations de photons dans l'UV. La seconde partie des travaux est dédiée à la réalisation d'un micro-laser opérant dans l'UV profond et à température ambiante. En utilisant des puits quantiques GaN/AlN de 2,8 mono-couches, crûs sur substrat silicium et insérés dans des microdisques AlN, nous observons une émission laser à 275 nm sous pompage optique impulsionnel. Cette démonstration montre le fort potentiel des semi-conducteurs nitrures pour la nano-photonique UV sur silicium.

Abstract

This thesis addresses the light-matter interaction in nitride nanostructures embedded in optical microcavities. By using micro-photoluminescence experiments, we study the optical properties of GaN/AlN quantum dots embedded in planar microcavities and those of GaN/AlN quantum wells in AlN microdisks. By placing quantum dots in planar microcavities, we are able to modify the emission diagram and increase the collection efficiency. The design of the microcavities is optimized by using numerical simulations based on transfer matrix method with an internal emitter. For an AlN microcavity with AlN/AlGaN Bragg mirrors, we show that the collection efficiency could be theoretical increase by one order of magnitude, which is confirmed by our micro-photoluminescence experiments on single quantum dots. This observation opens the way for advanced studies such as photon correlations experiments in the UV range. The second part of our work is devoted to the realization of a micro-laser operating in the deep-UV range at room-temperature. By using thin GaN/AlN quantum wells (2.8 monolayers), grown on silicon substrate and embedded in AlN microdisks, we observe a laser emission at 275 nm under pulsed optical pumping. This demonstration shows the strong potentiality for future developments of nitride-on-silicon nano-photonics.