



HAL
open science

Plasmons Tamm pour la réalisation de nouvelles sources de lumière

Vincent Toanen

► **To cite this version:**

Vincent Toanen. Plasmons Tamm pour la réalisation de nouvelles sources de lumière. Physique [physics]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2022. Français. NNT : 2022LYO10049 . tel-04227749

HAL Id: tel-04227749

<https://theses.hal.science/tel-04227749v1>

Submitted on 4 Oct 2023

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 de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD LYON 1

École Doctorale 52
Physique et astrophysique

Discipline : Physique

Soutenue le 18/10/2022 par :
Vincent Toanen

Plasmons Tamm pour la réalisation de nouvelles sources de lumière

Devant le jury composé de :

Dr. Anne-Laure BAUDRION

Maîtresse de conférence, Université de Technologie de Troyes - L2n

Dr. Joel BELLESSA

Professeur des universités, Université Claude Bernard Lyon 1 - iLM

Dr. Emmanuel BENICHO

Professeur des universités, Université Claude Bernard Lyon 1 - iLM

Dr. Laurent COOLEN

Maître de conférence, Sorbonne Université - INSP

Dr. Alban GASSENQ

Maître de conférence, Université Claude Bernard Lyon 1 - iLM

Dr. Juliette MANGENEY

Directrice de recherche, CNRS - LPENS

Dr. Clémentine SYMONDS

Maîtresse de conférence, Université Claude Bernard Lyon 1 - iLM

Dr. Jesús ZÚÑIGA-PÉREZ

Directeur de recherche, CNRS - CRHEA

Examinatrice

Directeur de thèse

Président du jury

Rapporteur

Co-directeur de thèse

Examinatrice

Co-directrice de thèse

Rapporteur

Une pensée pour les artisans d'un nouveau monde.
Pour les déserteurs, rêveurs, militants et résistants modernes.
Une pensée pour leur courage.

Plasmons Tamm pour la réalisation de nouvelles sources de lumière

Résumé

Les plasmons Tamm, ou modes Tamm optiques, sont des modes électromagnétiques présents à l'interface entre un miroir de Bragg (DBR) et une couche métallique. Ces modes présentent un fort intérêt pour la réalisation de nouvelles sources de lumière, notamment grâce à la partie métallique, qui peut d'une part fournir un contrôle et un confinement micrométrique à trois dimensions du mode optique, et d'autre part assurer l'injection d'un courant électrique dans la structure pour y exciter un milieu émetteur. De nombreuses sources de lumière pourraient être réalisées grâce à cette double fonction du métal, comme des sources polarisées intégrées, des générateurs de plasmons de surface ou encore des tableaux de laser adressables à grande échelle. Mon travail de doctorat a consisté à pousser les sources de lumière Tamm vers l'applicatif, en développant leur fonctionnement à température ambiante et en excitation électrique, par opposition aux démonstrations à température cryogénique et en pompage optique effectuées jusqu'alors. Ce développement a été effectué sur des structures semi-conductrices basées sur des alliages ternaires d'AlGaAs, mais est hautement transposable à d'autres familles de matériaux.

La première partie de ce travail s'est concentrée sur l'obtention d'un effet laser à température ambiante. Grâce à une amélioration de la structure, consistant à insérer une couche de bas indice entre le DBR semi-conducteur et le métal, les pertes ohmiques dans ce dernier ont été réduites, ce qui a permis d'atteindre le régime laser à température ambiante. Le second volet de cette thèse concerne l'injection électrique des sources de lumière à mode Tamm. Partant d'un DBR dopé, deux procédés de micro-structuration en salle blanche ont été élaborés pour permettre cette injection. Le premier, inspiré de techniques usuelles de microfabrication, n'a pas fait ses preuves, en raison de la dégradation de la surface du DBR par certaines étapes classiques de structuration, et de la forte sensibilité du plasmon Tamm à la composition de surface du DBR. Nous avons donc développé une méthode de structuration alternative. Son originalité repose dans la protection permanente de la surface du DBR destinée au contact avec le métal. Cette nouvelle méthode a permis la fabrication des premières diodes électroluminescentes basées sur l'émission dans un mode Tamm. Leur caractérisation a montré la réussite de l'excitation du plasmon Tamm par l'injection électrique des émetteurs à puits quantiques, et prouve la possibilité d'utiliser un unique élément métallique pour confiner le mode optique et injecter les porteurs de charge. Ces résultats constituent une étape importante vers le développement d'une variété de sources de lumière intégrées utilisant les modes Tamm.

Mots-clefs : Plasmon Tamm, Sources hybrides métal/semi-conducteur, Miroir de Bragg, Puits quantiques, Laser, DEL, Confinement optique, Photonique.

Tamm plasmons for new light-emitting devices

Summary

Tamm plasmons, or optical Tamm states, are electromagnetic modes that exist at the interface between a Distributed Bragg Reflector (DBR) and a metallic layer. They are of high interest for the design of new light sources, thanks to the metallic part, which can provide 3D confinement and control of the optical mode but also electrical injection of the structure, in order to excite light emitters. Many light emitting devices could be realised using this dual function, such as integrated polarised light sources, surface plasmon generators or large-scale addressable laser arrays. This PhD work mainly consisted in pushing Tamm light emitting devices towards applicability, with the development of their room-temperature operation and electrical pumping, as opposed to previous demonstrations which were carried out under cryogenic temperature and optical pumping. Semiconducting heterostructures based on ternary alloys of AlGaAs were used for this development, but our results are highly transposable to other families of materials. The first part of this work focused on obtaining a laser effect at room temperature. By improving the structure with the insertion of a low-index layer between the semiconductor DBR and the metal, the ohmic losses in the metal were reduced, thus enabling lasing operation at room temperature. The second part of this work was about achieving the electrical injection of Tamm-based light sources. Starting from a doped DBR with quantum wells, we developed two processes, mostly based on cleanroom microfabrication techniques, to enable electrical injection. The first one, inspired by common microfabrication techniques, has not proved to be successful, due to the degradation of the DBR surface by some standard fabrication steps, and to the strong sensitivity of the Tamm plasmon to the surface composition of the DBR. Therefore, we developed a second method. Its originality lies in a permanent protection of the part of the DBR on which the metallic element will be deposited to form the Tamm mode and inject electrical current. This new method allowed the fabrication of the first light-emitting diodes based on Tamm mode emission. With electro-optical measurements, we demonstrated the excitation of the Tamm plasmon state through electrical pumping of the quantum wells, and proved the possibility to use a single metallic element to confine the optical mode and bring charge carriers into the structure. These results are an important step towards the development of new integrated light emitting devices using Tamm modes.

Keywords : Tamm Plasmon, Hybrid metal/semiconductor light sources, Bragg reflector, Quantum wells, Laser, LED, Optical confinement, Photonics.

Remerciements

Suite au travail de recherche présenté dans cette thèse, je me dois de remercier celles et ceux qui ont contribué au projet ou, plus généralement, dont la présence, les mots ou les actes m'ont permis d'avancer pendant ces trois dernières années.

Merci d'abord à mes encadrants, Joel Bellessa, Alban Gassenq et Clémentine Symonds, pour la supervision de ce projet ainsi que pour la transmission des savoirs et pratiques de la recherche. Quels que soient mes projets futurs, ce que j'ai appris auprès de vous me servira d'une manière ou d'une autre.

Merci au jury d'avoir accepté d'évaluer mon travail, et de s'être déplacé pour m'écouter le présenter. J'ai pu, lors de ma soutenance, apprécier sa bienveillance, grâce à laquelle ce passage traditionnellement redouté s'est transformé en un exercice presque plaisant.

Viennent ensuite toutes les personnes qui ont pu participer au projet ou m'apporter une aide. Merci à Jean-Michel Benoit, pour le temps que tu m'as accordé, ton aide, et ton attention. Un énorme merci à Sylvain Minot et François Bessueille, pour toute l'aide apportée à la fabrication des échantillons, et notamment vos précieuses analyses de surface. Merci à Étienne Cleyet-Merle et à Antonio Pereira pour la réalisation des dépôts d'oxydes par PLD, et les efforts consacrés à l'amélioration des dépôts. Merci à Rémy Fulcrand, pour ton travail de développement en salle blanche, qui nous a permis d'avancer à un moment relativement critique. Merci à Aristide Lemaître pour l'épitaxie des miroirs de Bragg avec lesquels j'ai travaillé.

Merci au laboratoire, l'institut Lumière Matière, au sein duquel j'ai préparé cette thèse. Merci au service mécanique, et en particulier Clément Albin et Fabien Toth, pour la réalisation de diverses pièces mécaniques. Merci au service électronique, notamment à Jean-Michel Combes. Merci aussi au service informatique. Merci à Régis Debord, pour les micro-contacts de nos micro-diodes. Merci aux autres résidents du troisième étage, Stéphane, Véronique, Olivier, Nicholas et Jérôme, dont j'ai apprécié entre autres la présence et la discussion. Merci à Patrick Pittet et Jérôme Degouttes, de l'INL, pour votre disponibilité en salle blanche. Merci aux responsables d'enseignements qui m'ont accepté dans leurs équipes pédagogiques : Sorin Perisanu, Corinne Augier, Jean-Michel Benoit et Jérôme Bernard. Merci à Antoine Bérut, pour son modèle de thèse en Latex, qui m'a beaucoup servi et que je recommande.¹ Merci à celles et ceux auxquels je n'aurais pas pensé en écrivant ces lignes, malgré leur contribution.

1. <https://ilm-perso.univ-lyon1.fr/~aberut/documents.html>

Merci bien sûr aux doctorants avec lesquels j'ai passé un temps conséquent. Antoine, merci pour ta présence, au bureau et ailleurs, et pour les très nombreux coups de main que tu m'auras donnés. Merci à Guillermo pour nos discussions. Je vous souhaite à tous les deux du courage pour la fin, et de l'épanouissement dans la suite. Merci à Charles, je te souhaite bien du courage pour le beau mais trop difficile métier d'enseignant que tu as choisi. Merci à Kevin et Samir pour l'accueil et pour vos conseils. Merci aux autres doctorants dont j'ai apprécié la compagnie : Paul, Max, et Antoine O. qui vient de commencer.

Mais beaucoup d'entités extérieures au laboratoire ont aussi contribué à l'achèvement de cette thèse tout en limitant la casse. Merci à Harry Potter, compagnon du soir que j'ai retrouvé pendant la rédaction, dont le monde imaginaire m'a permis d'oublier les moins sympathiques compagnons du jour (ordinateur, Latex, Origin, Inkscape...), m'offrant ainsi la perspective d'un sommeil acceptable. Merci à mes héros musiciens, morts et vivants, d'ici et surtout d'ailleurs, qui m'ont apporté rêve et réconfort presque quotidiennement. Merci aux montagnes qui ont l'extraordinaire pouvoir de faire tout oublier le temps d'un week-end. Merci au parc de la Tête d'Or, d'avoir eu la gentillesse de se trouver sur mon itinéraire domicile-travail, et de m'offrir ainsi, chaque jour, quelques minutes de verdure et de fraîcheur.

Et merci enfin aux vraies personnes que je côtoie. Merci à ma famille pour sa présence et son ouverture face à mes choix et états d'esprit. En regardant autour de moi, je comprends la chance que c'est de ne jamais ressentir une quelconque pression familiale quant au prestige de mes études ou de mon projet professionnel. Et évidemment, j'adresse un immense merci à l'équipe des plus vieux enfants que je connaisse, la grande team des Zouzous ! Qu'aurait été cette longue période sans vous avoir rencontré quand commençait mon travail de recherche ? Aucune idée, mais tout autre chose. Merci pour les rires, les jeux, les sorties, les week-ends, les randos, les vacances et les perudos. Merci pour votre refus de plier devant le sérieux ambiant. Merci mille fois Greg, de m'avoir introduit dans la bande, et pour notre longue cohabitation. Merci à la colocation des Fuziards, qui a été si importante, à tous ceux qui y ont vécu : Greg, inventeur de langage, Marionnette, soleil de la coloc, Paul, coach sportif, Guillaume, compagnon d'hypervitesse, Pablo, éternelle tête brûlée, Cyril, amour de gentillesse et meilleur moyennement bon perdant, Cécile, souffle d'énergie et de bonne humeur quand la coloc en a bien besoin, et Thomas, compagnon noctambule, béquille et fournisseur officiel de tartelettes aux noix.

Table des matières

Introduction	15
Références	17
1 Les modes Tamm optiques	19
1.1 Contexte	19
1.1.1 Lasers VCSEL	19
1.1.2 Lasers hybrides métal/semi-conducteur	22
1.1.3 Intérêt des modes Tamm pour les lasers	23
1.1.4 Autres applications des structures Tamm	26
1.2 Description théorique des modes Tamm optiques	27
1.2.1 Matrices de transfert	27
1.2.2 Miroir de Bragg	31
1.2.3 Réponse optique d'un métal	34
1.2.4 Résonance Tamm	37
1.2.5 Propriétés des modes Tamm	41
1.2.6 Structure Tamm pour l'émission de lumière	43
1.3 Caractérisation expérimentale	48
1.3.1 Réflectométrie résolue en angle	48
1.3.2 Photoluminescence	51
1.3.3 Expériences à basse température	53
1.3.4 Caractérisation électrique	53
1.3.5 Électroluminescence	54
1.4 Conclusion du chapitre	56
Références	58
2 Structures Tamm à faibles pertes et effet laser à température ambiante	67
2.1 Problématique	67
2.2 Structure super-Tamm	68
2.2.1 Ajout d'une couche de bas indice entre le métal et le DBR	68
2.2.2 Structure super-Tamm accordée	70
2.2.3 Choix de l'épaisseur relative de la dernière couche d'AlGaAs et de la couche diélectrique	72
2.2.4 Influence de l'épaisseur d'argent	73
2.3 Fabrication et caractérisation de l'échantillon	74

2.3.1	Fabrication du DBR	74
2.3.2	Luminescence des puits quantiques	75
2.3.3	Dépôt d'argent par évaporation	76
2.3.4	Caractérisation passive	77
2.4	Effet laser à température ambiante	78
2.4.1	Méthode d'excitation et structure modale	78
2.4.2	Photoluminescence et effet laser	80
2.5	Conclusion du chapitre	83
	Références	84
3	Sources Tamm à injection électrique : conception et première méthode de fabrication	87
3.1	Motivation	87
3.2	Structure cible	87
3.3	Définition optique de la structure	88
3.3.1	Définition du miroir de Bragg	88
3.3.2	Confinement du mode Tamm	91
3.4	Épitaxie et dopage	92
3.5	Première méthode de fabrication	93
3.5.1	Vue d'ensemble	93
3.5.2	Nettoyage des échantillons	95
3.5.3	Dépôt de SiO ₂ par PECVD	95
3.5.4	Photolithographie	95
3.5.5	Gravure du SiO ₂	98
3.5.6	Définition des pads de contact	99
3.6	Premiers résultats et nécessité d'une fabrication adaptée	103
3.6.1	Premières LED à structure Tamm	103
3.6.2	Problème de la gravure humide de la couche isolante	109
3.7	Approche simplifiée et LED Tamm de grande surface	112
3.8	Conclusion du chapitre	114
	Références	116
4	Source Tamm à injection électrique : fabrication adaptée aux modes de surface	119
4.1	Accord mode Tamm - émetteurs	119
4.2	Méthodologie d'élaboration du procédé de fabrication	122
4.3	Structuration de l'isolant par lift-off	122
4.3.1	Contraintes	122
4.3.2	Photolithographie négative des disques	123
4.3.3	Dépôt d'Y ₂ O ₃ par PLD	126
4.3.4	Lift-off et résultat	127
4.3.5	Défauts et amélioration des couches PLD	129
4.4	Structuration de l'argent	131
4.4.1	Analyse de la structuration par lift-off	131
4.4.2	Structuration par voie chimique	133

4.5	Procédé final	135
4.5.1	Structuration de l'argent et des pads de contact	135
4.5.2	Dégradation du métal après usage	135
4.5.3	Résumé du procédé de fabrication	136
4.6	Conclusion du chapitre	138
	Références	139
5	Diodes électroluminescentes à mode Tamm	141
5.1	Excitation électrique et conservation du mode Tamm	142
5.2	Propriétés électriques	143
5.3	Émission d'une micro-LED à mode Tamm	146
5.3.1	Propriétés spatiales	146
5.3.2	Propriétés angulaires	147
5.3.3	Influence de l'excitation	149
5.4	LED à mode Tamm confiné	150
5.5	Conclusion du chapitre	152
	Références	154
	Conclusion générale	155
	Références	158

Introduction

Le domaine des sources de lumière à semi-conducteur a connu un rapide essor depuis l'invention des premières diodes laser, puis des lasers VCSEL (Vertical Cavity Surface-Emitting Laser). Ces derniers, caractérisés par leur émission par la surface, cumulent de nombreux avantages : compacité, faible coût de production, capacité d'intégration, faible seuil d'émission laser, rendement énergétique élevé, émission monomode, bonne qualité du faisceau émis et fréquence de modulation élevée. Cependant, certaines applications nécessitent des sources avec des propriétés d'émission particulières, comme des polarisations linéaires, circulaires, ou des faisceaux avec un profil d'intensité de forme annulaire.¹⁻³ Réaliser ces sources de lumières originales s'avère souvent complexe pour les VCSEL, dont le contrôle de la polarisation constitue une problématique à part entière.^{4,5}

Les sources à plasmon Tamm sont une piste pour le développement de ces sources particulières. Le plasmon Tamm est un mode optique apparaissant lors du dépôt d'une couche métallique sur la surface d'un miroir de Bragg, ou DBR pour Distributed Bragg Reflector.⁶ Tout comme un mode optique dans une cavité Fabry-Pérot, il s'agit d'une résonance électromagnétique entre deux éléments réfléchissants, à la différence près que dans le cas des plasmons Tamm, l'épaisseur de la cavité est nulle. Si la structure a pour vocation d'émettre de la lumière, un milieu émetteur est alors placé dans les couches du DBR proches de l'interface avec le métal, où le champ électrique est maximum. Si la couche métallique est suffisamment fine, typiquement entre 30 et 100 nm, celle-ci peut constituer le miroir de sortie d'un laser ou plus généralement d'une cavité optique. Une caractéristique essentielle du plasmon Tamm, ou mode Tamm, est donc sa localisation à la surface de l'hétérostructure semi-conductrice. De cette propriété découle la caractéristique la plus intéressante des sources Tamm, qui est la possibilité de contrôler le mode Tamm par la seule structuration de la couche métallique en surface.

De cette manière, plusieurs preuves de principes ont montré l'intérêt des plasmons Tamm pour la réalisation de nouvelles sources de lumière. En 2013 a été montrée la possibilité de réaliser simplement des lasers confinés latéralement, en réduisant le contact entre le métal et le DBR à des micro-disques dont le diamètre peut être réduit jusqu'à 4 μm .⁷ En 2015, il a été montré qu'en changeant légèrement la géométrie du contact métal/DBR, c'est-à-dire en définissant une zone de contact rectangulaire plutôt que circulaire, l'émission du laser adopte une polarisation linéaire alignée sur la forme du rectangle.⁸ Outre les applications purement laser, le contrôle du mode par la surface a été utilisé pour coupler le plasmon Tamm aux

plasmons de surface,⁹⁻¹² pour réaliser des sources de photons uniques,¹³ ou bien des sources compactes à boîtes quantiques pour les télécommunications optiques.¹⁴

Jusqu'à présent, dans toutes les démonstrations de sources de lumière à plasmon Tamm, l'énergie était apportée au milieu émetteur par un laser d'excitation externe. De plus, l'effet laser dans les structures Tamm métal/semi-conducteur n'a été démontré qu'à des températures cryogéniques. Or, l'utilisation d'une source de lumière dans un cadre applicatif est en général conditionnée par la possibilité de fonctionner à température ambiante, et sous injection électrique. Réussir l'injection électrique des structures Tamm est d'autant plus intéressant qu'elles sont fondamentalement inadaptées au pompage optique. En effet, l'excitation avec un laser de pompe du milieu émetteur, situé sous le métal, est très inefficace, du fait de la faible transmission du métal hors résonance Tamm. En revanche, les sources Tamm se prêtent a priori très bien à l'injection électrique, car le métal, qui crée et confine le plasmon Tamm au contact du DBR, peut également servir d'électrode pour injecter les porteurs de charge dans l'hétérostructure semi-conductrice. En plus de simplifier la fabrication des composants en éliminant des étapes de gravure du semi-conducteur, cette double fonction du métal ouvre de nouvelles perspectives applicatives, telles que la réalisation de tableaux de laser adressables à grande échelle. Satisfaire ces deux conditions de fonctionnement à température ambiante et d'excitation électrique a constitué l'objectif principal de ce doctorat. Celui-ci a été préparé à l'Institut Lumière Matière à Lyon, au sein de l'équipe Matériaux et Nanostructures Photoniques (MNP).

Le premier chapitre de ce manuscrit introduira de manière plus approfondie le contexte des sources à plasmons Tamm. Les outils théoriques permettant de décrire les plasmons Tamm seront détaillés, ainsi que les principales propriétés de ces derniers. J'expliquerai également les différentes expériences de caractérisation de nos échantillons.

Le deuxième chapitre sera consacré à la problématique de l'effet laser à la température ambiante. Pour atteindre cet objectif, nous avons développé une méthode basée sur la réduction des pertes dans le métal. Je décrirai cette méthode, et montrerai qu'elle permet l'établissement de l'effet laser du plasmon Tamm à température ambiante dans nos structures basées sur des alliages de GaAs et d'AlAs.

La suite du manuscrit concernera l'injection électrique des sources Tamm. Le troisième chapitre présentera d'abord la conception des premières sources Tamm excitées électriquement, et leur fabrication, inspirée des techniques usuelles de microfabrication des VCSEL et micro-cavités. Je présenterai les résultats obtenus sur les premières diodes électroluminescentes (LED) Tamm, qui montreront que le caractère surfacique des modes Tamm impose de développer une méthode de fabrication spécifique qui ne dégrade pas la surface du miroir de Bragg.

Dans le quatrième chapitre, je présenterai une deuxième méthode de fabrication des sources Tamm à excitation électrique, tenant compte de la sensibilité du plasmon Tamm à la composition de surface du DBR. Le principe guide de cette nouvelle méthode est de vérifier à chaque étape de fabrication la préservation du mode Tamm. De cette manière, nous verrons que des méthodes de structurations usuelles doivent

être repensées, afin de protéger la couche de surface du DBR destinée au contact avec le métal.

Enfin, une dernière partie décrira les propriétés des sources Tamm à injection électriques fabriquées par cette nouvelle méthode. Je présenterai l'excitation du mode Tamm par l'injection électrique de porteurs de charge dans la structure, et décrirai les propriétés d'émission de ces LED à mode Tamm résonant.

Références

- ¹L. He et M. Li, “On-Chip Synthesis of Circularly Polarized Emission of Light with Integrated Photonic Circuits”, *Optics Letters* **39**, 2553-2556 (2014).
- ²M. Wang et al., “High-Efficiency Circularly Polarized Green Light Emission from GaN-based Laser Diodes Integrated with GaN Metasurface Quarterwave Plate”, *Applied Physics Letters* **119**, 241103 (2021).
- ³O. Weiss et J. Scheuer, “Emission of Cylindrical and Elliptical Vector Beams from Radial Bragg Lasers”, *Applied Physics Letters* **97**, 251108 (2010).
- ⁴J. Martín-Regalado et al., “Polarization Properties of Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **33**, 765-783 (1997).
- ⁵W. Liao et al., “Polarization Control and Mode Optimization of 850 Nm Multi-Mode VCSELs Using Surface Grating”, *Applied Physics B* **127**, 23 (2021).
- ⁶M. Kaliteevski et al., “Tamm Plasmon-Polaritons : Possible Electromagnetic States at the Interface of a Metal and a Dielectric Bragg Mirror”, *Physical Review B* **76**, 165415 (2007).
- ⁷C. Symonds et al., “Confined Tamm Plasmon Lasers”, *Nano Letters* **13**, 3179-3184 (2013).
- ⁸G. Lheureux et al., “Polarization-Controlled Confined Tamm Plasmon Lasers”, *ACS Photonics* **2**, 842-848 (2015).
- ⁹H. Liu et al., “Controllable Coupling of Localized and Propagating Surface Plasmons to Tamm Plasmons”, *Plasmonics* **7**, 749-754 (2012).
- ¹⁰B. I. Afinogenov et al., “Observation of Hybrid State of Tamm and Surface Plasmon-Polaritons in One-Dimensional Photonic Crystals”, *Applied Physics Letters* **103**, 061112 (2013).
- ¹¹M. Lopez-Garcia et al., “Efficient Out-Coupling and Beaming of Tamm Optical States via Surface Plasmon Polariton Excitation”, *Applied Physics Letters* **104**, 231116 (2014).
- ¹²S. Azzini et al., “Generation and Spatial Control of Hybrid Tamm Plasmon / Surface Plasmon Modes”, *ACS Photonics* **3**, 1776-1781 (2016).
- ¹³O. Gazzano et al., “Single Photon Source Using Confined Tamm Plasmon Modes”, *Applied Physics Letters* **100**, 232111 (2012).

- ¹⁴M. Parker et al., “Telecommunication Wavelength Confined Tamm Plasmon Structures Containing InAs/GaAs Quantum Dot Emitters at Room Temperature”, *Physical Review B* **100**, 165306 (2019).

Chapitre 1

Les modes Tamm optiques

1.1 Contexte

1.1.1 Lasers VCSEL

Description

Le développement de la micro-électronique et des techniques de micro et nano-fabrication associées a permis l'émergence de sources de lumière intégrées à base de matériaux semi-conducteurs. Les deux marchés largement prépondérants sont ceux des LED et des diodes laser. Dans l'industrie actuelle, ces dernières se déclinent principalement en deux types : les lasers émettant par la tranche (ou EEL pour Edge-Emitting Laser) et les lasers à cavité verticale émettant par la surface (VCSEL pour Vertical Cavity Surface-Emitting Laser). Les laser EEL sont apparus à partir de 1962.¹ Aujourd'hui, leur marché est dominé par les applications dans les télécommunications.² Les VCSEL, apparus plus tardivement à partir de la fin des années 1970³, ont connu un rapide essor du fait de leurs avantages par rapport aux EEL.⁴

La structure classique d'une diode laser VCSEL est représentée en figure 1.1.^{5,6} Elle est principalement composée d'une cavité optique d'épaisseur $p \lambda / 2n_{cav}$ comprise entre deux miroirs de Bragg, ou DBR pour Distributed Bragg Reflector. λ désigne la longueur d'onde d'émission du laser, n_{cav} l'indice optique du matériau constituant la cavité, et p est un nombre entier, généralement proche de 1. Le plus souvent, le milieu émetteur n'est pas le milieu de la cavité lui-même, mais un ou des puits quantiques qui y sont insérés.⁷ Ils sont placés sur le ou les maximums du champ électrique pour interagir au mieux avec le mode de cavité. Dans le cas le plus fréquent d'une émission par la face supérieure, le DBR supérieur comporte moins de paires de couches quart d'onde que le miroir inférieur, ce qui lui confère une réflectivité moins élevée. Il joue donc le rôle de miroir de sortie du laser.

D'un point de vue électrique, la cavité constitue la zone intrinsèque d'une jonction p-i-n, qui permet d'amener les électrons de conduction et les trous de valence dans les puits quantiques pour qu'ils s'y recombinent en émettant de la lumière. Généralement, le DBR inférieur est dopé n, et le miroir supérieur est dopé p, pour

des raisons d'épitaxie, de mobilité des porteurs de charge, et d'absorption optique engendrée par les dopages n et p.^{6,8,9} Des contacts métalliques sont déposés sur les faces supérieures et inférieures pour y former des contacts ohmiques. Le plus souvent, les porteurs de charges sont confinés latéralement par un diaphragme d'oxyde, placé proche de la zone active.¹⁰ Cela permet de confiner les porteurs au niveau de la zone active sur des diamètres compris entre $\sim 1 \mu\text{m}$ et quelques centaines de micromètres.

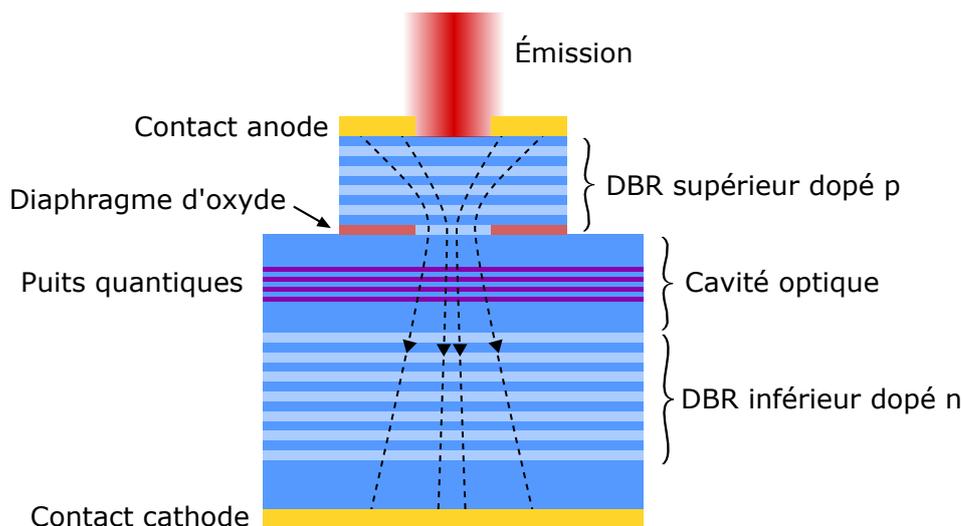


FIGURE 1.1 – Schéma d'une structure VCSEL

Les principaux avantages des sources VCSEL sont les suivants :

- Leur émission peut assez facilement être rendue monomode avec une courte cavité, qui ne permet la présence que d'un seul mode longitudinal. Un fonctionnement monomode transverse peut également être obtenu en confinant latéralement le mode de cavité, avec un diaphragme d'oxyde ou bien la gravure de la structure en micro-pilier.^{4,11}
- Leur courant de seuil est faible et leur rendement peut être très élevé.¹²⁻¹⁴
- De par leur forme cylindrique et verticale, leur émission est généralement circulaire et peu divergente, en comparaison des laser EEL produisant des faisceaux elliptiques et assez divergents.¹¹
- Leur forme orientée vers la surface facilite les procédures de test après fabrication, et le clivage en composants individuels.⁴ Cela permet également la fabrication de tableaux de laser, utilisés notamment pour des applications de haute puissance.¹⁵
- Elles présentent de très bonnes propriétés en modulation, ce qui en fait des sources de choix pour les télécommunications haut-débit.⁶

Ces avantages ont mené les VCSEL vers de nombreuses applications : télécommunications haut-débit à courte et moyenne distance, inter-connexions dans les centres de données, impression laser, souris d'ordinateur ou plus récemment la reconnais-

sance faciale.¹²

Difficulté du contrôle avancé de l'émission

Malgré tous ces avantages indéniables, un contrôle avancé du mode optique et de l'émission reste difficile dans les sources VCSEL. Une difficulté particulière est le contrôle de la polarisation. Les structures VCSEL classiques émettent spontanément une polarisation linéaire, mais celle-ci est instable.^{16,17} En effet, si en théorie, une structure VCSEL circulaire telle que présentée en figure 1.1 est isotrope, en pratique, plusieurs anisotropies légères favorisent le régime laser pour une polarisation linéaire. Parmi ces anisotropies, on peut compter une biréfringence de la structure cristalline, et le phénomène de dispersion saturable, qui induit une anisotropie du gain.^{16,18} Or, ces anisotropies sont faibles, en compétition entre elles, et elles peuvent varier d'un composant à l'autre. Elles dépendent également des conditions de fonctionnement du VCSEL. Aussi on peut assister à des basculements de polarisation ("polarization switching") lorsque le point de fonctionnement du laser est modifié, ce qui est gênant pour les nombreuses applications où la polarisation importe.¹⁹

Plusieurs stratégies ont été développées pour palier ce problème. Elles consistent à introduire dans la structure une anisotropie plus forte, qui permet de modifier considérablement le gain ou les pertes d'une polarisation linéaire par rapport à la polarisation orthogonale. Parmi ces méthodes se trouvent l'introduction d'une anisotropie du gain des puits quantiques,²⁰ de la réflectivité des miroirs de Bragg,²¹ la modification de la forme des mesas,²² ou l'utilisation du retour d'une cavité externe.²³ Mais ces méthodes ne sont en général pas assez satisfaisantes, car elles peuvent être difficiles à mettre en place, elles ajoutent un coût supplémentaire lors de la fabrication, ou bien elles ne sont pas forcément transposables d'une source VCSEL à une autre sans nécessiter une optimisation particulière.¹⁷ La méthode la plus efficace qui est utilisée aujourd'hui dans l'industrie repose sur la formation d'un réseau sur la surface émettrice.²⁴⁻²⁶ Néanmoins, l'inscription du réseau s'effectue en général par une gravure plasma de la surface du DBR sur quelques dizaines de nanomètres, et avec une période assez fine souvent inférieure au micromètre. Cela nécessite un très bon contrôle du processus de gravure.

Actuellement, il existe également un fort besoin en sources émettant de la lumière aux propriétés complexes. On peut citer les sources dont l'émission se caractérise par une polarisation circulaire²⁷⁻²⁹ ou bien un vortex de polarisation^{30,31} ou de phase.³² Ces sources sont intéressantes pour des applications telles que l'imagerie super-résolue³³⁻³⁵ ou la manipulation de particules par pince optique.^{36,37} Des efforts ont été fournis pour y parvenir avec les VCSEL. Par exemple, des réalisations ont permis d'émettre des polarisations circulaires avec des VCSEL, par transfert de spin électronique,³⁸ avec des cristaux liquides³⁹ ou bien à l'aide de métasurfaces diélectriques ou plasmoniques.⁴⁰ Mais ces méthodes restent technologiquement coûteuses ou difficiles à mettre en œuvre pour fabriquer de vrais dispositifs utilisables dans un cadre applicatif. Ces difficultés se comprennent bien vu le défi que représente déjà l'obtention d'une polarisation linéaire stable à un coût technologique acceptable.

Il semble donc pertinent de se tourner vers de nouvelles structures optiques pour

créer ces sources de lumière complexe. Nous verrons bientôt que les sources à plasmon Tamm sont des candidates intéressantes pour ces nouvelles applications.

1.1.2 Lasers hybrides métal/semi-conducteur

En parallèle de l'amélioration des technologies laser déjà industrialisées, un nouveau domaine de laser utilisant des métaux dans ou proche de la cavité optique s'est fortement développé depuis la fin des années 2000. Dans ces nouvelles sources, le métal est utilisé pour sa capacité de confinement de la lumière. Ces sources hybrides métal/semi-conducteur se déclinent principalement en deux types.

La première catégorie est celle des lasers plasmoniques, ou SPASER. Dans ces sources, le mode de cavité conventionnel est remplacé par un plasmon-polariton de surface. Il s'agit d'un mode, existant à l'interface entre un milieu diélectrique et un métal, résultant de l'hybridation d'un mode photonique de champ proche dans le diélectrique et d'une oscillation collective des électrons dans le métal.⁴¹ Leur intérêt pour créer de nouvelles sources laser réside essentiellement dans leur capacité à confiner la lumière sur des distances nanométriques, parfois largement inférieures à la longueur d'onde.^{42,43} En effet, le confinement nanométrique de la lumière proche du milieu émetteur augmente la probabilité que celui-ci se désexcite par émission spontanée dans le mode plasmonique, ce qui permet d'obtenir des lasers à très faible seuil d'injection.⁴⁴⁻⁴⁸ D'autre part, la localisation du mode sur une échelle nanométrique ouvre de nouvelles applications à ces sources, comme l'imagerie super-résolue⁴⁹ ou la détection d'espèces chimiques ou biologiques.⁵⁰⁻⁵² Enfin, la réduction du temps de désexcitation spontanée grâce à l'effet Purcell permet d'envisager ces sources pour des applications où une très haute bande passante de modulation est requise.^{53,54}

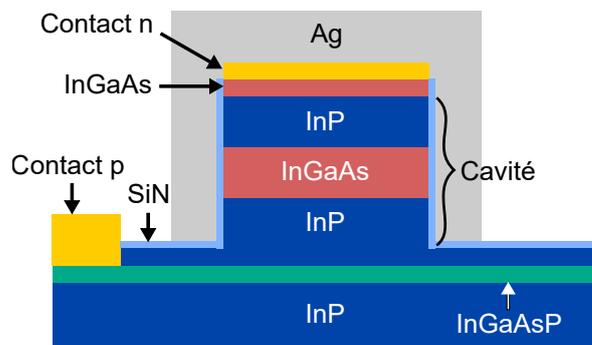


FIGURE 1.2 – Source laser avec une cavité à revêtement métallique. Exemple adapté d'une publication de Ding et al. (2012).⁵⁵

La seconde catégorie de sources laser utilisant des métaux est basée sur l'utilisation d'une cavité optique à revêtement métallique. Un exemple de ce type de structure, adapté d'une publication de Ding et al.⁵⁵ est présenté en figure 1.2. Ces sources sont plus proches des VCSEL ou des EEL, dans la mesure où une cavité semi-conductrice (ici en InP/InGaAs/InP) supporte un mode optique non plasmonique. La principale différence avec les lasers purement semi-conducteurs est que la cavité

est ici enrobée d'une couche métallique, qui permet de réduire drastiquement le volume du mode.⁵⁶⁻⁵⁸ Cette nouvelle géométrie a également permis d'obtenir des lasers à très faible seuil.^{47,59} Ces lasers souffrent de pertes moins élevées que les lasers plasmoniques, car le mode optique réside principalement dans la partie semi-conductrice de la structure et peu dans le métal.

1.1.3 Intérêt des modes Tamm pour les lasers

À mi-chemin entre les VCSEL et les lasers métalliques se trouvent les sources à plasmon Tamm. Les plasmons Tamm sont des modes optiques apparaissant à l'interface entre un miroir de Bragg et une couche métallique.⁶⁰ Le schéma de principe d'une structure Tamm est montré en figure 1.3 (a). À l'interface entre les deux éléments réfléchissants que constituent le DBR et le métal existe une résonance optique, dont la longueur d'onde se situe dans la bande interdite photonique du DBR. Cette résonance est désignée plasmon Tamm, ou mode Tamm optique. La figure 1.3 (b) montre une simulation FDTD du module carré du champ électrique du plasmon Tamm. Ce mode se caractérise par une forte localisation au niveau de l'interface, où son champ électrique est maximum. En s'éloignant du métal, le module du champ diminue dans le DBR de manière exponentielle. De plus, la structuration du métal en disque micrométrique permet de confiner le mode Tamm dans le plan perpendiculaire à la direction de croissance. Son extension latérale est alors limitée au diamètre du disque, de $4\mu\text{m}$ dans cette simulation. Le plasmon Tamm constitue donc un moyen très simple de confiner la lumière dans les trois directions de l'espace.

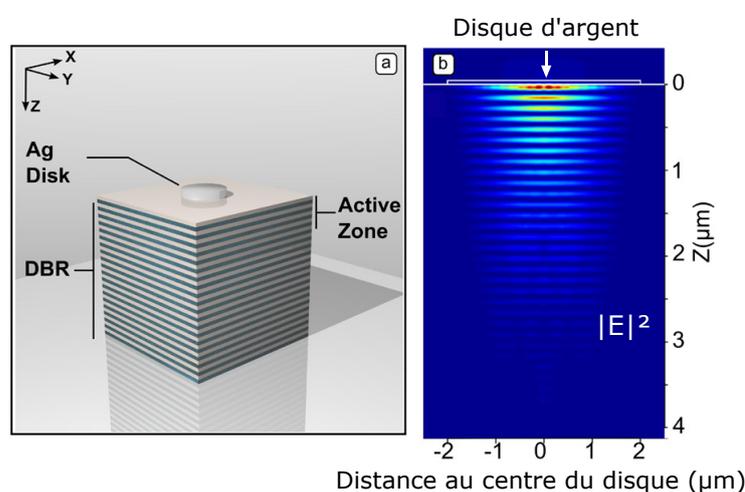


FIGURE 1.3 – (a) Schéma de principe d'une source Tamm confinée (b) Simulation FDTD du champ électrique du plasmon Tamm sous le disque métallique, à la résonance. Figure adaptée de Symonds et al. (2013)⁶¹

On peut transformer les structures Tamm en sources de lumière en y ajoutant des émetteurs. Pour cela, de nombreux travaux utilisent par exemple une couche de colorant organique.⁶²⁻⁶⁴ Mais pour conserver la compatibilité avec les méthodes de

fabrication et d'injection de la micro et nano-électronique, il est préférable d'utiliser des matériaux inorganiques. L'émission de lumière peut alors être obtenue en insérant par exemple des puits quantiques⁶⁵ ou bien des boîtes quantiques⁶⁶ dans les couches du DBR proches de l'interface avec le métal, sur les maximums du champ électrique du plasmon Tamm. L'effet laser a été démontré dans les sources Tamm à puits quantiques, d'abord avec un mode Tamm 2D, c'est-à-dire sans structuration du métal.⁶⁷ Puis avec des plasmons Tamm confinés latéralement par une structuration en disque de la couche métallique, comme en figure 1.3.⁶¹

La structure des lasers Tamm est assez proche de celle des VCSEL. La figure 1.4 montre les schémas d'une source VCSEL et d'une géométrie possible pour un éventuel laser Tamm à injection électrique. Dans les deux cas, les deux miroirs et le milieu à gain sont alignés dans la direction de croissance de l'hétérostructure semi-conductrice, et l'émission s'effectue par la surface supérieure.¹ Le confinement des porteurs de charge est apporté par un diaphragme d'un matériau isolant, placé proche des émetteurs.

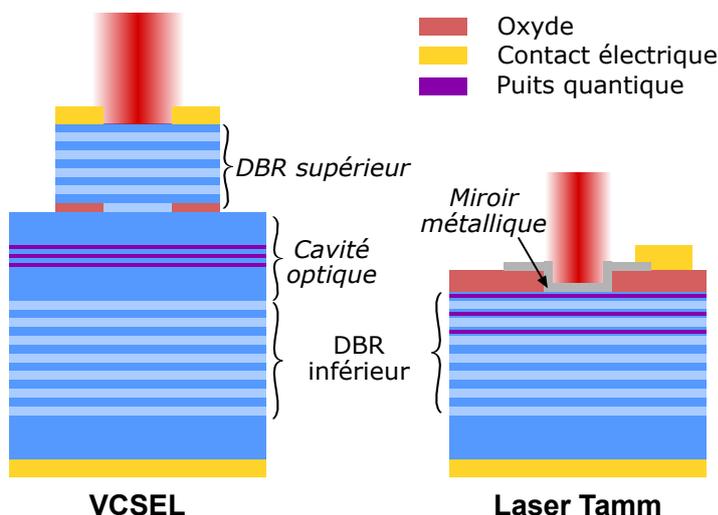


FIGURE 1.4 – Schéma d'une source VCSEL et d'un laser Tamm à injection électrique.

Néanmoins, trois différences majeures existent entre cette structure VCSEL et cette proposition de laser Tamm :

- Dans le laser Tamm, le miroir de sortie est une couche métallique, et non un deuxième DBR. Cela permet de confiner le mode optique à la surface de l'échantillon.
- La structure Tamm ne comprend pas de cavité optique à proprement parler, car le métal est déposé directement sur la surface du DBR. Les puits quantiques sont donc insérés dans les dernières couches du DBR.
- La structure Tamm ne nécessite pas de structuration latérale de l'hétérostructure, par gravure ou oxydation sélective. Dans cette proposition, toute

1. Certains lasers VCSEL, minoritaires, émettent par la face inférieure.^{68,69}

la micro-structuration a lieu sur les couches minces déposées sur le DBR.

La présence du mode en surface, grâce aux propriétés de confinement du métal, est le principal atout des sources Tamm. Cela permet un accès et un contrôle du mode optique par la seule structuration du métal en surface. En effet, il suffit, pour confiner le mode Tamm latéralement, de limiter le contact entre le DBR et le métal à la forme désirée. Cela peut notamment permettre le contrôle de la polarisation de l'émission. En 2015, l'équipe Matériaux et Nanostructures Photoniques (MNP) de l'Institut Lumière Matière a montré que l'on pouvait très simplement réaliser des lasers émettant une polarisation linéaire stable avec les plasmons Tamm.⁷⁰ Pour cela, il suffit d'introduire une anisotropie sur le contact métal/DBR, par exemple en limitant ce contact à un rectangle, comme montré sur le schéma de la figure 1.5 (a). La figure 1.5 (b) montre la courbe de seuil de la structure, tracée pour les polarisations alignées suivant les côtés X et Y du rectangle métallique. Cette courbe montre que seule l'émission dans la polarisation Y dépasse le seuil et entre en régime laser. Cette facilité d'obtention d'une polarisation linéaire stable est un net avantage par rapport aux structures VCSEL, où la stabilisation de la polarisation est une difficulté.

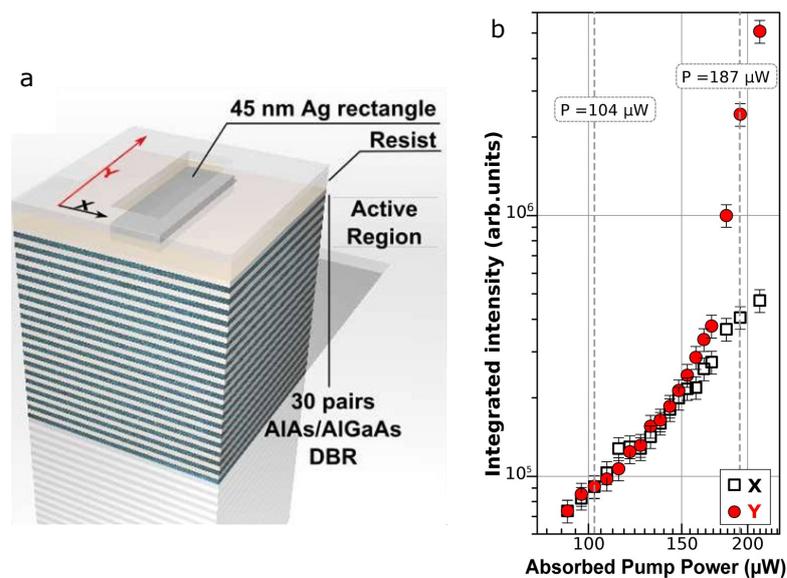


FIGURE 1.5 – (a) Schéma de la structure adoptée pour une émission laser polarisée (b) Courbe de seuil de l'émission laser, dans les polarisation X et Y. Figure adaptée de Lheureux (2015).⁷⁰

C'est le contrôle direct du mode optique par la surface qui permet cette simplicité d'obtention d'une polarisation linéaire. Cette potentialité a déjà été exploitée avec des structures plasmoniques pour créer des sources plus avancées, émettant par exemple des polarisations circulaires ou des vortex de polarisation. Pour cela, le métal est structuré en cercles concentriques ou bien selon des formes chirales favorisant ces effets de polarisation.^{32,71} On peut donc imaginer obtenir le même genre de propriétés en structurant l'argent de manière similaire à la surface des structures

Tamm.

Toutefois, comme il a été expliqué dans l'introduction de ce manuscrit, l'injection électrique des sources à plasmon Tamm n'a pas encore été réalisée. Toutes les démonstrations de lasers Tamm confinés et polarisés ont jusqu'à présent été effectuées en pompage optique. En plus d'être inadaptée à une utilisation dans le cadre d'applications, cette méthode est particulièrement défavorable aux sources Tamm, car l'excitation des puits quantiques par un laser d'excitation focalisé sur la couche métallique est très inefficace. Cela oblige à utiliser de fortes puissances de pompe pour compenser la faible transmission du métal, au risque de chauffer l'échantillon testé. Pour pouvoir étudier le réel potentiel des sources Tamm pour la production de ces polarisations complexes, il est nécessaire de réussir son injection électrique, qui est d'autant plus adaptée que le métal créant le mode Tamm peut également servir d'électrode pour injecter les porteurs. La réalisation de cette injection électrique constitue donc un des principaux objectifs de cette thèse.

1.1.4 Autres applications des structures Tamm

En dehors des sources laser, les structures Tamm ont été proposées pour de nombreuses autres applications. Une certaine partie d'entre elles considèrent toujours la structure Tamm comme une source de lumière. Une application qui a été étudiée est l'émission de photons uniques à l'aide d'un plasmon Tamm confiné latéralement.^{72,73} Par exemple, Gazzano et al. ont présenté en 2012 la possibilité de fabriquer une source de photons uniques avec des boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs couplées à un mode Tamm confiné par un micro-disque métallique. Grâce à l'effet Purcell obtenu par le confinement latéral du mode, une efficacité d'extraction d'environ 60% a été démontrée. Une structure similaire a été utilisée par Parker et al. pour créer des sources compactes émettant dans la fenêtre 1.3 μm des télécommunications.^{74,75} Là encore, le confinement latéral du mode par la structuration en disque du métal permet d'améliorer l'efficacité des sources par effet Purcell.

Toujours avec des émetteurs ponctuels, mais cette fois-ci des nanocristaux colloïdaux, les plasmons Tamm ont été proposés comme un moyen de contrôler la directivité d'une source de lumière.⁷⁶ Feng et al. ont en effet démontré en 2018 le contrôle de l'angle d'émission d'une structure Tamm en choisissant la position des émetteurs à l'intérieur du micro-disque métallique, et ce sans nécessiter une précision inférieure au micromètre quant à la position des émetteurs, contrairement à d'autres dispositifs proposés pour la même application.

Le couplage possible entre un plasmon Tamm et un plasmon de surface⁷⁷⁻⁷⁹ peut également être manipulé pour créer des sources à plasmons de surface.⁸⁰ Azzini et al. ont par exemple mis en évidence des oscillations spatiales entre le plasmon Tamm à l'interface métal/DBR, excité par un pompage optique classique, et le plasmon de surface à l'interface métal/air. Ce couplage peut constituer un moyen simple de générer des plasmons de surface, ce qui pourrait être utilisé dans les nombreuses applications où ils interviennent. Les plasmons Tamm ont aussi été envisagés pour la réalisation d'émetteurs thermiques. La résonance Tamm peut en effet être utilisée

pour filtrer une émission thermique et obtenir une ou plusieurs émissions fines dans l’infra-rouge moyen.⁸¹⁻⁸³

Outre leur utilisation en tant que sources de lumières, les structures Tamm sont aussi intéressantes pour leurs propriétés d’absorption ou de transmission. Le groupe qui a fabriqué les sources Tamm émettant à $1.3\mu\text{m}$ a également utilisé une géométrie similaire pour développer un photodétecteur sensible à la même longueur d’onde de $1.3\mu\text{m}$.⁸⁴ Les plasmons Tamm présentent également un potentiel pour le domaine terahertz, où une cavité Tamm a été présentée, pouvant servir de brique élémentaire au développement de nouveaux composants terahertz basés sur cette résonance.⁸⁵ Les Tamm optiques ont aussi été mis à profit pour améliorer ou contrôler l’absorption de cellules photovoltaïques^{86,87} ou encore pour créer de nouveaux capteurs biologiques,^{88,89} de température⁹⁰ ou d’indice de réfraction.⁹¹ Ces utilisations des structures Tamm en tant que capteurs reposent, comme pour les capteurs plasmoniques, sur la forte sensibilité de la résonance optique à l’état de surface du dispositif.

Parmi ces applications, certaines, comme les sources de photons uniques, les sources à plasmons de surface ou encore les capteurs, auraient grand intérêt à fonctionner par le biais d’une injection électrique. En cela, ce travail de thèse, qui vise en partie à réaliser l’injection électrique des sources de lumière Tamm, pourra permettre le développement pratique de dispositifs basés sur ces nombreuses preuves de concept.

1.2 Description théorique des modes Tamm optiques

Après cette description du contexte dans lequel s’insèrent les sources de lumière à plasmon Tamm, nous allons maintenant présenter certains éléments théoriques utiles à la compréhension des propriétés et du comportement de ces modes.

1.2.1 Matrices de transfert

La méthode des matrices de transfert est une méthode permettant de résoudre les équations de Maxwell dans un milieu stratifié caractérisé par les seuls indices de réfraction et épaisseurs des différentes couches. Elle permet notamment de calculer les champs électrique et magnétique dans l’empilement, ainsi que ses propriétés de réflexion et de transmission. C’est la méthode que nous employons pour simuler les structures à plasmon Tamm planaires, c’est-à-dire sans structuration latérale de la partie métallique ou d’autres couches. Le formalisme tel qu’il est décrit dans cette section est adapté du livre “Ondes électromagnétiques en radioélectricité et en optique” de Roger Petit, auquel on pourra se référer pour une démonstration détaillée.⁹²

Commençons par écrire les équations de Maxwell que nous utiliserons. Nous considérons des milieux non magnétiques, tels que $\vec{B} = \mu_0\vec{H}$. Les équations de

Maxwell dans la matière peuvent s'écrire :

$$\operatorname{div}(\vec{D}) = 0 \qquad \operatorname{div}(\vec{B}) = 0 \qquad (1.1)$$

$$\operatorname{rot}(\vec{E}) = -\partial_t \vec{B} \qquad \operatorname{rot}(\vec{H}) = \partial_t \vec{D} \qquad (1.2)$$

où le vecteur induction électrique \vec{D} est égal à

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \qquad (1.3)$$

ϵ_0 étant la permittivité du vide et \vec{P} le vecteur polarisation, comprenant les effets de charges liées et de charges libres pour les métaux. La relation entre l'induction électrique et le champ électrique peut alors s'écrire à l'aide la constante diélectrique généralisée ϵ :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \qquad (1.4)$$

On peut aussi définir la constante diélectrique relative ϵ_r telle que $\epsilon = \epsilon_r \epsilon_0$. Cela permet de définir l'indice optique n du milieu tel que $n^2 = \epsilon_r$.

La figure 1.6 représente la structure dont on souhaite calculer les coefficients de réflexion et de transmission. Elle est composée d'un empilement de $N + 1$ matériaux dans la direction z . Le premier matériau d'indice optique n_1 est désigné superstrat, le dernier d'indice n_{N+1} est le substrat. Les N premières couches de l'empilement sont caractérisées par leur permittivité diélectrique relative $\epsilon_{r,j} = n_j^2$ et leur épaisseur d_j . Le substrat est considéré infini, ce qui donnera une condition aux limites du problème. On considère que l'empilement est éclairé par une onde plane monochromatique dans le superstrat de pulsation ω et de longueur d'onde dans le vide λ_0 . On choisit le plan d'incidence comme le plan défini par $y = 0$, et on considérera uniquement le cas d'une polarisation linéaire TE ou TM. En polarisation TE, le champ électrique est parallèle aux dioptries et s'écrira :

$$\vec{E}(x, z) = \vec{e}_y u(x, z) \qquad (1.5)$$

En polarisation TM, c'est le champ magnétique \vec{H} qui prendra cette forme :

$$\vec{H}(x, z) = \vec{e}_y u(x, z) \qquad (1.6)$$

Ainsi, suivant la polarisation étudiée, nous calculerons l'amplitude scalaire $u(x, z)$ du champ électrique ou du champ magnétique. Le but est de calculer cette amplitude dans toute la structure, et en particulier de relier les champs en entrée et en sortie pour calculer les coefficients de réflexion et de transmission. L'amplitude de l'onde incidente dans le superstrat d'indice n_1 peut s'écrire :

$$u^i(x, z) = u_1(x, z) = a^+ e^{i(\alpha_1 x + \gamma_1 z)} \qquad (1.7)$$

α_1 et γ_1 étant reliés à l'angle d'incidence θ^i par les relations :

$$\alpha_1 = n_1 \frac{2\pi}{\lambda_0} \sin(\theta^i) \qquad \gamma_1 = n_1 \frac{2\pi}{\lambda_0} \cos(\theta^i) \qquad (1.8)$$

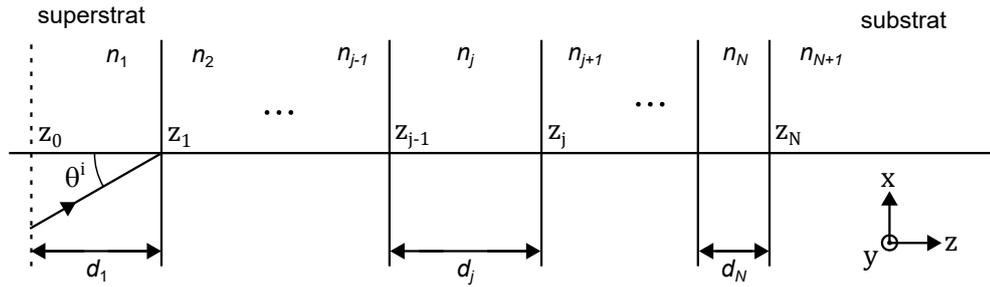


FIGURE 1.6 – Schéma de l'empilement de couches planes pour l'application de la méthode des matrices de transfert.

Par linéarité du système et son invariance par translation selon \vec{e}_x , on peut déduire que dans chaque couche j , l'amplitude du champ peut se mettre sous la forme :

$$u_j(x, z) = U_j(z)e^{i\alpha_1 x} \quad (1.9)$$

qui traduit la conservation du vecteur d'onde dans la direction x . On pourra donc remplacer α_1 par α dans la suite, comme il s'agit d'une constante de propagation à travers toute la structure.

L'onde $u_j(x, z)$ satisfait dans chaque milieu l'équation de Helmholtz qui s'écrit :

$$\Delta u_j + k_j^2 u_j = 0 \quad (1.10)$$

avec

$$k_j^2 = \mu_0 \epsilon_j \omega^2 \quad (1.11)$$

Avec la forme 1.9, cette équation s'écrit :

$$\frac{d^2 U_j}{dz^2} + \gamma_j^2 U_j = 0 \quad k_j^2 = \alpha^2 + \gamma_j^2 \quad (1.12)$$

Les solutions de cette équation s'expriment grâce à γ_j comme la somme de deux ondes $U_j^+(z)$ et $U_j^-(z)$ se propageant selon $+\vec{e}_z$ et $-\vec{e}_z$:

$$U_j(z) = a_j^+ e^{i\gamma_j z} + a_j^- e^{-i\gamma_j z} \quad (1.13)$$

$$= U_j^+(z) + U_j^-(z) \quad (1.14)$$

Le calcul du champ u dans toute la structure revient donc au calcul des deux ondes contra-propageantes $U_j^+(z)$ et $U_j^-(z)$ dans chaque milieu. Pour cela, un formalisme matriciel est utilisé. On définit un vecteur colonne contenant ces deux ondes :

$$\vec{U}_j(z) = \begin{pmatrix} U_j^+(z) \\ U_j^-(z) \end{pmatrix} \quad (1.15)$$

Le calcul de \vec{U}_j à travers l'empilement se fera à l'aide de matrices dites de transfert, qui traduisent l'effet sur \vec{U}_j d'une translation selon \vec{e}_z au sein d'un même milieu et

du passage d'un milieu à un autre. D'après l'équation 1.13, la matrice de translation est telle que :

$$\begin{pmatrix} U_j^+(z+d) \\ U_j^-(z+d) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{i\gamma_j d} & 0 \\ 0 & e^{-i\gamma_j d} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U_j^+(z) \\ U_j^-(z) \end{pmatrix} \quad (1.16)$$

$$\vec{U}_j(z+d) = T_j(d) \cdot \vec{U}_j(z) \quad (1.17)$$

Au niveau d'une interface, c'est-à-dire quand $z = z_j$, il faut calculer la relation entre $\vec{U}_j(z_j)$ et $\vec{U}_{j+1}(z_j)$ à l'aide d'une matrice d'interface $I_{j/j+1}$ telle que :

$$\vec{U}_{j+1}(z_j) = I_{j/j+1} \cdot \vec{U}_j(z_j) \quad (1.18)$$

Cette matrice se calcule en écrivant la conservation des composantes tangentielles des champs \vec{E} et \vec{H} . En polarisation TE, cette conservation se traduit par la conservation de l'amplitude $U(z)$ et de sa dérivée en z_j , soit

$$U_j(z_j) = U_{j+1}(z_j) \quad (1.19)$$

$$\frac{dU_j}{dz}(z_j) = \frac{dU_{j+1}}{dz}(z_j) \quad (1.20)$$

et on obtient pour la matrice d'interface :

$$I_{j/j+1} = \begin{pmatrix} \frac{\gamma_{j+1} + \gamma_j}{2\gamma_{j+1}} & \frac{\gamma_{j+1} - \gamma_j}{2\gamma_{j+1}} \\ \frac{\gamma_{j+1} - \gamma_j}{2\gamma_{j+1}} & \frac{\gamma_{j+1} + \gamma_j}{2\gamma_{j+1}} \end{pmatrix} \quad (1.21)$$

En polarisation TM, il faut se rappeler que l'on calcule l'amplitude du champ \vec{H} , et les relations sont un peu différentes. La continuité des champs tangentiels s'écrit :

$$U_j(z_j) = U_{j+1}(z_j) \quad (1.22)$$

$$\frac{1}{\epsilon_j} \frac{dU_j}{dz}(z_j) = \frac{1}{\epsilon_{j+1}} \frac{dU_{j+1}}{dz}(z_j) \quad (1.23)$$

La matrice d'interface obtenue possède une forme proche, mais les coefficients γ_j sont remplacés par γ_j/n_j^2 :

$$I_{j/j+1} = \begin{pmatrix} \frac{n_j^2 \gamma_{j+1} + n_{j+1}^2 \gamma_j}{2n_j^2 \gamma_{j+1}} & \frac{n_j^2 \gamma_{j+1} - n_{j+1}^2 \gamma_j}{2n_j^2 \gamma_{j+1}} \\ \frac{n_j^2 \gamma_{j+1} - n_{j+1}^2 \gamma_j}{2n_j^2 \gamma_{j+1}} & \frac{n_j^2 \gamma_{j+1} + n_{j+1}^2 \gamma_j}{2n_j^2 \gamma_{j+1}} \end{pmatrix} \quad (1.24)$$

Finalement, on peut écrire le champ à la sortie de la structure, dans le substrat en $z = z_N$ à partir du champ dans le superstrat en $z = z_0$:

$$\vec{U}_{N+1}(z_N) = I_{N/N+1} \cdot T_N(d_N) \cdots I_{j/j+1} \cdot T_j(d_j) \cdots I_{1/2} \cdot T_1(d_1) \cdot \vec{U}_1(z_0) \quad (1.25)$$

$$= \prod_{j=1}^N I_{j/j+1} \cdot T_j(d_j) \cdot \vec{U}_1(z_0) \quad (1.26)$$

$$= M \cdot \vec{U}_1(z_0) \quad (1.27)$$

où :

$$M = \prod_{j=1}^N I_{j/j+1} \cdot T_j(d_j) \quad (1.28)$$

est la matrice de transfert totale de la structure, du plan $z = z_0$ dans le superstrat au plan $z = z_N$ dans le substrat. Une fois la matrice totale M calculée, on peut facilement obtenir les coefficients de réflexion et de transmission. Dans le cas décrit depuis le début, nous avons une onde incidente provenant de la direction $-\vec{e}_z$ traversant la structure vers $+\vec{e}_z$. En considérant le substrat infini, on peut considérer qu'il n'y existe pas d'onde se propageant vers $-\vec{e}_z$, et donc que U_{N+1}^- est nulle. On peut alors trouver les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude que l'on définit comme :

$$r = \frac{U_1^-(z_0)}{U_1^+(z_0)} \quad (1.29)$$

$$t = \frac{U_{N+1}^-(z_N)}{U_1^+(z_0)} \quad (1.30)$$

Leur expression en fonction des coefficients de la matrice est la suivante :

$$r = -\frac{M_{21}}{M_{22}} \quad (1.31)$$

$$t = \frac{1}{M_{22}} \det(M) \quad (1.32)$$

Enfin, on peut montrer que les coefficients de réflexion et transmission en intensité sont donnés par⁹³ :

$$R = |r|^2 \quad (1.33)$$

$$T = \frac{1}{\det(M)} |t|^2 \quad (1.34)$$

Ces quatre coefficients permettent de calculer les propriétés de réflexion et de transmission de la structure complète. On peut aussi utiliser cette méthode pour calculer le profil du champ à l'intérieur de la structure. D'après 1.14, le champ se calcule en sommant les deux composantes du vecteur $\vec{U}(z)$. Celui-ci peut se calculer de manière itérative, en partant de la position z_N dans le substrat et en posant $\vec{U}_{N+1}(z_N) = (1, 0)$, puis en appliquant les inverses des matrices d'interface et de translation pour calculer $\vec{U}(z)$ jusqu'à z_0 .

1.2.2 Miroir de Bragg

Le miroir de Bragg, ou DBR pour Distributed Bragg Reflector, est l'une des briques essentielles des structures Tamm et des lasers VCSEL. Il s'agit d'un empilement de paires de couches quart d'onde de deux matériaux semi-conducteurs ou diélectriques d'indices optiques différents. Ces miroirs sont capables de fournir une très bonne réflectivité, supérieure à 99.9%.¹⁰

Prenons par exemple un DBR constitué d'une alternance de couches d'AlAs et d' $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$, noté AlGaAs par la suite, et fournissant une réflectivité maximale à $\lambda_B = 900\text{ nm}$. On note n_L et n_H les indices de l'AlAs et de l'AlGaAs. Dans nos simulations, l'indice d'un alliage $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ est estimé à l'aide d'un modèle développé par Gehrsitz et al.⁹⁴ Ce modèle décrit l'indice de réfraction de l'alliage en fonction de la fraction d'aluminium x , de la température T et de la longueur d'onde λ pour des énergies inférieures à l'énergie de gap. Les dépendances de n_L et n_H avec la longueur d'onde à $T = 295\text{ K}$ sont tracées en figure 1.7 avec ce modèle. À 900 nm , $n_L = 2.97$ et $n_H = 3.42$

La très bonne réflectivité d'un DBR est due aux interférences constructives des ondes réfléchies aux différentes interfaces rencontrées. À incidence nulle, ces ondes réfléchies sont toutes en phase à $\lambda = \lambda_B$ si chacune des couches est équivalente à une lame quart d'onde, soit si l'épaisseur d_i d'une couche i est égale à :

$$d_i = \frac{\lambda_B}{4n_i} \quad (1.35)$$

Pour l'AlAs et l'AlGaAs, on obtient respectivement les épaisseurs suivantes : $d_L \simeq 75.75\text{ nm}$ et $d_H \simeq 65.79\text{ nm}$.

Pour étudier les propriétés de cette structure, prenons un DBR constitué de 30 paires de couches, sur un substrat de GaAs. Cette structure est schématisée en figure 1.8 (a). La première couche déposée sur le substrat est une couche d'AlAs de bas indice n_L . Pour un nombre entier de paires, la dernière couche du DBR est donc une couche de haut indice. On considère le DBR plongé dans l'air d'indice $n = 1$. La partie (b) de la figure montre la simulation de la réflectivité $R = |r|^2$ de la structure à incidence normale, où r désigne le coefficient de réflexion pour l'amplitude du champ électrique. La structure est très réfléchissante, avec R proche de 1 sur une plage de longueur d'onde bordée de deux creux de réflectivité assez profonds, à 858 nm et à 945 nm . La largeur de cette plage, désignée bande interdite photonique, est de $\Delta\lambda \simeq 87\text{ nm}$. À la longueur d'onde centrale du DBR $\lambda_B = 900\text{ nm}$, la réflectivité calculée est $R(\lambda_B) \simeq 99.98\%$. C'est cette excellente réflectivité qui permet l'effet laser dans les VCSEL à puits quantiques, en dépit du faible gain apporté par les puits lors d'un aller-retour dans la cavité.

Un point qui se révélera déterminant lorsque nous aborderons la question des plasmons Tamm est la dépendance de la phase $\phi = \text{Arg}(r)$ du coefficient de réflexion avec la longueur d'onde. À la longueur d'onde centrale du DBR, cette phase vaut 180° . Elle évolue de manière linéaire et assez doucement sur une plage d'environ 50 nm autour de λ_B , puis varie plus rapidement au voisinage des modes de bord de bande interdite, à 858 nm et à 945 nm . Cette phase est importante quant à la possibilité d'obtenir un mode de cavité entre ce miroir et un autre dispositif réfléchissant placé en regard. Cette question sera étudiée en détail dans la section 1.2.4 où l'on s'intéressera à l'origine des modes Tamm optiques.

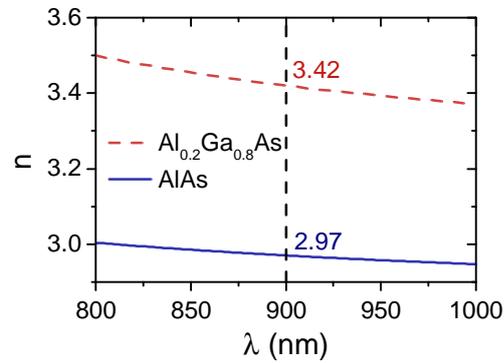


FIGURE 1.7 – Indice de réfraction de l'AlGaAs et de l'AlAs à 295 K selon le modèle de Gehrsitz et al.⁹⁴

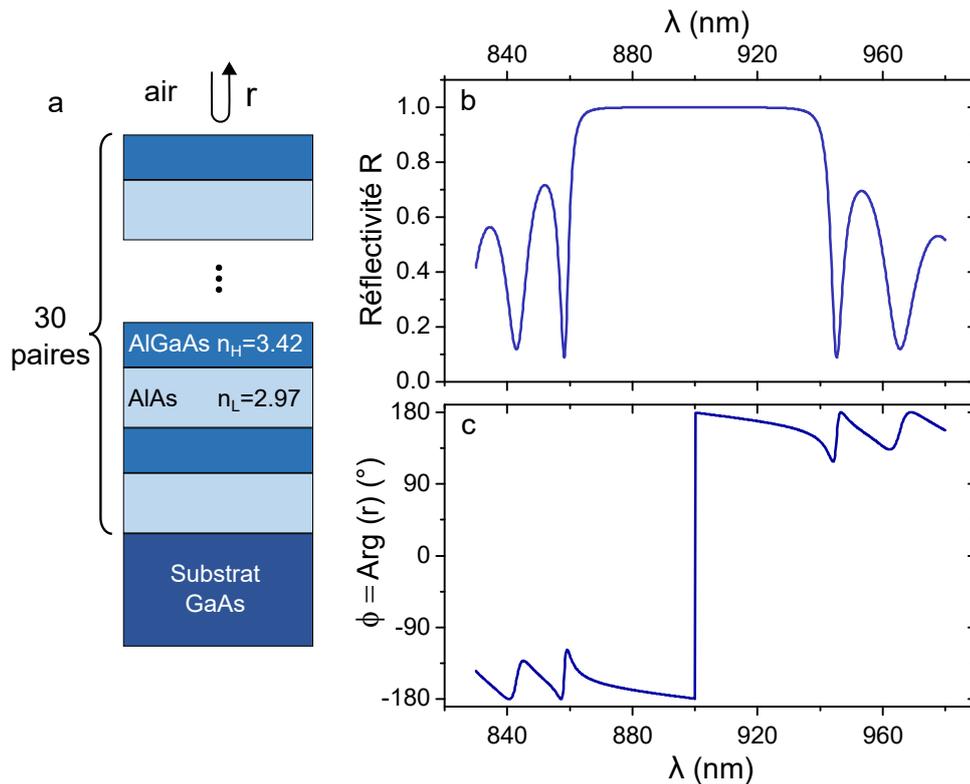


FIGURE 1.8 – (a) Schéma du DBR simulé, constitué de 30 paires de couches AlAs/AlGaAs sur substrat GaAs. L'onde incidente provient de l'air d'indice égal à un. (b) Réflectivité $R = |r|^2$ du DBR en fonction de la longueur d'onde, à incidence normale (c) Phase ϕ du coefficient de réflexion en amplitude r .

1.2.3 Réponse optique d'un métal

Modèle de Drüde

Dans les domaines du visible et de l'infra-rouge, la réponse optique d'un métal est souvent décrite à l'aide du modèle de Drüde. Ce modèle sera rapidement présenté dans cette section, afin de justifier la forme de la constante diélectrique d'un métal dans ces gammes de longueurs d'onde. Nous utiliserons les équations de Maxwell telles qu'elles ont été écrites dans la section 1.2.1. Le but est de trouver une expression de la constante diélectrique ϵ d'un métal. Ce modèle part des hypothèses suivantes. Tout d'abord, le métal est considéré comme un réseau d'ions fixes, dans lequel évolue un gaz d'électrons libres de densité homogène n . Les électrons sont considérés ponctuels et sont traités classiquement. On considère qu'ils sont soumis à la force électrique $-e\vec{E}(\vec{r}, t)$, ainsi qu'à une force de frottement $-m\vec{v}/\tau$. Cette force modélise les processus de collision des électrons, dont le temps caractéristique est τ . m est la masse d'un électron. Ce modèle ne prend pas en compte les électrons liés au réseau ionique. On suppose de plus que les déplacements des électrons libres sont limités à des oscillations dont l'amplitude est petite par rapport aux variations spatiales du champ électrique. On pourra donc omettre la dépendance spatiale de ce dernier en l'écrivant $\vec{E}(t)$.

Dans ce cadre, le principe fondamental de la dynamique appliqué à un électrons repéré par sa position \vec{r} s'écrit :

$$m \frac{d^2 \vec{r}}{dt^2}(t) = -e\vec{E}(t) - \frac{m}{\tau} \frac{d\vec{r}}{dt}(t) \quad (1.36)$$

Si le champ électrique \vec{E} est monochromatique, de la forme :

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (1.37)$$

alors la position \vec{r} de l'électron possède la même dépendance temporelle harmonique, et l'équation 1.36 se réécrit :

$$-\omega^2 m \vec{r}(t) = -e\vec{E}(t) + i \frac{\omega m}{\tau} \vec{r}(t) \quad (1.38)$$

et

$$\vec{r}(t) = \frac{e}{m \omega^2 + i \frac{\omega}{\tau}} \vec{E}(t) \quad (1.39)$$

On peut donc écrire la polarisation $\vec{P}(t) = -en\vec{r}(t)$ comme :

$$\begin{aligned} \vec{P}(t) &= -\frac{ne^2}{m} \frac{1}{\omega^2 + i \frac{\omega}{\tau}} \vec{E}(t) \\ \vec{P}(t) &= -\epsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i \frac{\omega}{\tau}} \vec{E}(t) \end{aligned} \quad (1.40)$$

en définissant la pulsation plasma ω_p du métal par

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_0 m}} \quad (1.41)$$

On réécrit :

$$\begin{aligned}\vec{D} &= \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \\ \vec{D} &= \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\frac{\omega}{\tau}} \right) \vec{E}\end{aligned}\quad (1.42)$$

pour en déduire l'expression de la constante diélectrique du métal :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\frac{\omega}{\tau}} \right) \quad (1.43)$$

Celle-ci comporte une partie réelle et une partie imaginaire :

$$\epsilon'(\omega) = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) \quad (1.44)$$

$$\epsilon''(\omega) = \epsilon_0 \frac{\omega_p^2 \tau}{\omega (1 + \omega^2 \tau^2)} \quad (1.45)$$

La partie réelle $\epsilon'(\omega)$ décrit la force de la polarisation créée par le champ électrique. Elle est négative pour les métaux, ce qui explique leur caractère fortement réfléchissant. La partie imaginaire $\epsilon''(\omega)$ décrit quant à elle l'absorption du métal.

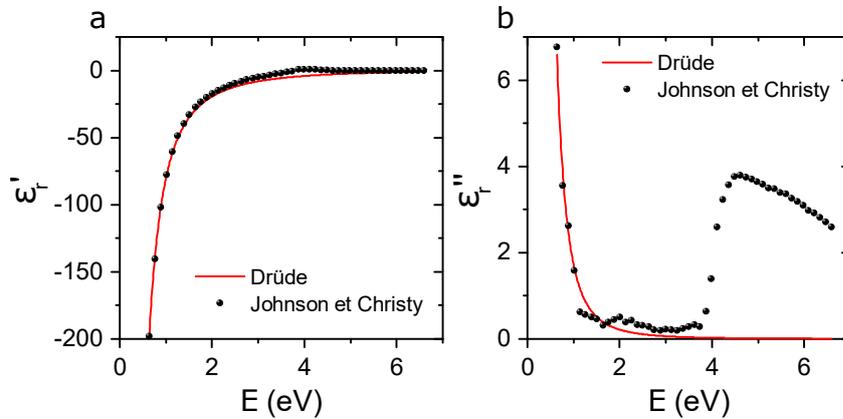


FIGURE 1.9 – Partie réelle (a) et imaginaire (b) de la constante diélectrique relative de l'argent. Les points expérimentaux sont issus de Johnson et Christy (1972).⁹⁵ Les courbes rouges correspondent à un ajustement des données avec le modèle de Drüde.

Les figures 1.9 (a) et (b) montrent respectivement les valeurs expérimentales des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique relative $\epsilon_r = \epsilon/\epsilon_0$ de l'argent, mesurées par Johnson et Christy.⁹⁵ La courbe rouge en trait plein correspond à un ajustement de ces données par le modèle de Drüde, avec comme paramètres $\omega_p = 1.37 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$ et $\tau = 3.1 \times 10^{-14} \text{ s}$.⁹⁶ Le modèle de Drüde rend bien compte du comportement du métal à basse énergie jusqu'à $\simeq 4 \text{ eV}$, ce qui correspond globalement aux domaines infrarouge, visible et proche UV, jusqu'à $\simeq 300 \text{ nm}$. En revanche, à partir de 4 eV , le modèle est clairement insuffisant, car l'augmentation subite de la

partie imaginaire de ϵ_r traduit une absorption dont le modèle de Drüde ne rend pas du tout compte. Cette absorption optique correspond à des transitions interbandes, qui sont prises en compte dans les modèles avec électrons liés de Drüde-Lorentz.⁹⁷ Toutes les études menées dans ce manuscrit seront effectuées dans le domaine visible - proche infrarouge, entre $\simeq 750$ et 980 nm. Ces transitions n'ont pas du tout lieu aux fréquences auxquelles nous travaillons, il n'est donc pas gênant de ne pas en tenir compte.

Choix du métal utilisé

Les structures optiques plasmoniques utilisent très majoritairement de l'argent et de l'or dans le domaine visible et infrarouge, car ces métaux nobles présentent les plus faibles pertes dans ce domaine de fréquence.⁹⁸ La figure 1.10 compare la partie imaginaire de la constante diélectrique relative de l'argent à celle de l'or. Dans notre domaine de travail (750 - 980 nm), les pertes de l'argent sont très inférieures à celles de l'or. Par exemple, à $\lambda \simeq 895$ nm, $\epsilon''_{r,Ag} \simeq 0.51$, alors que $\epsilon''_{r,Au} \simeq 1.93$. Pour cette raison, nous utilisons systématiquement l'argent pour créer le plasmon Tamm au contact du DBR.

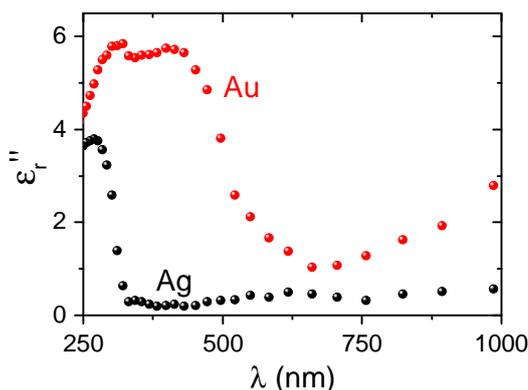


FIGURE 1.10 – Comparaison de la partie imaginaire de l'argent et de l'or autour du domaine visible. Ces données proviennent de la même publication de Johnson et Christy.⁹⁵

Le modèle de Drüde appliqué à l'argent (figure 1.9) traduit bien la réponse du métal sur une grande plage d'énergie, entre $\simeq 0.65$ et 3 eV. Néanmoins, dans notre domaine de longueur d'onde, qui est beaucoup plus restreint, (entre 1.2 et 1.65 eV), il est plus pertinent d'adopter un modèle numérique différent. Nous utilisons donc dans nos simulations un ajustement polynomial des parties réelles et imaginaires de la constante diélectrique, afin d'être plus proche des valeurs mesurées par Johnson et Christy.⁹⁵ Dans nos simulations, nous travaillons traditionnellement avec la longueur d'onde λ plutôt qu'avec l'énergie E . Aussi cet ajustement est un polynôme en λ .

Le tracé des valeurs de référence, du modèle de Drüde et de l'ajustement polynomial est présenté en figure 1.11. Sur la plage $850 - 1000$ nm, il est clair que le modèle de Drüde surestime les pertes de l'argent. L'ajustement polynomial est lui

plus fidèle aux données de Johnson et Christy. Les expressions de cet ajustement sont les suivantes⁹⁶ :

$$\begin{aligned}\epsilon_r'(\lambda) = & -14.46336 + 0.13725 \lambda - 3.91145 \times 10^{-4} \lambda^2 \\ & + 3.31078 \times 10^{-7} \lambda^3 - 1.13012 \times 10^{-10} \lambda^4\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\epsilon_r''(\lambda) = & 2.80407 - 0.01862 \lambda + 4.73233 \times 10^{-5} \lambda^2 \\ & - 4.93745 \times 10^{-8} \lambda^3 + 1.83724 \times 10^{-11} \lambda^4\end{aligned}$$

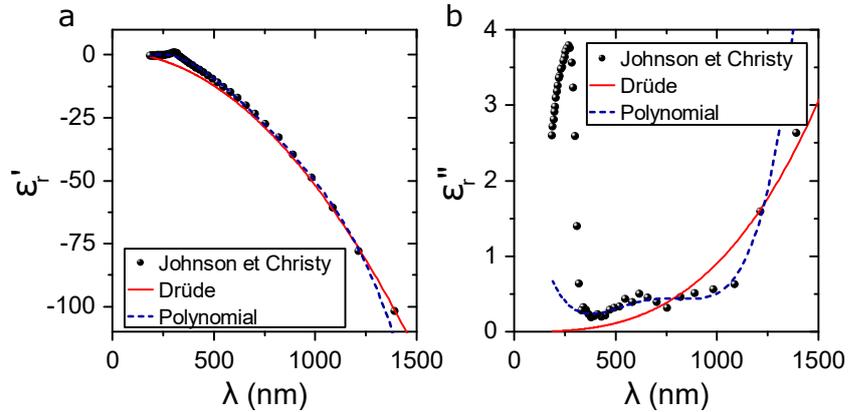


FIGURE 1.11 – Modèle de Drüde et ajustement polynomial des valeurs expérimentales de la constante diélectrique relative de l'argent.⁹⁵

Cependant, il est avéré que les propriétés optiques des métaux, et notamment de l'argent, dépendent très fortement de leurs conditions de dépôt.⁹⁹ Dans l'équipe MNP, les dépôts d'argent sont effectués par évaporation thermique ou par pulvérisation cathodique. En comparant nos résultats expérimentaux avec les simulations, il s'avère que les pertes de nos dépôts sont supérieures à celles des données de Johnson et Christy. Pour cette raison, nous multiplions par un facteur 2 l'expression de la partie imaginaire ϵ_r'' de la constante diélectrique dans nos simulations, pour éviter une surestimation du facteur de qualité de nos structures.

1.2.4 Résonance Tamm

Pour mettre en évidence la résonance Tamm, étudions le cas d'une cavité d'AlGaAs comprise entre une couche d'argent d'épaisseur $d_{Ag} = 50$ nm et un DBR de 30 paires d'AlAs/AlGaAs de bande interdite centrée sur $\lambda_B = 900$ nm, comme dans la section 1.2.2. Cette approche est similaire à celle employée par Kaliteevski et al. en 2007.⁶⁰ La cavité est schématisée en figure 1.12. Étudions la possibilité d'obtenir une onde résonante à l'intérieur de cette cavité. Une telle onde doit se retrouver en phase avec elle-même après un aller-retour dans la cavité. Pour simplifier, prenons le cas d'une onde se propageant parallèlement à la direction z . Appelons E_1 l'amplitude en $z = 0$ (à l'interface entre l'argent et la cavité) d'une onde se propageant dans

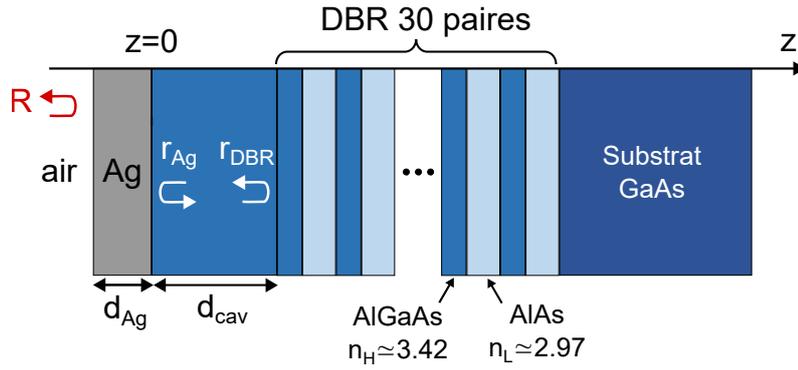


FIGURE 1.12 – Schéma de la cavité fictive pour modéliser la résonance Tamm.

la direction $z > 0$. L'onde E_2 obtenue après un aller-retour de E_1 dans la cavité s'écrit :

$$E_2 = r_{Ag} e^{i\phi} r_{DBR} e^{i\phi} E_1 \quad (1.46)$$

où $\phi = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_{AlGaAs} d_{cav}$ est la phase accumulée lors d'un aller ou un retour dans la longueur de la cavité. λ_0 désigne la longueur d'onde dans le vide de l'onde. L'onde E_2 est en phase avec E_1 si

$$\arg(e^{2i\phi} r_{Ag} r_{DBR}) = 2p\pi \quad (1.47)$$

où p est un nombre entier.

Dans une structure Tamm, le DBR et l'argent sont directement en contact, donc il n'y a pas de cavité à proprement parlé, et $d_{cav} = 0$. Néanmoins, on peut considérer la structure Tamm comme une cavité d'épaisseur nulle, au sens où un mode résonant peut exister à la condition que :

$$\arg(r_{Ag} r_{DBR}) = 0 \quad (1.48)$$

si l'on se restreint à des phases comprises entre $-\pi$ et π . Autrement dit, il faut que les phases associées aux réflexions sur le métal et le DBR s'annulent. Par ailleurs, pour que l'onde soit confinée entre les deux éléments réfléchissants, il faut également qu'ils présentent une bonne réflectivité, soit :

$$|r_{Ag} r_{DBR}| \simeq 1 \quad (1.49)$$

Les figures 1.13 (a) et (b) montrent respectivement l'évolution avec la longueur d'onde des modules $|r_i|$ et des phases $\phi_i = \arg(r_i)$ des coefficients de réflexion r_{Ag} et r_{DBR} . La couche d'argent fournit un coefficient de réflexion proche de l'unité en valeur absolue dans toute la plage de longueur d'onde observée. En revanche, le DBR présente un bon coefficient de réflexion uniquement à l'intérieur de sa bande interdite, située entre $\simeq 857$ et 947 nm. C'est donc dans cette plage de longueur d'onde que l'on pourra éventuellement observer un mode optique avec un facteur de qualité raisonnablement élevé. Sur la figure 1.13 (b), on voit que la phase ϕ_{Ag} issue de la réflexion sur la couche métallique est très peu dépendante de la longueur

d'onde, et vaut $\phi_{Ag} \simeq -125^\circ$. La phase ϕ_{DBR} quant à elle varie entre 180° et 0° entre le milieu de la bande interdite et son bord à 947 nm. Il existe donc une seule longueur d'onde dans la bande interdite permettant $\phi_{DBR} + \phi_{Ag} = 0$. Dans cet exemple, cette condition est satisfaite à $\lambda = 929.3$ nm.

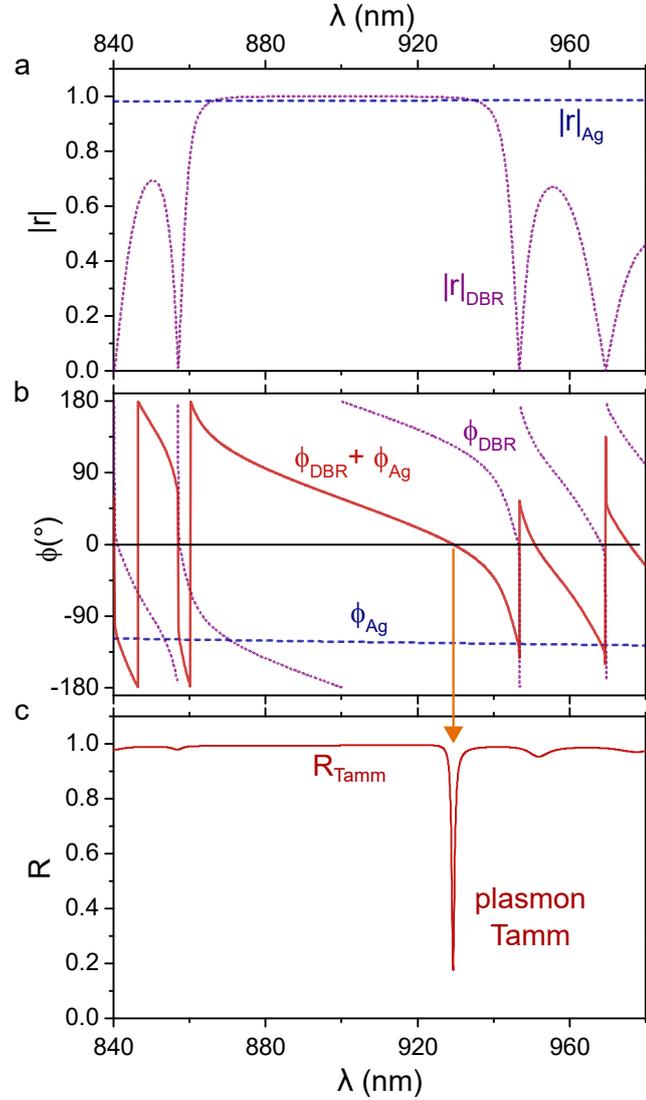


FIGURE 1.13 – (a) Simulation du module des coefficients de réflexion sur l'argent et sur le DBR, pour un milieu incident en AlGaAs (b) Phase des coefficients de réflexion sur l'argent et sur le DBR (c) Réflectivité de la structure complète, pour une onde incidente dans l'air provenant des $z < 0$.

La figure 1.13 (c) montre le coefficient de réflectivité $R = |r|^2$ de la structure totale, pour une onde incidente dans l'air se déplaçant vers les $z > 0$. Bien que la couche d'argent premièrement rencontrée par l'onde soit réfléchissante sur toute la plage de longueur d'onde sondée, il existe un creux de réflectivité très marqué, exactement à la longueur d'onde où les deux phases ϕ_{Ag} et ϕ_{DBR} s'annulent. Cela

signifie que l'onde incidente parvient à exciter la structure en se couplant à un mode résonant. La figure 1.14 montre la simulation du champ électrique à l'intérieur de la structure, lorsque celle-ci est excitée par une onde incidente à $\lambda = 929.3 \text{ nm}$. La courbe rouge correspond au module carré du champ électrique normalisé par son maximum $|E|^2/|E|_{max}^2$ et la courbe noire à la partie réelle de l'indice optique à travers la structure. Le mode excité par l'onde incidente est localisé proche de la surface, et son maximum se trouve dans la dernière couche du DBR, celle qui est en contact avec l'argent. Ce mode est appelé plasmon Tamm.⁶⁰ Le module carré de son champ électrique oscille dans le DBR et s'atténue lorsque l'on s'éloigne de l'interface Ag/DBR. Un ajustement de $|E|^2$ dans le DBR par une fonction oscillante atténuée $f(z) = A \cos^2(2\pi z/z_{osc} + \Phi) \exp(-z/\delta_{DBR})$ donne une longueur d'atténuation $\delta_{DBR} \simeq 0.8 \mu\text{m}$.¹⁰⁰ La figure 1.15 (a) montre la simulation du module carré du champ, proche de l'interface Ag/DBR. On peut observer que dans le métal, le champ électrique du plasmon Tamm s'atténue beaucoup plus rapidement que dans le DBR. La longueur de pénétration dans le métal, obtenue par un ajustement exponentiel de $|E|^2$, est $\delta_{Ag} \simeq 11 \text{ nm}$.

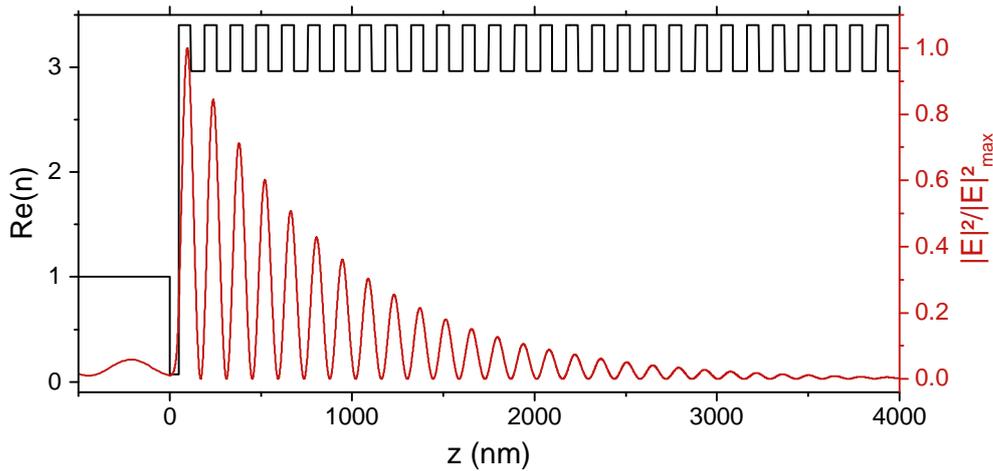


FIGURE 1.14 – Profil d'indice optique et simulation du module carré du champ électrique à $\lambda = 929.3 \text{ nm}$

Le mode Tamm réside donc très majoritairement dans la partie semi-conductrice de la structure, et très peu dans le métal. Pour cette raison, les pertes de ce mode optique sont relativement faibles pour un mode hybride métal-semiconducteur. En figure 1.15 (b) se trouve le même spectre de réflectivité qu'en figure 1.13 (c) mais agrandie autour du pic Tamm à λ_T . La largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda_T$ du pic est d'environ 0.88 nm . On peut en déduire un facteur de qualité :

$$Q = \frac{\lambda_T}{\Delta\lambda_T} \simeq 1050 \quad (1.50)$$

Ce facteur de qualité est limité par trois types de pertes : les pertes radiatives par transmission à travers le métal (γ_{rad}), les pertes par transmission à travers le

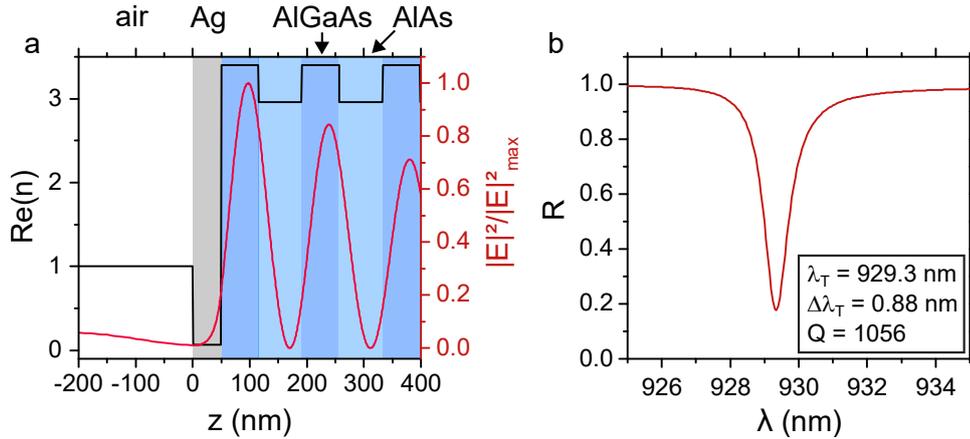


FIGURE 1.15 – (a) Profil d'indice optique et module carré du champ électrique à λ_T proche de l'interface Ag/DBR (b) Pic de réflectivité du mode Tamm (zoom).

DBR (γ_{DBR}) et les pertes par absorption dans le métal ($\gamma_{m\acute{e}tal}$), de sorte que l'on puisse écrire le facteur de qualité comme :

$$Q \propto \frac{1}{\gamma_{rad} + \gamma_{DBR} + \gamma_{m\acute{e}tal}} \quad (1.51)$$

Le rôle de ces pertes sera discuté dans la section suivante.

1.2.5 Propriétés des modes Tamm

Influence de l'épaisseur d'argent

Toutes les simulations de structures Tamm précédentes prenaient une épaisseur d'argent de 50 nm. Nous allons voir que cette épaisseur joue un rôle important dans les propriétés du mode Tamm.

La figure 1.16 (a) montre le spectre de réflectivité de la même structure en fonction de l'épaisseur d'argent d_{Ag} . Sans argent, le principal pic de réflectivité à 945 nm correspond au mode de bord de bande interdite du DBR, ou mode de Bragg. En ajoutant progressivement de l'argent sur la structure, ce mode se décale vers les courtes longueurs d'onde et s'affine, pour donner le plasmon Tamm. Pour une épaisseur d'argent inférieure à 30 nm, le mode Tamm est assez mal défini : son pic de réflectivité est très large et peu profond. La figure 1.16 (b) montre l'évolution de la réflectivité au minimum du pic principal en fonction de l'épaisseur d'argent. Cette grandeur correspond à la capacité du mode optique sondé à se coupler aux ondes de l'espace libre. Elle détermine donc la capacité d'extraction de la lumière de la structure vers l'extérieur, ou en d'autres termes, les pertes radiatives du mode. Pour une épaisseur d'argent nulle, la réflectivité au mode de Bragg est assez proche de zéro, ce qui traduit un très bon couplage de l'onde incidente avec ce mode, qui transmet l'énergie lumineuse à travers le DBR vers le substrat. En épaississant l'argent, la valeur de la réflectivité au minimum du pic augmente jusqu'à un maximum situé

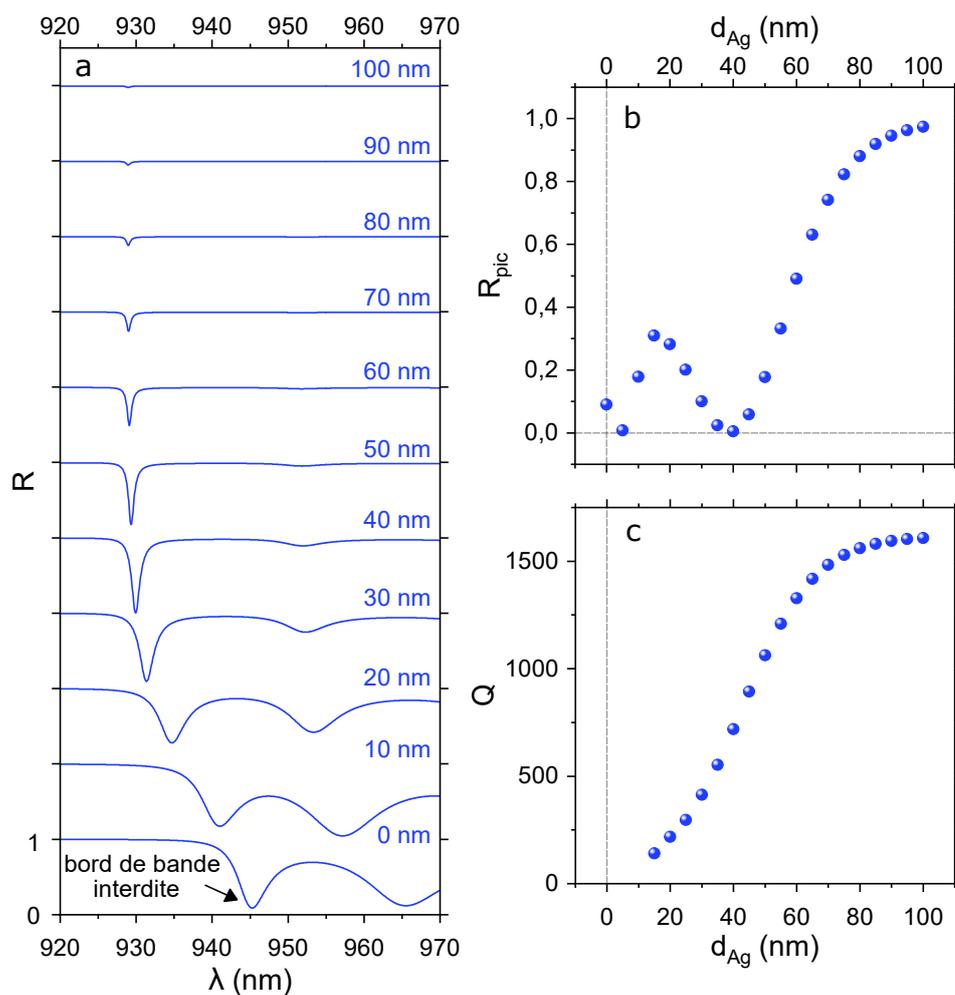


FIGURE 1.16 – (a) Spectre de réflectivité de la structure en fonction de l'épaisseur d'argent d_{Ag} . Les spectres sont décalés verticalement pour la lisibilité. (b) Minimum de réflectivité du pic principal (c) Facteur de qualité du pic principal.

autour de $d_{Ag} \simeq 15$ nm, où la résonance est la moins bien définie, ce que l'on observe sur les spectres de la figure 1.16 (a). Elle diminue ensuite jusqu'à un minimum très proche de zéro à $d_{Ag} = 40$ nm. C'est donc cette épaisseur qui permet le meilleur couplage entre le plasmon Tamm et une excitation externe résonante. Cette valeur optimale dépend légèrement d'autres paramètres de la structure, telles que le nombre de paires du DBR, le contraste d'indice entre les couches quarts d'onde et les pertes métalliques. En épaississant encore l'argent, la résonance Tamm n'est guère décalée, car la phase du coefficient de réflexion sur l'argent devient proche de celle obtenue avec une couche infinie. En revanche, le pic de réflectivité devient de moins en moins profond, jusqu'à ce que le mode Tamm devienne inaccessible en réflectivité, vers $d_{Ag} \simeq 90$ -100 nm.

La figure 1.16 (c) montre l'évolution du facteur de qualité Q de la résonance avec l'épaisseur d'argent. Ce facteur n'est pas tracé pour les très faibles épaisseurs,

où la résonance est intermédiaire entre le mode de Bragg et le mode Tamm. À partir de 15 nm, le facteur de qualité ne fait qu'augmenter en épaississant l'argent, jusqu'à plafonner vers une valeur $Q_{max} \simeq 1600$, où le mode devient imperceptible en réflectivité. Les pertes radiatives sont alors tellement faibles que seules comptent les pertes dans le métal et les éventuelles pertes par transmission à travers le DBR. À partir de cette valeur, on peut estimer l'épaisseur pour laquelle les pertes radiatives à travers l'argent (où les pertes utiles) sont égales aux autres pertes :

$$\gamma_{rad} = \gamma_{m\acute{e}tal} + \gamma_{DBR} \quad (1.52)$$

ce qui est obtenu lorsque $Q = Q_{max}/2 \simeq 800$ d'après 1.51. Cette valeur est obtenue pour une épaisseur située entre 40 et 45 nm, soit là où la variation du facteur de qualité avec l'épaisseur d'argent est la plus rapide. On peut également remarquer que c'est cette épaisseur qui fournit le pic de réflectivité le plus profond et donc le meilleur couplage avec l'extérieur. Cette question du lien entre le couplage du plasmon Tamm et ses différentes sources de pertes a été étudiée en détail dans les articles de Augu   et al. ou Messelot et al. auxquels on pourra se r  f  rer.^{85,101}

Pour conclure, nous choisirons en g  n  ral de travailler avec des   paisseurs comprises entre 40 et 50 nm. Nous pourrions   paissir la couche d'argent pour augmenter le facteur de qualit  , mais le prix    payer sera une excitation du mode plus difficile en r  flectom  trie, et une quantit   de lumi  re sortante plus faible en photoluminescence ou   lectroluminescence.

Dispersion de la r  sonance Tamm

Jusqu'   pr  sent, la r  ponse de la structure n'a   t   sond  e qu'   incidence nulle. Or la r  sonance Tamm pr  sente une dispersion angulaire qu'il est utile de conna  tre. La figure 1.17 montre les spectres de r  flectivit   simul  s pour le DBR et le DBR couvert de 50 nm d'argent, en fonction de $\sin(\theta)$, o   θ est l'angle d'incidence dans l'air. Pour visualiser la d  pendance    la polarisation, la grandeur trac  e est la r  flectivit   moyenne des r  flectivit  s calcul  es en polarisations TE et TM.

La r  sonance Tamm pr  sente une dispersion parabolique, tr  s similaire    celle des modes du DBR. Par cons  quent, quelque soit l'angle, l'  cart spectral entre le plasmon Tamm et le mode de Bragg inf  rieur est    peu pr  s constant. On remarque que les r  sonances Tamm en polarisation TE et TM pr  sentent une parabolicit   l  g  rement diff  rente, qui permet de les discerner aux angles   lev  s.

1.2.6 Structure Tamm pour l'  mission de lumi  re

Nous d  crirons rapidement dans cette partie les m  canismes r  gissant l'interaction lumi  re-mati  re dans les structures Tamm comportant des   metteurs.

Puits quantiques

Diff  rents types d'  metteurs peuvent   tre int  gr  s dans les structures Tamm pour en faire des sources de lumi  re, comme des bo  tes quantiques,^{73,75,102} des couches

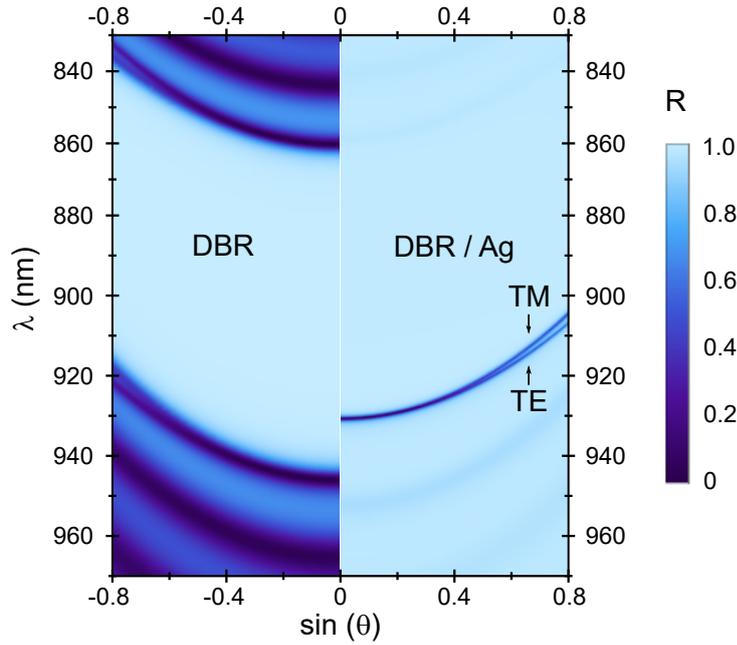


FIGURE 1.17 – Simulation de la réflectométrie résolue en angle du DBR (gauche) et de la structure DBR/Ag (droite)

organiques^{63,64} ou des nano-cristaux colloïdaux.¹⁰³ Dans cette thèse, nos émetteurs seront des puits quantiques (PQ) semi-conducteurs,⁶⁵ car ce sont des émetteurs adaptés pour l'émission laser et pour l'injection électrique. Nous utiliserons des PQ de GaAs intégrés dans de l' $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ dans les expériences du chapitre 2, et des puits d' $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ séparés par des barrières de GaAs dans les chapitres 3, 4 et 5. À température ambiante, ces deux types de PQ émettent respectivement vers 850 nm et 940 nm.

Les PQ ont permis de nettes améliorations des performances des lasers à semi-conducteur. Malgré la diminution du nombre d'états et le faible recouvrement entre le ou les puits et le mode de cavité, les lasers à PQ présentent des seuils laser plus faibles, de meilleurs rendements et de meilleures propriétés de modulation que ceux des lasers à double hétérostructure.¹⁰⁴

L'intérêt des PQ pour les lasers résulte de la forme de la densité d'état électronique qui les caractérise. Le principe d'un PQ est de réduire l'épaisseur de la couche active jusqu'à observer un confinement des porteurs de charges, qui se traduit par une discrétisation des états d'énergie. Prenons l'exemple d'un PQ de type I d'un matériau 1, dont le bas de la bande de conduction est à l'énergie $E_{c,1}$, et d'épaisseur L_z . Le bas de la bande de conduction du milieu environnant (milieu 2) est $E_2 > E_1$. Un schéma de ce puits se trouve en figure 1.18 (a). Dans l'approximation des bandes paraboliques, l'énergie cinétique d'un électron de conduction dans le PQ est :

$$E(\vec{k}) = E_{c,1} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m^*} \quad (1.53)$$

où \vec{k} est le vecteur d'onde de l'électron et m^* sa masse effective. Si L_z est suffisam-

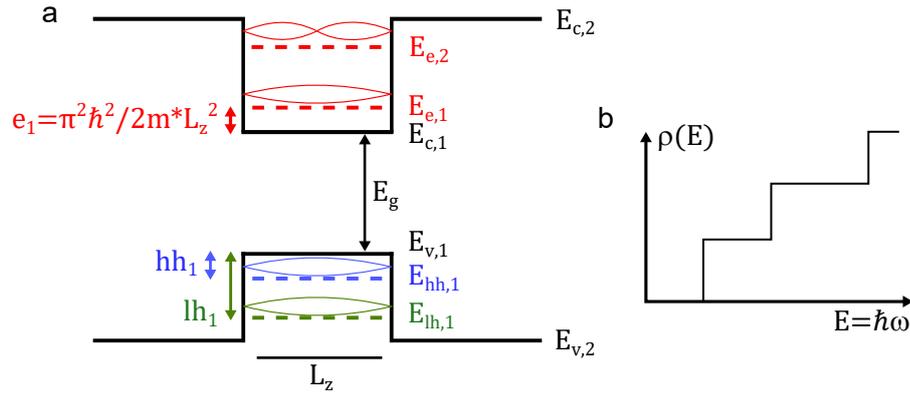


FIGURE 1.18 – (a) Structure de bande d'un puits quantique de type I (b) Densité d'états à l'intérieur d'un PQ.

ment petite, et la différence d'énergie $E_2 - E_1$ suffisamment grande, alors il faut prendre en compte la quantification du vecteur d'onde dans la direction z . Dans l'hypothèse d'un puits de potentiel infini, les valeurs de $k_{z,n}$ sont telles que :

$$k_{z,n}L_z = n\pi \quad (1.54)$$

où n est un nombre entier supérieur ou égal à un. Dans ce cas, l'énergie cinétique de l'électron dans la direction du confinement est¹⁰⁵ :

$$e_n = \frac{\hbar^2}{2m^*}k_{z,n}^2 = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{n\pi}{L_z} \right)^2 \quad (1.55)$$

En pratique, il faut prendre en compte la hauteur finie de la barrière de potentiel pour estimer plus précisément e_n .

La relation de dispersion des électrons de conduction est donc composée de plusieurs sous-bande paraboliques, indexées par l'entier n :

$$E(\vec{k}) = E_{c,1} + e_n + \frac{\hbar^2 \vec{k}_{//}^2}{2m^*} \quad (1.56)$$

Un raisonnement équivalent conduit également à la quantification du vecteur d'onde k_z et des niveaux d'énergie des trous de valence. Dans certains matériaux semi-conducteurs, comme le GaAs et l'InGaAs, deux bandes de valences existent, associées à des masses effectives différentes. On parle de trous lourds et de trous légers. Pour un matériau massif, les niveaux d'énergie en bas de parabole de dispersion sont dégénérés. Dans le cas des PQ, l'équation 1.55 exprimant l'énergie de confinement fait intervenir la masse effective de la particule au dénominateur, ce qui entraîne une levée de dégénérescence des trous lourds et légers à $\vec{k}_{//} = 0$. En pratique, cela permettra l'existence de deux transitions optiques d'énergie $E_{e,1} - E_{hh,1}$ et $E_{e,1} - E_{lh,1}$, aux propriétés différentes, entre les premiers niveaux à $n = 1$.^{106,107} Les indices e , hh et lh se réfèrent respectivement aux électrons de conduction, aux trous lourds (*heavy holes*) et aux trous légers (*light holes*).

La quantification du vecteur d'onde dans la direction de croissance a pour conséquence l'apparition d'une densité d'état dans les puits sous forme de marches, comme schématisé en figure 1.18 (b). Grâce à cette forme particulière, la densité de porteurs nécessaire à l'obtention d'un gain optique donné est plus faible dans un PQ que dans le matériau massif, pour une même épaisseur de matériau considéré.⁷ C'est en partie ce point qui permet de réduire le seuil laser en utilisant des PQ en guise de milieu à gain. D'autres effets, comme l'augmentation des interactions lumière/dipôle, électrons/trous et l'amélioration du rendement quantique y contribuent également.⁷

Dans les lasers VCSEL, les PQ sont insérés dans la cavité entre les deux DBR, proche du ou des maximums du champ électrique. La démarche à suivre pour les sources Tamm est similaire : même si la structure ne comporte pas de cavité, les puits doivent être placés sur les maximums du champ électrique, pour profiter d'une bonne interaction avec le mode Tamm. Les maximums du champ électrique se trouvent dans les couches de haut indice proches de la surface (voir figure 1.15 (a)), c'est donc ici que nous placerons les PQ. Par exemple, la première structure Tamm à PQ, montrée en figure 1.19, en comportait deux dans les quinze couches de haut indice proche de la surface.

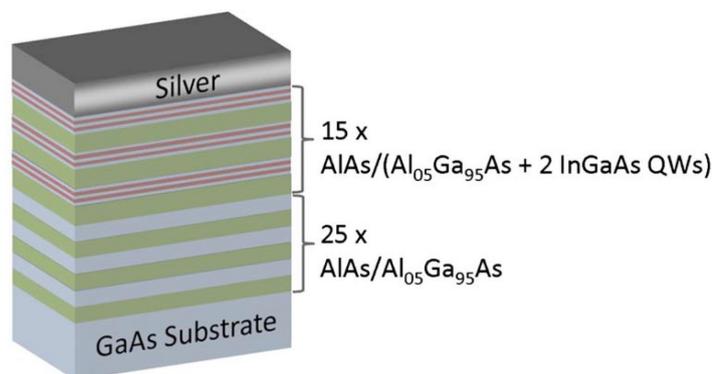


FIGURE 1.19 – Schéma de la première structure Tamm à PQ, tiré d'une publication de 2009.⁶⁵

Effet laser

L'interaction lumière-matière dans une micro-cavité semi-conductrice est relativement complexe, en raison de la variété des mécanismes régissant les populations de paires électron-trou et de photons, et de part la nature non linéaire d'une partie d'entre eux. L'effet laser est un régime particulier, dans lequel l'émission stimulée joue un rôle prépondérant pour l'émission de lumière.

Un modèle simple d'évolution des populations de paires électron-trou N et de

photons dans le mode optique d'intérêt P est décrit par les équations suivantes¹⁰⁸ :

$$\frac{dN}{dt} = R - gP - \frac{N}{\tau_{sp}} - \frac{N}{\tau_{nr}} \quad (1.57)$$

$$\frac{dP}{dt} = gP + \frac{\beta N}{\tau_{sp}} - \frac{P}{\tau_{cav}} \quad (1.58)$$

R désigne le taux de génération de paires électron-trou issu d'un apport d'énergie externe, à savoir un pompage optique ou bien une injection électrique. g est le gain optique à la longueur d'onde du mode optique considéré. Il est positif si la densité de porteurs de charge est supérieur au seuil de transparence. Sinon, il est négatif et traduit l'absorption de lumière par le semi-conducteur. τ_{sp} et τ_{nr} sont respectivement les temps de recombinaison par émission spontanée et non-radiative. β est la fraction de l'émission spontanée partant dans le mode d'intérêt. Enfin, τ_{cav} est le temps de vie d'un photon du mode dans la cavité passive.

Le régime laser est caractérisé par une prédominance de l'émission stimulée sur l'émission spontanée. L'émission de lumière s'effectue très majoritairement dans le mode optique en régime laser, et ce de manière cohérente. Ce régime non linéaire survient à partir d'un seuil, dont la définition est sujette à discussion, surtout dans les micro et nano-lasers présentant un fort taux β de couplage de l'émission spontanée dans le mode d'intérêt.^{47,108} Si le facteur β n'est pas trop proche de l'unité, le seuil de régime laser est identifié par une augmentation largement sur-linéaire de l'émission avec le taux de génération de porteurs de charge R .

Diminution de la taille et effet Purcell

Les propriétés de désexcitation d'un émetteur par émission spontanée ne sont pas uniquement des caractéristiques intrinsèques à l'émetteur : elles dépendent aussi fortement de son environnement. Par exemple, placer un émetteur dans une cavité résonante peut augmenter son taux de désexcitation par émission spontanée.^{109,110} Cette modification est quantifiée par le facteur de Purcell F_P . On peut le définir comme le rapport entre le taux d'émission spontanée Γ_{mode} de l'émetteur dans le mode optique de la cavité environnante sur le taux d'émission spontanée Γ_0 dans un milieu homogène et isotrope. Si son expression dépend de la géométrie de la cavité et de ses paramètres d'interaction avec l'émetteur, le facteur de Purcell est néanmoins généralement proportionnel au rapport Q/V , où Q est le facteur de qualité du mode optique de la cavité, et V son volume modal.^{48,109} L'augmentation du taux d'émission spontanée est par exemple utilisé pour augmenter la brillance et l'efficacité des sources de photons uniques, et diminuer leur temps de réponse.¹¹¹

Pour l'émission laser, l'effet Purcell peut être utilisé pour augmenter le taux d'émission spontanée du milieu à gain dans le mode optique de la cavité laser. On définit généralement le facteur β de couplage par émission spontanée des émetteurs au mode optique d'intérêt :

$$\beta = \frac{\Gamma_{mode}}{\Gamma_{tot}} \quad (1.59)$$

où Γ_{tot} est le taux de désexcitation spontanée total. En écrivant que $\Gamma_{tot} = \Gamma_{mode} + \Gamma_{autres}$ et en divisant par le taux d'émission spontanée hors cavité Γ_0 , on obtient pour β l'expression suivante^{61,72,100} :

$$\beta = \frac{F_P}{F_P + \gamma} \quad (1.60)$$

où $\gamma = \Gamma_{autres}/\Gamma_0$ désigne le facteur d'inhibition de l'émission spontanée ailleurs que dans le mode optique d'intérêt. Il est donc intéressant d'avoir un facteur de Purcell élevé pour obtenir un facteur de couplage β proche de l'unité et ainsi diminuer le seuil d'émission laser.^{46,47} Il existe pour cela deux principales stratégies, consistant soit à augmenter le facteur de qualité du mode optique, par exemple à l'aide d'une cavité à cristal photonique,^{112,113} soit à diminuer le volume du mode, par exemple en utilisant un métal pour confiner le mode.

Dans le cas des sources Tamm, la structuration du métal en surface permet de confiner le mode Tamm dans les trois directions de l'espace, et ainsi augmenter le facteur de couplage β .^{72,73,102} L'équipe MNP a pu montrer en 2013 que l'augmentation du facteur β entraîne la réduction du seuil d'effet laser.⁶¹ Plus précisément, le seuil laser pour un disque d'argent de diamètre 4 μm a été trouvé environ deux fois plus petit que pour des disques de dimension supérieure à 6 μm , s'apparentant alors au cas d'un plasmon Tamm non confiné. L'effet laser n'était en revanche pas observé pour des tailles inférieures à 3 μm . Cela s'explique par une forte augmentation des pertes du mode par diffraction en diminuant la taille, et cette augmentation n'est alors plus compensée par celle de β .

1.3 Caractérisation expérimentale

Dans cette partie seront décrites les différentes techniques expérimentales de caractérisation des échantillons étudiés pendant ce travail de thèse. Nous commencerons par décrire les expériences de caractérisation optique passive et active. Nous évoquerons ensuite le cas des mesures à basse température. Enfin, nous aborderons les expériences spécifiques à la caractérisation des échantillons Tamm à injection électrique.

1.3.1 Réflectométrie résolue en angle

Pour étudier les caractéristiques du plasmon Tamm et plus généralement la structure modale de l'échantillon ainsi que son absorption, il est préférable d'utiliser une méthode de caractérisation passive. Par méthode passive, entendons une méthode qui peuple suffisamment peu les modes optiques et les bandes de conduction des différents matériaux semi-conducteurs pour que la structure puisse être considérée "au repos". Ces méthodes de caractérisations passives correspondent aux mesures de réflectivité, de transmission et d'absorption. La transmission de nos échantillons étant très faible, à cause du grand nombre de paires de couches quart d'onde de nos DBR, sa mesure n'est pas très adaptée pour caractériser nos échantillons Tamm.

Une pure mesure d'absorption est quant à elle souvent difficile à effectuer. En effet, soit elle est déduite de mesures de réflectivité et de transmission, soit elle est estimée par une méthode indirecte, plus ou moins complexe à mettre en œuvre suivant la technique, mais souvent par le biais d'une mesure de photoluminescence.¹¹⁴ La grandeur dont la mesure est la plus simple et la plus efficace pour caractériser nos structures est la réflectivité, dont nous allons décrire la mesure.

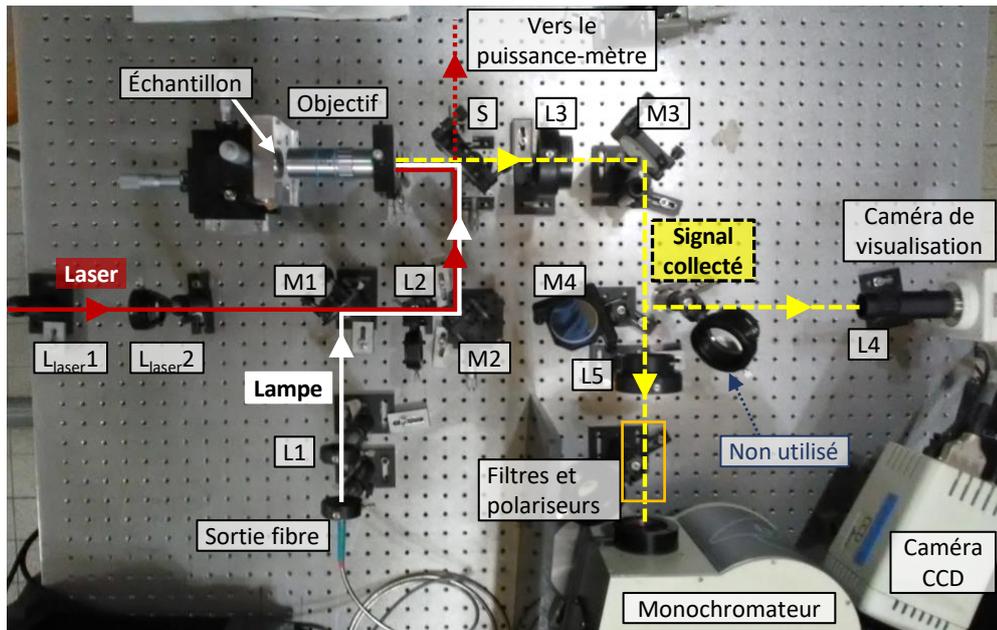


FIGURE 1.20 – Photographie du montage de caractérisation optique. Les tracés blanc et rouge représentent respectivement les trajets de la lampe blanche et du laser de pompe avant d'arriver à l'échantillon. Le pointillé jaune représente le trajet du signal collecté.

Une photographie de notre montage est représentée en figure 1.20. L'excitation est fournie par une lampe à spectre large à sortie fibrée. Le point de sortie de la fibre est collimaté par une lentille convergente L1, puis est envoyé par une lame séparatrice S sur la face d'entrée d'un l'objectif de microscope de grossissement x50 et de large ouverture numérique. Le point de sortie de la fibre est imagé sur la surface de l'échantillon lorsque celui-ci est placé dans le plan focal avant de l'objectif. La lumière réfléchiée par l'échantillon est collectée par le même objectif, renvoyée à l'infini, puis focalisée sur une caméra de visualisation ou bien sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Une image du point d'excitation est montrée en figure 1.21 (a). Son diamètre est d'environ $35\ \mu\text{m}$ sur la surface de l'échantillon. Cette petite taille permet de mesurer la réflectivité locale, ce qui est utile notamment quand l'échantillon est micro-structuré en surface. Ce point d'excitation peut être élargi en plaçant la lentille L2 sur le trajet de la lampe, pour obtenir un champ plus large, visible en figure 1.21 (b). Cette configuration de champ large est utile pour se repérer sur l'échantillon et enregistrer des images de sa surface.

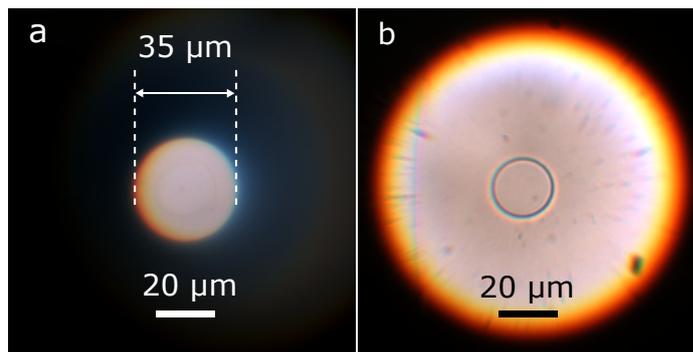


FIGURE 1.21 – (a) Sortie de la fibre de la lampe blanche imagée sur la surface de l'échantillon, et observée à la caméra de visualisation. (b) Imagerie en champ large d'un micro-disque Tamm.

La lampe d'excitation utilisée est une lampe blanche halogène DH-2000. L'objectif de microscope est un objectif Mitutoyo de grossissement $\times 50$ et d'ouverture numérique $NA = 0.75$, corrigé à l'infini. Sa distance de travail est de 5.2 mm. Deux caméras de visualisation à technologie CCD ont alternativement été utilisées : une Nikon DS-Fi1 et une Andor Clara.

Pour mesurer la réflectométrie au niveau du point excité, la lumière réfléchiée par l'échantillon est dirigée vers un spectromètre à réseau. Il s'agit d'un système ISA Jobin Yvon Triax 320, comportant trois réseaux de pas différents (600, 1200 et 1800 traits par mm). Il est couplé à une caméra CCD Symphony Horiba - Jobin Yvon refroidie. Son capteur est une matrice rectangulaire de taille 256 x 1024. Si l'on image le point d'excitation sur la fente d'entrée du spectromètre on mesure alors une réflectivité résolue spatialement dans une direction de l'espace (la direction de la fente). Toutefois, pour étudier la structure modale de la zone étudiée, il est plus intéressant de mesurer la réflectivité résolue en angle. L'idée est d'obtenir une image correspondant à la relation de dispersion des modes optiques de la structure. Pour cela, une lentille L3, dite "lentille de Fourier" est placée sur le trajet optique de la lumière collectée. Les schémas optiques des configurations d'imagerie directe et d'imagerie de Fourier sont donnés en figure 1.22. La lentille de Fourier est placée de sorte que son plan focal objet coïncide avec le plan focal arrière de l'objectif. Ce plan est également appelé "plan de Fourier", car l'intensité lumineuse dans ce plan est proportionnelle au module carré de la transformée de Fourier spatiale de l'amplitude émise au niveau de l'échantillon. Ce plan est envoyé à l'infini par la lentille de Fourier, et peut ensuite être imagé sur la caméra ou sur la fente d'entrée du spectromètre. En figure 1.23 (a) se trouve une image de la réflexion du point d'excitation par une couche métallique épaisse, observée dans le plan de Fourier. La limite circulaire de la lumière mesurée correspond aux plus grands angles d'émission que l'objectif de microscope peut transmettre, soit à $\sin \theta = NA = 0.75$. La figure 1.23 (b) présente le principe d'obtention d'une image de réflectivité résolue en angle. La fente d'entrée du spectromètre sélectionne une tranche du plan de Fourier passant par son centre. Le signal rentrant dans le spectromètre est donc résolu angulairement dans la direction

y . Il est ensuite diffracté par le réseau du spectromètre, pour obtenir une résolution en longueur d'onde dans la direction x . L'ordre 1 de diffraction est sélectionné, et envoyé vers la caméra CCD pour enregistrer le signal. Les images enregistrées sont donc résolues spectralement sur 1024 pixels et angulairement (selon $\sin \theta_Y$) sur 256 pixels.

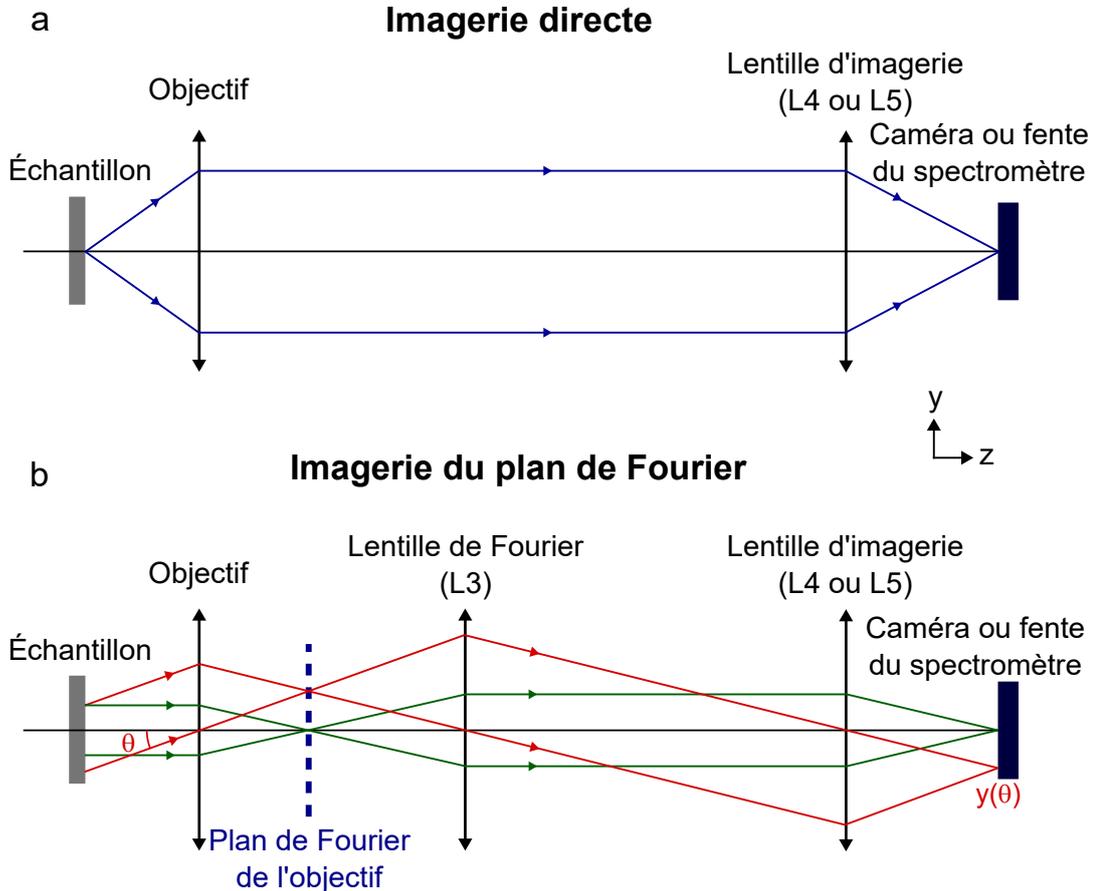


FIGURE 1.22 – (a) Schéma optique pour l'imagerie directe de la surface de l'échantillon (b) Schéma optique pour l'imagerie du plan de Fourier.

1.3.2 Photoluminescence

Pour étudier l'émission de la structure, des mesures de photoluminescence sont effectuées. Le même montage optique est utilisé, mais l'excitation de la structure est apportée par un laser titane-saphir Spectra Physics Tsunami accordable. Celui-ci est pompé par un autre laser, un système Spectra Physics Millennia pro à crystal de vanadate d'yttrium dopé aux ions néodyme ($\text{Nd}:\text{YVO}_4$) émettant à 1064 nm et doublé en fréquence pour émettre à 532 nm. Le laser titane-saphir est principalement utilisé entre $\simeq 700$ et 850 nm. Il peut fonctionner en mode impulsif, en blocage de mode, à une cadence de 80 MHz. La largeur spectrale de l'émission, liée à la

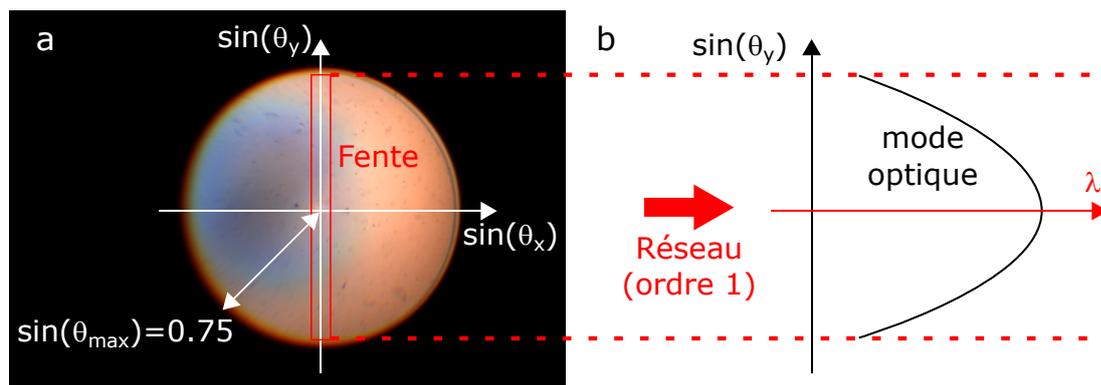


FIGURE 1.23 – (a) Plan de Fourier, éclairé en lampe blanche (b) Principe de la réflectométrie résolue en angle.

durée d'impulsion et donc à la puissance crête, peut être contrôlée. L'émission est polarisée linéairement.

Ce laser est envoyé, comme la lampe d'éclairage, vers la face d'entrée de l'objectif de microscope. Le faisceau est souvent élargi avec un télescope (les lentilles $L_{\text{laser}1}$ et $L_{\text{laser}2}$ sur la photographie en figure 1.20) avant d'atteindre l'objectif, pour élargir le point d'excitation sur l'échantillon à un diamètre d'environ $15\ \mu\text{m}$. Sa puissance moyenne est mesurée à l'aide d'un puissance-mètre placée derrière la lame séparatrice, récupérant la lumière transmise qui n'est pas envoyée dans l'objectif de microscope. Le laser d'excitation est partiellement réfléchi par l'échantillon, surtout si celui-ci est recouvert d'argent. Il est donc envoyé vers la caméra de visualisation ou le spectromètre. Ce signal parasite étant en général beaucoup plus intense que la photoluminescence de l'échantillon, il est nécessaire de le couper. Pour cela, un ou des polariseurs bloquant la polarisation du laser et des filtres en longueur d'onde sont placés sur le chemin du signal collecté. Pour chercher à obtenir un effet laser dans nos structures Tamm, le laser est utilisé en mode impulsif. En effet, cela permet de générer une très forte densité de porteurs de charges dans la structure, tout en limitant les effets thermiques, car la durée d'impulsion est de l'ordre de $0.5\ \text{ps}$.

Comme dans le cas précédent de la source à spectre large, l'émission peut être observée sous différents angles. Elle peut être directement observée à la caméra, dans l'espace réel ou bien dans le plan de Fourier. En utilisant le spectromètre pour acquérir le signal d'émission, celui-ci est résolu spectralement. Il peut être résolu angulairement si la lentille de Fourier est présente, ou spatialement si elle est retirée. Pour chercher un effet laser, on se place le plus souvent en détection résolue en angle et en longueur d'onde, car l'effet laser se manifeste par la concentration angulaire et spectrale de l'émission.⁶⁷ Plus généralement, l'étude de la photoluminescence résolue en angle permet d'identifier dans quels modes optiques est émise la luminescence des émetteurs.

1.3.3 Expériences à basse température

Certaines expériences, notamment la recherche d'un effet laser, peuvent être effectuées à température cryogénique, car le gain des matériaux semi-conducteurs est alors beaucoup plus élevé qu'à température ambiante.¹¹⁵ Pour cela, certains échantillons Tamm sont testés dans un cryostat et refroidis à l'azote liquide. Notre cryostat est un système Microstat HiRes commercialisé par Oxford Instruments. L'échantillon d'intérêt est placé sur un échangeur thermique en cuivre, lequel est refroidi par l'azote apporté au cryostat par un capillaire. Soit l'échantillon est collé directement avec de la laque d'argent, assurant une bonne conductivité thermique entre les deux éléments. Soit, dans le cas de mesures d'électroluminescence, l'échantillon est collé sur une fine plaque de cuivre intermédiaire, permettant de contacter les micro-structures à la surface de l'échantillon avec un ou des fils de contact. L'échangeur thermique sur lequel est placé l'échantillon est relié à une résistance, associée à un contrôleur de température externe. Celui-ci permet d'ajuster avec un contrôleur PID la température de l'échangeur autour d'une valeur de consigne, entre $\simeq 77$ K et la température ambiante. Une fenêtre permet un accès optique à l'échantillon.

1.3.4 Caractérisation électrique

Pour les échantillons Tamm à injection électrique qui seront fabriqués durant cette thèse, un platine de test sous pointes est utilisée pour faire passer un courant électrique à travers la structure et ainsi mesurer ses propriétés de conduction.

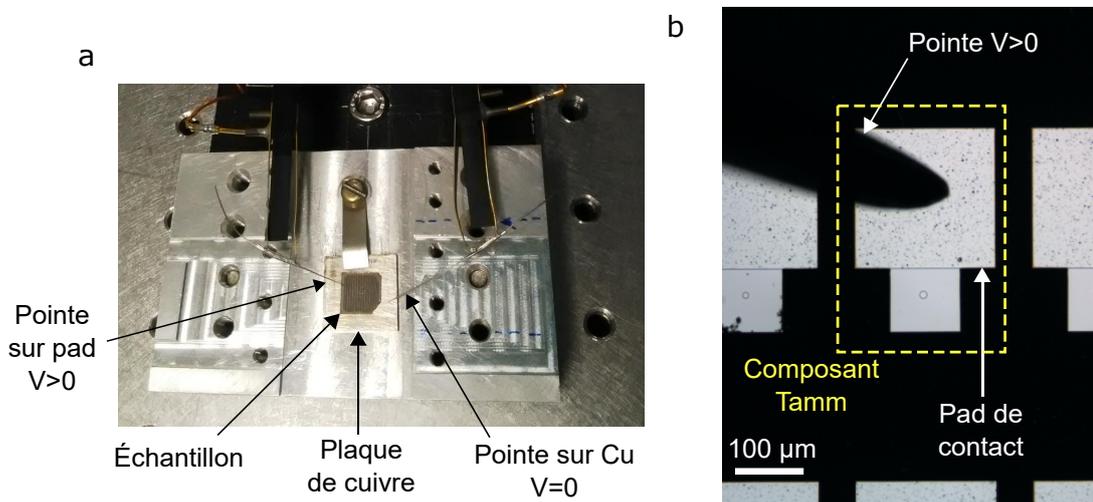


FIGURE 1.24 – (a) Photographie de la platine de test sous pointes (b) Contact d'un composant Tamm

Du fait de la structure des échantillons Tamm électrique, qui sera décrite dans le chapitre 3 en section 3.2, une tension positive doit être appliquée entre un pad de contact sur la face supérieure de l'échantillon (anode) et sa face arrière (cathode). Pour assurer le contact sur la face arrière, cette dernière est collée à une fine plaque

de cuivre avec de la laque d'argent. L'échantillon et son support sont ensuite posés sur la platine de test. Une photographie d'un échantillon sur la platine se trouve en figure 1.24 (a). Deux pointes en tungstène placées sur des platines de micro-contrôle permettent de contacter l'échantillon. Les deux pointes sont reliées aux deux bornes de sortie d'une alimentation Keithley 2401 SourceMeter. Cette source permet d'imposer une tension à ses bornes de sortie, et de mesurer l'intensité du courant électrique traversant le circuit mis en regard, ou bien d'imposer le courant et de mesurer la tension. La borne négative de la source, correspondant à la masse, est mise en contact avec l'arrière de l'échantillon en posant la pointe associée sur la plaque de cuivre. Un potentiel positif est appliqué sur le pad de contact d'un composant avec l'autre pointe, comme montré en figure 1.24 (b). La manipulation s'effectue sous un microscope.

Une donnée intéressante pour l'étude d'un composant électrique est sa caractéristique courant-tension I-V. Celle-ci peut être mesurée de manière automatisée avec un programme LabVIEW pilotant la source Keithley.

1.3.5 Électroluminescence

Pour mesurer et caractériser l'électroluminescence des sources Tamm à injection électrique, plusieurs configurations différentes ont été utilisées pendant cette thèse.

Observation au microscope

La première et la plus simple des configurations consiste à tester l'échantillon avec la platine à pointes placée sous le microscope d'observation, comme pour les mesures électriques présentées ci-dessus. Cette configuration permet surtout de vérifier rapidement si l'échantillon émet de la lumière à température ambiante, et d'observer par où cette lumière est émise. La caméra associée à ce microscope n'étant pas très sensible à nos longueurs d'onde de travail, cette configuration ne permet pas de mesures très précises, ni des mesures résolues spectralement ou angulairement.

Caractérisation fine de l'électroluminescence à température ambiante

Pour mieux caractériser l'électroluminescence à température ambiante, la platine de test peut être placée dans le montage d'analyse optique décrit en sections 1.3.1 et 1.3.2. Pour cela, elle est placée juste devant l'objectif de microscope, comme sur la photographie de la figure 1.25. De cette manière, l'électroluminescence peut, tout comme la réflectivité ou la photoluminescence, être résolue spectralement, spatialement ou angulairement. Un avantage de ce montage expérimental est la possibilité de coupler la mesure d'électroluminescence avec des mesures de réflectométrie avec la lampe ou de photoluminescence avec le laser Ti-Saphir. Cela permet notamment de bien comprendre la structure modale des échantillons sans les perturbations occasionnées par l'injection électrique.

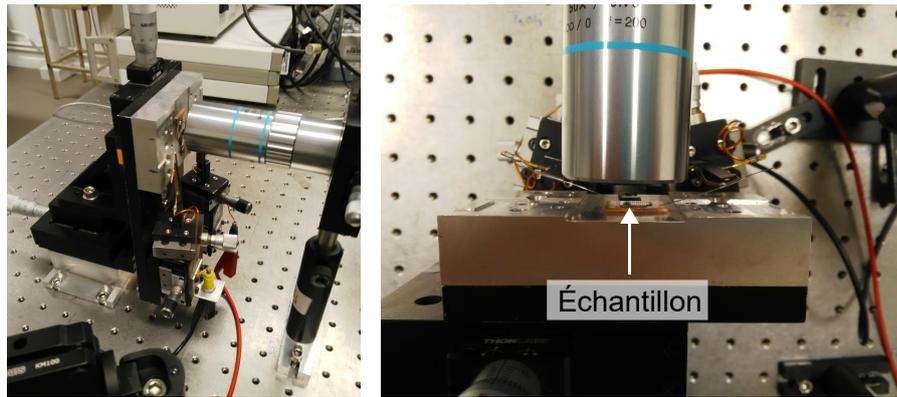


FIGURE 1.25 – Caractérisation électro-optique des composants Tamm à température ambiante.

Mesure d'électroluminescence à basse température

Si l'accord spectral entre l'émission et le mode est prévu à basse température, les échantillons Tamm à injection électrique peuvent alors être placés dans le cryostat. Celui-ci comporte plusieurs broches, accessibles depuis l'extérieur du cryostat. Elles permettent un contrôle électrique externe de composants placés à l'intérieur. Dans ce cas, l'échantillon est d'abord collé à la laque d'argent sur une plaque de cuivre, qui comporte cinq carrés de céramique couverts d'un revêtement Ti/Au, comme schématisé en figure 1.26. Ce collage permettra le contact cathodique de l'échantillon, car la plaque de cuivre sera ultérieurement collée à la laque d'argent sur l'échangeur thermique du cryostat, lui-même relié à la masse.

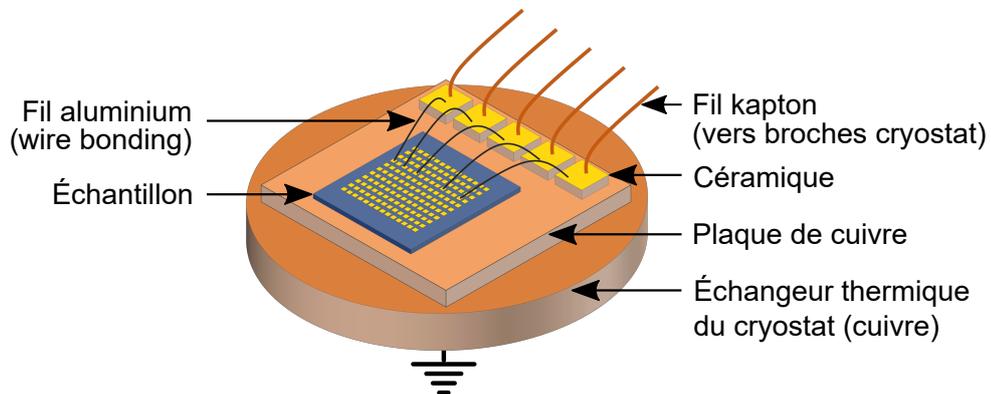


FIGURE 1.26 – Contact électrique des composants Tamm pour une caractérisation à l'intérieur du cryostat.

Cinq composants au maximum sont choisis sur l'échantillon pour être contactés au niveau de l'anode. Ce contact est d'abord effectué entre le pad de contact d'un composant et la surface métallisée d'un des carrés de céramique, avec une micro-câbleuse à fil ("wire bonder"). Ensuite, le support de l'échantillon est collé à l'échangeur thermique du cryostat, et chaque céramique est reliée à une broche du

cryostat par un fil conducteur à gaine kapton, pour résister à la très faible pression et à la basse température lors du fonctionnement du cryostat. On obtient de cette manière un accès électrique aux quelques composants choisis, que l'on peut tester à basse température.

Alimentation impulsionnelle

La source électrique Keithley utilisée pour les mesures électriques et électro-optiques fonctionne uniquement en régime continu. Or, il est parfois utile d'exciter un composant électrique en régime impulsionnel, afin de limiter les effets thermiques survenant en régime continu. Pour cela, un générateur de fonction Tektronix AFG3101C est utilisé. Il permet notamment d'exciter l'échantillon avec un signal créneau dont on peut régler la tension crête, la durée du créneau et la période. Pour limiter les effets thermiques, la durée de l'impulsion est en général réglée autour d'une centaine de nanosecondes avec une cadence au moins égale à $1 \mu\text{s}$.^{116,117}

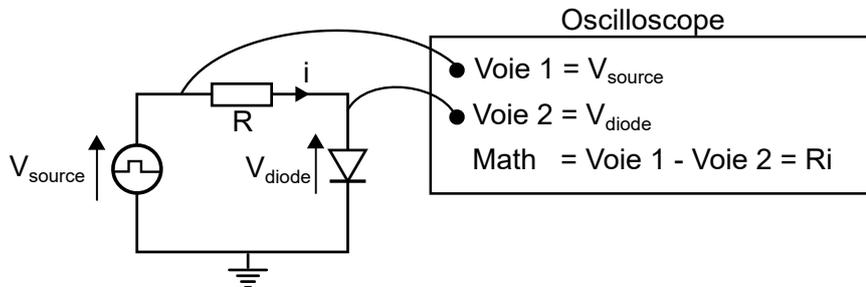


FIGURE 1.27 – Montage électrique pour l'alimentation électrique impulsionnelle des composants Tamm.

Le montage électrique pour l'excitation électrique impulsionnelle des composants Tamm est schématisé en figure 1.27. Les grandeurs électriques sont mesurées avec un oscilloscope Tektronix TBS 1052B-EDU. La tension de consigne de l'impulsion V_{source} et la tension aux bornes de la diode Tamm étudiée V_{diode} sont respectivement observées sur les voies 1 et 2 de l'oscilloscope. La mesure du courant s'effectue grâce à un boîtier de résistances monté en série avec l'échantillon Tamm. En général, la résistance choisie vaut $R = 100 \Omega$. La soustraction des tensions mesurées en voies 1 et 2 donne le courant i traversant l'échantillon à un facteur R près.

1.4 Conclusion du chapitre

Les plasmons Tamm, ou modes Tamm optiques, sont donc des modes photoniques hybrides, partageant des points communs avec les structures plasmoniques et les VCSEL. La verticalité de la structure, la présence d'un DBR et les possibilités d'injection électrique rappellent la structure d'un VCSEL. Mais le plasmon Tamm est avant tout caractérisé par sa localisation en surface, à l'interface entre le DBR et le métal, qui fournit un confinement optique comme dans le cas des plasmons de

surface. Le contrôle du mode par la seule structuration du métal permet d'envisager les modes Tamm pour de nouvelles sources de lumières, comme des sources aux polarisations complexes ou des sources à plasmon de surface. Nous avons présenté dans ce chapitre les principales propriétés de ces modes, ainsi que les moyens développés dans notre équipe de recherche pour les caractériser. La suite de ce manuscrit abordera les travaux, principalement expérimentaux, propres à ce travail de thèse. Ils concernent essentiellement l'obtention d'un effet laser à température ambiante et l'injection électrique des sources de lumière à plasmon Tamm.

Références

- ¹R. N. Hall et al., “Coherent Light Emission From GaAs Junctions”, *Physical Review Letters* **9**, 366-368 (1962).
- ²Semiconductor Today, “Edge-Emitting Laser Market Growing at 15% to \$6.6bn in 2026, Driven by Historical Applications”, *Semiconductor Today* **16**, 68-69 (2021).
- ³H. Soda et al., “GaInAsP/InP Surface Emitting Injection Lasers”, *Japanese Journal of Applied Physics* **18**, 2329-2330 (1979).
- ⁴V. Bardinal, “VCSELs : technologies et intégration photonique”, Habilitation à diriger les recherches (Université Paul Sabatier - Toulouse III, 9 avr. 2009).
- ⁵C. Jung et al., “4.8 mW Singlemode Oxide Confined Top-Surface Emitting Vertical-Cavity Laser Diodes”, *Electronics Letters* **33**, 1790-1791 (1997).
- ⁶R. Michalzik, “VCSEL Fundamentals”, in *VCSELs: Fundamentals, Technology and Applications of Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers*, sous la dir. de R. Michalzik, Springer Series in Optical Sciences (Springer, Berlin, Heidelberg, 2013), p. 19-75.
- ⁷C. Weisbuch et J. Nagle, “The Physics of the Quantum Well Laser”, *Physica Scripta* **T19**, 209-214 (1987).
- ⁸H. C. Casey, D. D. Sell et K. W. Wecht, “Concentration Dependence of the Absorption Coefficient for n- and p-Type GaAs between 1.3 and 1.6 eV”, *Journal of Applied Physics* **46**, 250-257 (1975).
- ⁹H.-T. Cheng et al., “Recent Advances in 850 Nm VCSELs for High-Speed Interconnects”, *Photonics* **9**, 107 (2022).
- ¹⁰E. Pougeoise, “VCSEL oxydés à base de GaAs émettant à 1.3 μm : conception, fabrication et caractérisation.”, Thèse de doctorat (Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 14 déc. 2006).
- ¹¹A. Rissons, “Caractérisation et Modélisation Optoélectronique de Diodes Laser à Cavité Verticale Émettant Par La Surface (VCSEL)”, Thèse de doctorat (École nationale supérieure de l’aéronautique et de l’espace -Toulouse, 14 oct. 2003).
- ¹²K. Iga, “Forty Years of Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser : Invention and Innovation”, *Japanese Journal of Applied Physics* **57**, 08PA01 (2018).
- ¹³T. Kageyama et al., “High Efficiency 1060nm VCSELs for Low Power Consumption”, in *2009 IEEE International Conference on Indium Phosphide & Related Materials* (mai 2009), p. 391-396.
- ¹⁴J.-C. Bouley, “Lasers à semi-conducteurs”, *Techniques de l’ingénieur Optique Photonique* **base documentaire : TIP520WEB**. E 2 660 (2007).
- ¹⁵J.-F. Seurin et al., “High-Power High-Efficiency 2D VCSEL Arrays”, in *Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers XII*, t. 6908 (29 jan. 2008), p. 45-58.
- ¹⁶J. Martín-Regalado et al., “Polarization Properties of Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **33**, 765-783 (1997).

- ¹⁷J. M. Ostermann et R. Michalzik, “Polarization Control of VCSELs”, in *VCSELs: Fundamentals, Technology and Applications of Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers*, t. 166, sous la dir. de R. Michalzik, Springer Series in Optical Sciences (Springer, Berlin, Heidelberg, 2013), p. 147-179.
- ¹⁸M. San Miguel, Q. Feng et J. V. Moloney, “Light-Polarization Dynamics in Surface-Emitting Semiconductor Lasers”, *Physical Review A* **52**, 1728-1739 (1995).
- ¹⁹J. Paul et al., “Experimental Study of Polarization Switching of Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers as a Dynamical Bifurcation”, *Optics Letters* **31**, 748-750 (2006).
- ²⁰H. Uenohara et al., “Investigation of Dynamic Polarization Stability of 850-Nm GaAs-based Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers Grown on [311]B and [100] Substrates”, *IEEE Photonics Technology Letters* **11**, 400-402 (1999).
- ²¹P. Debernardi et al., “Single-Mode, Single-Polarization VCSELs via Elliptical Surface Etching : Experiments and Theory”, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **9**, 1394-1405 (2003).
- ²²K. Choquette et R. Leibenguth, “Control of Vertical-Cavity Laser Polarization with Anisotropic Transverse Cavity Geometries”, *IEEE Photonics Technology Letters* **6**, 40-42 (1994).
- ²³M. Arizaleta Arteaga et al., “Tailoring Light Polarization in Vertical Cavity Surface Emitting Lasers by Isotropic Optical Feedback from an Extremely Short External Cavity”, *Applied Physics Letters* **89**, 091102 (2006).
- ²⁴P. Debernardi et al., “Features of Vectorial Modes in Phase-Coupled VCSEL Arrays : Experiments and Theory”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **39**, 109-119 (2003).
- ²⁵J. Ostermann et al., “VCSELs with Enhanced Single-Mode Power and Stabilized Polarization for Oxygen Sensing”, *IEEE Photonics Technology Letters* **17**, 2256-2258 (2005).
- ²⁶W. Liao et al., “Polarization Control and Mode Optimization of 850 Nm Multi-Mode VCSELs Using Surface Grating”, *Applied Physics B* **127**, 23 (2021).
- ²⁷L. He et M. Li, “On-Chip Synthesis of Circularly Polarized Emission of Light with Integrated Photonic Circuits”, *Optics Letters* **39**, 2553-2556 (2014).
- ²⁸X. Gao et al., “Circularly Polarized Light Emission from a GaN Micro-LED Integrated with Functional Metasurfaces for 3D Display”, *Optics Letters* **46**, 2666-2669 (2021).
- ²⁹M. Wang et al., “High-Efficiency Circularly Polarized Green Light Emission from GaN-based Laser Diodes Integrated with GaN Metasurface Quarterwave Plate”, *Applied Physics Letters* **119**, 241103 (2021).
- ³⁰O. Weiss et J. Scheuer, “Emission of Cylindrical and Elliptical Vector Beams from Radial Bragg Lasers”, *Applied Physics Letters* **97**, 251108 (2010).

- ³¹S. Cao et al., “Cylindrical Vector Beams of Light from an Electrically Excited Plasmonic Lens”, *Applied Physics Letters* **105**, 111103 (2014).
- ³²Y. Gorodetski et al., “Generating Far-Field Orbital Angular Momenta from Near-Field Optical Chirality”, *Physical Review Letters* **110**, 203906 (2013).
- ³³K. S. Youngworth et T. G. Brown, “Focusing of High Numerical Aperture Cylindrical-Vector Beams”, *Optics Express* **7**, 77-87 (2000).
- ³⁴K. J. Moh et al., “Surface Plasmon Resonance Imaging of Cell-Substrate Contacts with Radially Polarized Beams”, *Optics Express* **16**, 20734-20741 (2008).
- ³⁵Q. Zhan et J. R. Leger, “Focus Shaping Using Cylindrical Vector Beams”, *Optics Express* **10**, 324-331 (2002).
- ³⁶Q. Zhan, “Radiation Forces on a Dielectric Sphere Produced by Highly Focused Cylindrical Vector Beams”, *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* **5**, 229-232 (2003).
- ³⁷Q. Zhan, “Trapping Metallic Rayleigh Particles with Radial Polarization”, *Optics Express* **12**, 3377-3382 (2004).
- ³⁸A. Joly, “Optimisation du transfert du spin électronique à la polarisation d’un laser à semi-conducteur à émission par la surface”, Thèse de doctorat (Université Rennes 1, 17 déc. 2018).
- ³⁹K. Panajotov et al., “Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Emitting Circularly Polarized Light”, *Laser Physics Letters* **10**, 105003 (2013).
- ⁴⁰D. Wen et al., “VCSELs with On-Facet Metasurfaces for Polarization State Generation and Detection”, *Advanced Optical Materials* **9**, 2001780 (2021).
- ⁴¹B. Dagens et G. Magno, “Circuits intégrés photoniques utilisant la plasmonique”, *Techniques de l’ingénieur Optique Photonique base documentaire : TIP520WEB*. [10.51257/a-v1-re402](https://doi.org/10.51257/a-v1-re402) (2019).
- ⁴²Y. Li, *Plasmonic Optics : Theory and Applications* (SPIE, 17 fév. 2017).
- ⁴³Y. Liang et al., “Plasmonic Nanolasers in On-Chip Light Sources : Prospects and Challenges”, *ACS Nano* **14**, 14375-14390 (2020).
- ⁴⁴R. F. Oulton et al., “Plasmon Lasers at Deep Subwavelength Scale”, *Nature* **461**, 629-632 (2009).
- ⁴⁵Q. Zhang et al., “A Room Temperature Low-Threshold Ultraviolet Plasmonic Nanolaser”, *Nature Communications* **5**, 1-9 (2014).
- ⁴⁶W. Wei, X. Yan et X. Zhang, “Ultrahigh Purcell Factor in Low-Threshold Nanolaser Based on Asymmetric Hybrid Plasmonic Cavity”, *Scientific Reports* **6**, 1-7 (2016).
- ⁴⁷A. A. Vyshnevyy et D. Y. Fedyanin, “Lasing Threshold of Thresholdless and Non-Thresholdless Metal-Semiconductor Nanolasers”, *Optics Express* **26**, 33473-33483 (2018).

- ⁴⁸G. Colas des Francs et al., “Plasmonic Purcell Factor and Coupling Efficiency to Surface Plasmons. Implications for Addressing and Controlling Optical Nano-sources”, *Journal of Optics* **18**, 094005 (2016).
- ⁴⁹Z. Gao et al., “Spaser Nanoparticles for Ultranarrow Bandwidth STED Super-Resolution Imaging”, *Advanced Materials* **32**, 1907233 (2020).
- ⁵⁰R.-M. Ma et al., “Explosives Detection in a Lasing Plasmon Nanocavity”, *Nature Nanotechnology* **9**, 600-604 (2014).
- ⁵¹E. I. Galanzha et al., “Spaser as a Biological Probe”, *Nature Communications* **8**, 15528 (2017).
- ⁵²Z.-Y. Li et Y. Xia, “Metal Nanoparticles with Gain toward Single-Molecule Detection by Surface-Enhanced Raman Scattering”, *Nano Letters* **10**, 243-249 (2010).
- ⁵³K. F. MacDonald et al., “Ultrafast Active Plasmonics”, *Nature Photonics* **3**, 55-58 (2009).
- ⁵⁴T. P. H. Sidiropoulos et al., “Ultrafast Plasmonic Nanowire Lasers near the Surface Plasmon Frequency”, *Nature Physics* **10**, 870-876 (2014).
- ⁵⁵K. Ding et al., “Room-Temperature Continuous Wave Lasing in Deep-Subwavelength Metallic Cavities under Electrical Injection”, *Phys. Rev. B* **85**, 041301(R) (2012).
- ⁵⁶M. T. Hill et al., “Lasing in Metallic-Coated Nanocavities”, *Nature Photonics* **1**, 589-594 (2007).
- ⁵⁷M. P. Nezhad et al., “Room-Temperature Subwavelength Metallo-Dielectric Lasers”, *Nature Photonics* **4**, 395-399 (2010).
- ⁵⁸K. Ding et C. Z. Ning, “Metallic Subwavelength-Cavity Semiconductor Nanolasers”, *Light: Science & Applications* **1**, e20-e20 (2012).
- ⁵⁹M. Khajavikhan et al., “Thresholdless Nanoscale Coaxial Lasers”, *Nature* **482**, 204-207 (2012).
- ⁶⁰M. Kaliteevski et al., “Tamm Plasmon-Polaritons : Possible Electromagnetic States at the Interface of a Metal and a Dielectric Bragg Mirror”, *Physical Review B* **76**, 165415 (2007).
- ⁶¹C. Symonds et al., “Confined Tamm Plasmon Lasers”, *Nano Letters* **13**, 3179-3184 (2013).
- ⁶²M. Kaliteevski et A. Lazarenko, “Reduced Absorption of Light by Metallic Intra-Cavity Contacts : Tamm Plasmon Based Laser Mode Engineering”, *Technical Physics Letters* **39**, 698-701 (2013).
- ⁶³R. Brückner et al., “Lasing of Tamm States in Highly Efficient Organic Devices Based on Small-Molecule Organic Semiconductors”, *Faraday Discussions* **174**, 183-201 (2014).
- ⁶⁴K. M. Morozov et al., “Efficient UV Luminescence from Organic-Based Tamm Plasmon Structures Emitting in the Strong-Coupling Regime”, *The Journal of Physical Chemistry C* **124**, 21656-21663 (2020).

- ⁶⁵C. Symonds et al., “Emission of Tamm Plasmon/Exciton Polaritons”, *Applied Physics Letters* **95**, 151114 (2009).
- ⁶⁶A. R. Gubaydullin et al., “Enhancement of Spontaneous Emission in Tamm Plasmon Structures”, *Scientific Reports* **7**, 9014 (2017).
- ⁶⁷C. Symonds et al., “Lasing in a Hybrid GaAs/Silver Tamm Structure”, *Applied Physics Letters* **100**, 121122 (2012).
- ⁶⁸M. Grabherr et al., “Speed It up to 10 Gb/s and Flip Chip It : VCSELs Today”, *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering* **4649**, 10.1117/12.469225 (2002).
- ⁶⁹Y. Sun et al., “980-Nm Bottom-Emitting VCSEL with an Output Power of 1.95W”, in *Semiconductor and Organic Optoelectronic Materials and Devices*, t. 5624 (2005), p. 585-590.
- ⁷⁰G. Lheureux et al., “Polarization-Controlled Confined Tamm Plasmon Lasers”, *ACS Photonics* **2**, 842-848 (2015).
- ⁷¹W. Chen et al., “Plasmonic Lens Made of Multiple Concentric Metallic Rings under Radially Polarized Illumination”, *Nano Letters* **9**, 4320-4325 (2009).
- ⁷²O. Gazzano et al., “Single Photon Source Using Confined Tamm Plasmon Modes”, *Applied Physics Letters* **100**, 232111 (2012).
- ⁷³T. Braun et al., “Enhanced Single Photon Emission from Positioned InP/GaInP Quantum Dots Coupled to a Confined Tamm-plasmon Mode”, *Applied Physics Letters* **106**, 041113 (2015).
- ⁷⁴M. Parker et al., “Tamm Plasmons for Efficient Interaction of Telecom Wavelength Photons and Quantum Dots”, *IET Optoelectronics* **12**, 11-14 (2018).
- ⁷⁵M. Parker et al., “Telecommunication Wavelength Confined Tamm Plasmon Structures Containing InAs/GaAs Quantum Dot Emitters at Room Temperature”, *Physical Review B* **100**, 165306 (2019).
- ⁷⁶F. Feng et al., “Active Control of Radiation Beaming from Tamm Nanostructures by Optical Microscopy”, *New Journal of Physics* **20**, 033020 (2018).
- ⁷⁷H. Liu et al., “Controllable Coupling of Localized and Propagating Surface Plasmons to Tamm Plasmons”, *Plasmonics* **7**, 749-754 (2012).
- ⁷⁸B. I. Afinogenov et al., “Observation of Hybrid State of Tamm and Surface Plasmon-Polaritons in One-Dimensional Photonic Crystals”, *Applied Physics Letters* **103**, 061112 (2013).
- ⁷⁹M. Lopez-Garcia et al., “Efficient Out-Coupling and Beaming of Tamm Optical States via Surface Plasmon Polariton Excitation”, *Applied Physics Letters* **104**, 231116 (2014).
- ⁸⁰S. Azzini et al., “Generation and Spatial Control of Hybrid Tamm Plasmon / Surface Plasmon Modes”, *ACS Photonics* **3**, 1776-1781 (2016).

- ⁸¹Z.-Y. Yang et al., “Narrowband Wavelength Selective Thermal Emitters by Confined Tamm Plasmon Polaritons”, *ACS Photonics* **4**, 2212-2219 (2017).
- ⁸²H.-H. Hsiao et al., “Triple Narrowband Mid-Infrared Thermal Emitter Based on a Au Grating-Assisted Nanoscale Germanium/Titanium Dioxide Distributed Bragg Reflector : Implications for Molecular Sensing”, *ACS Applied Nano Materials* **4**, 9344-9352 (2021).
- ⁸³M. He et al., “Deterministic Inverse Design of Tamm Plasmon Thermal Emitters with Multi-Resonant Control”, *Nature Materials*, 1-7 (2021).
- ⁸⁴E. Harbord et al., “Confined Tamm Optical States Coupled to Quantum Dots in a Photoconductive Detector”, *Applied Physics Letters* **115**, 171101 (2019).
- ⁸⁵S. Messelot et al., “Tamm Cavity in the Terahertz Spectral Range”, *ACS Photonics* **7**, 2906-2914 (2020).
- ⁸⁶X.-L. Zhang et al., “Optical Tamm States Enhanced Broad-Band Absorption of Organic Solar Cells”, *Applied Physics Letters* **101**, 243901 (2012).
- ⁸⁷R. G. Bikbaev et al., “Photosensitivity and Reflectivity of the Active Layer in a Tamm-plasmon-polariton-based Organic Solar Cell”, *Applied Optics* **60**, 3338-3343 (2021).
- ⁸⁸A. Paulauskas et al., “Hybrid Tamm-surface Plasmon Polaritons Mode for Detection of Mercury Adsorption on 1D Photonic Crystal/Gold Nanostructures by Total Internal Reflection Ellipsometry”, *Optics Express* **26**, 30400-30408 (2018).
- ⁸⁹I. Plikusienė et al., “Application of Tamm Plasmon Polaritons and Cavity Modes for Biosensing in the Combined Spectroscopic Ellipsometry and Quartz Crystal Microbalance Method”, *Biosensors* **11**, 501 (2021).
- ⁹⁰A. M. Ahmed et A. Mehaney, “Novel Design of Wide Temperature Ranges Sensor Based on Tamm State in a Pyroelectric Photonic Crystal with High Sensitivity”, *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **125**, 114387 (2021).
- ⁹¹W. Zhang et al., “Novel Sensing Concept Based on Optical Tamm Plasmon”, *Optics express* **22**, 14524-14529 (2014).
- ⁹²R. Petit, “Dioptre Plan et Milieux Stratifiés”, in *Ondes Électromagnétiques En Radioélectricité et En Optique*, Collection Enseignement Des Sciences (Masson, Paris, 1989), p. 130-161.
- ⁹³V. Savona, “Linear Optical Properties of Semiconductor Microcavities with Embedded Quantum Wells”, in *Confined Photon Systems*, sous la dir. de H. Benisty et al., Lecture Notes in Physics (1999), p. 173-242.
- ⁹⁴S. Gehrsitz et al., “The Refractive Index of Al_xGa_{1-x}As below the Band Gap : Accurate Determination and Empirical Modeling”, *Journal of Applied Physics* **87**, 7825-7837 (2000).
- ⁹⁵P. B. Johnson et R. W. Christy, “Optical Constants of the Noble Metals”, *Physical Review B* **6**, 4370-4379 (1972).

- ⁹⁶S. Aberra Guebrou, “Influence Des Plasmons de Surface Propagatifs Sur La Co-hérence de Systèmes Optiques”, Thèse de doctorat (Université Claude Bernard - Lyon I, 13 nov. 2012).
- ⁹⁷T. Gharbi et al., “Fitting Optical Properties of Metals by Drude-Lorentz and Partial-Fraction Models in the [0.5;6] eV Range”, *Optical Materials Express* **10**, 1129 (2020).
- ⁹⁸A. S. Baburin et al., “Epitaxial Silver Films Morphology and Optical Properties Evolution over Two Years”, *Coatings* **10**, 911 (2020).
- ⁹⁹K. Ding et C. Z. Ning, “Fabrication Challenges of Electrical Injection Metallic Cavity Semiconductor Nanolasers”, *Semiconductor Science and Technology* **28**, 124002 (2013).
- ¹⁰⁰G. Lheureux, “Étude de l’effet laser dans les structures à plasmon Tamm”, Thèse de doctorat (Université Claude Bernard - Lyon I, 11 déc. 2015).
- ¹⁰¹B. Auguié, A. Bruchhausen et A. Fainstein, “Critical Coupling to Tamm Plasmons”, *Journal of Optics* **17**, 035003 (2015).
- ¹⁰²O. Gazzano et al., “Evidence for Confined Tamm Plasmon Modes under Metallic Microdisks and Application to the Control of Spontaneous Optical Emission”, *Physical Review Letters* **107**, 247402 (2011).
- ¹⁰³F. Feng, “Coupling between Optical Tamm States and Fluorescent Nanocrystals ; Determination of the Dipole Nature of Single Colloidal Nanoplatelets”, Thèse de doctorat (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 19 sept. 2016).
- ¹⁰⁴B. E. Saleh et M. C. Teich, “Leds and Laser Diodes”, in *Fundamentals of Photonics*, t. 2, Wiley (John Wiley & Sons, Ltd, 1991), p. 1552-1719.
- ¹⁰⁵G. P. Agrawal et N. K. Dutta, “Quantum-Well Semiconductor Lasers”, in *Semiconductor Lasers*, sous la dir. de G. P. Agrawal et N. K. Dutta (Springer US, Boston, MA, 1993), p. 426-471.
- ¹⁰⁶D. A. B. Miller, “Optical Physics of Quantum Wells”, in *Quantum Dynamics of Simple Systems*, G. L. Oppo, S. M. Barnett, E. Riis, and M. Wilkinson (Institute of Physics, London, 1996), p. 239-266.
- ¹⁰⁷G. T. Dang, H. Kanbe et M. Taniwaki, “Photoluminescence of an Al_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs Multiple Quantum Well in the Temperature Range from 5 to 400 K”, *Journal of Applied Physics* **106**, 093523 (2009).
- ¹⁰⁸G. Björk, A. Karlsson et Y. Yamamoto, “Definition of a Laser Threshold”, *Physical Review A* **50**, 1675-1680 (1994).
- ¹⁰⁹E. M. Purcell, “Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies”, in *Confined Electrons and Photons: New Physics and Applications*, sous la dir. d’E. Burstein et C. Weisbuch, NATO ASI Series (Springer US, Boston, MA, 1995), p. 839-839.
- ¹¹⁰J.-H. Song et al., “Fast and Bright Spontaneous Emission of Er³⁺ Ions in Metallic Nanocavity”, *Nature Communications* **6**, 1-6 (2015).

- ¹¹¹N. Tomm et al., “A Bright and Fast Source of Coherent Single Photons”, *Nature Nanotechnology* **16**, 399-403 (2021).
- ¹¹²M. Nomura et al., “Ultra-Low Threshold Photonic Crystal Nanocavity Laser”, *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **40**, 1800-1803 (2008).
- ¹¹³Z. Yang et al., “High-Q Photonic Crystal Cavities for Nanolasers on Patterned Silicon-on-Insulator Substrates”, *Optics Communications* **515**, 128218 (2022).
- ¹¹⁴L. Dao et al., “Measurement of Optical Absorption in Semiconductor Layer Structures”, in *COMMAD 2000 Proceedings. Conference on Optoelectronic and Microelectronic Materials and Devices* (déc. 2000), p. 348-350.
- ¹¹⁵S. Yasar et al., “The Theoretical Investigation of InGaAs/GaAs Quantum Well Lasers Systems”, *International Journal of Scientific and Technological Research* **1**, 198-202 (2015).
- ¹¹⁶L.-W. Tu et al., “Vertical-cavity Surface-emitting Lasers with Semitransparent Metallic Mirrors and High Quantum Efficiencies”, *Applied Physics Letters* **57**, 2045 (1998).
- ¹¹⁷M. T. Hill et al., “Lasing in Metal-Insulator-Metal Sub-Wavelength Plasmonic Waveguides”, *Optics Express* **17**, 11107-11112 (2009).

Chapitre 2

Structures Tamm à faibles pertes et effet laser à température ambiante

2.1 Problématique

Il a été montré dans le chapitre précédent que les structures à mode Tamm optique se révèlent très intéressantes pour la réalisation de sources laser. En effet, la possibilité de confiner latéralement le mode Tamm par la seule structuration de la couche métallique permet notamment de diminuer le seuil d'émission laser par effet Purcell,¹ comme dans la plupart des lasers plasmoniques ou des lasers à cavité métallique.²⁻⁵ Mais l'intérêt des sources Tamm réside surtout dans la possibilité de fabriquer des sources de lumières originales, telles que des sources polarisées ou des sources de plasmons de surface, et ceci grâce au contrôle du mode permis par la structuration de la couche métallique.^{6,7}

Jusqu'à présent, ces démonstrations de l'utilisation des modes Tamm pour créer des lasers confinés, polarisés ou des sources à plasmons de surface ont été effectuées à basse température, à 77 K. Or la possibilité de fonctionner à température ambiante est une condition nécessaire à un réel développement applicatif des lasers ou de sources de lumière à semi-conducteur. Sortir des conditions cryogéniques représente souvent une difficulté dans le cas des sources laser utilisant des métaux. En effet, les métaux introduisent d'importantes pertes optiques par absorption, d'où des facteurs de qualité relativement modestes, souvent compris entre ~ 10 et quelques centaines, pour le mode optique considéré.^{3,4,8-11} Or, le gain que le milieu émetteur peut fournir s'élargit et diminue avec la température, à cause de l'augmentation des recombinaisons non radiatives.¹ Il est donc plus difficile d'obtenir la condition d'effet laser "gain = pertes", notamment pour les structures hybrides métal-semi-conducteur qui présentent généralement de fortes pertes ohmiques. Dans le cas des structures Tamm inorganiques présentées pour des applications laser,^{1,6} les pertes optique du mode étaient trop élevées et ne permettaient effectivement pas l'effet laser à la température ambiante. Pour dépasser cette difficulté, il faut améliorer la structure optique et diminuer les pertes, ce qui se traduira par l'augmentation du

1. Ce point sera mis en évidence sur notre système dans la section 2.3.2.

facteur de qualité Q .

Dans ce chapitre sera décrite une modification de la structure Tamm permettant de diminuer les pertes ohmiques dans le métal. Après une description du phénomène à l'aide de simulations, nous détaillerons la conception et la fabrication d'un échantillon comportant cette modification. La caractérisation expérimentale du mode optique et des puits quantiques (PQ) de cet échantillon sera ensuite présentée, avant de montrer que cette amélioration de la structure permet d'obtenir un effet laser à la température ambiante.

2.2 Structure super-Tamm

2.2.1 Ajout d'une couche de bas indice entre le métal et le DBR

Les pertes des modes Tamm sont principalement dues aux pertes radiatives et aux pertes ohmiques dans le métal, pourvu que l'énergie associée à la résonance soit inférieure à l'énergie de gap des matériaux constituant le DBR. Dans les précédents travaux sur l'émission laser dans des structures à plasmon Tamm, celles-ci présentaient des facteurs de qualité compris entre 400 et 800. Pour diminuer les pertes, il faut donc agir sur la partie métallique de la structure. Une possibilité consiste à introduire une couche diélectrique de bas indice entre la surface du DBR et la couche métallique. Cette couche diélectrique permet un confinement par l'indice dans la partie semi-conductrice de la structure, et donc une limitation de la présence du mode Tamm dans le métal. Cette structure modifiée sera désignée "super-Tamm" par la suite, en raison de la forte augmentation du facteur de qualité qu'elle induit.

Pour illustrer le phénomène, nous calculons, avec les matrices de transfert, les propriétés d'une structure super-Tamm (ST) et d'une structure standard. Cette dernière consiste en un DBR constitué de 50 paires de couches quart d'onde d'AlAs et $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}$. La bande interdite du DBR est centrée sur $\lambda_B = 800$ nm. 50 nm d'argent sont déposés sur la dernière couche du DBR (de l'AlGaAs, de haut indice). La structure ST se distingue par l'ajout d'une fine couche de silice d'épaisseur $d_{\text{SiO}_2} = 20$ nm entre la dernière couche d'AlGaAs et l'argent.

En figure 2.1 se trouvent les spectres de réflectivité, les profils d'indice optique ainsi que les simulations du module carré du champ électrique dans les deux structures Tamm standard et ST, ainsi que dans une structure comportant uniquement un DBR sans argent ni silice. Les spectres de réflectivité (a) (b) et (c) montrent que l'ajout de la couche de silice affine le creux de réflectivité associé à la résonance Tamm, et le décale vers les grandes longueurs d'onde, plus particulièrement vers le mode de bord de bande interdite du DBR. Ce mode sera appelé "mode de Bragg" par la suite. Le facteur de qualité du mode Tamm passe ainsi de 1260 pour la structure standard à 2320 avec la couche diélectrique. Mais le pic de réflectivité du mode ST est beaucoup moins profond ($R_{\min} = 0.33$) que celui du mode Tamm ($R_{\min} = 0.91$). Cela traduit un moins bon couplage du mode avec l'espace libre, et dans le cas d'une structure active, une moins bonne extraction de la lumière émise à travers la couche

métallique.

Par ailleurs, la simulation du champ électrique à la longueur d'onde de résonance montre que la réduction des pertes du mode ST s'effectue au détriment du confinement vertical du mode, qui s'étend alors beaucoup plus à l'intérieur du DBR (e) que dans la structure Tamm standard (d). Le mode ST obtenu ne présente plus la décroissance exponentielle caractéristique des modes Tamm optiques, et s'apparente plus à un mode de bord de bande interdite du DBR, visible sur la simulation (f). Le champ électrique du mode ST aura donc un recouvrement plus faible avec des puits quantiques placés proche de la surface du DBR, et donc une moins bonne interaction avec eux.

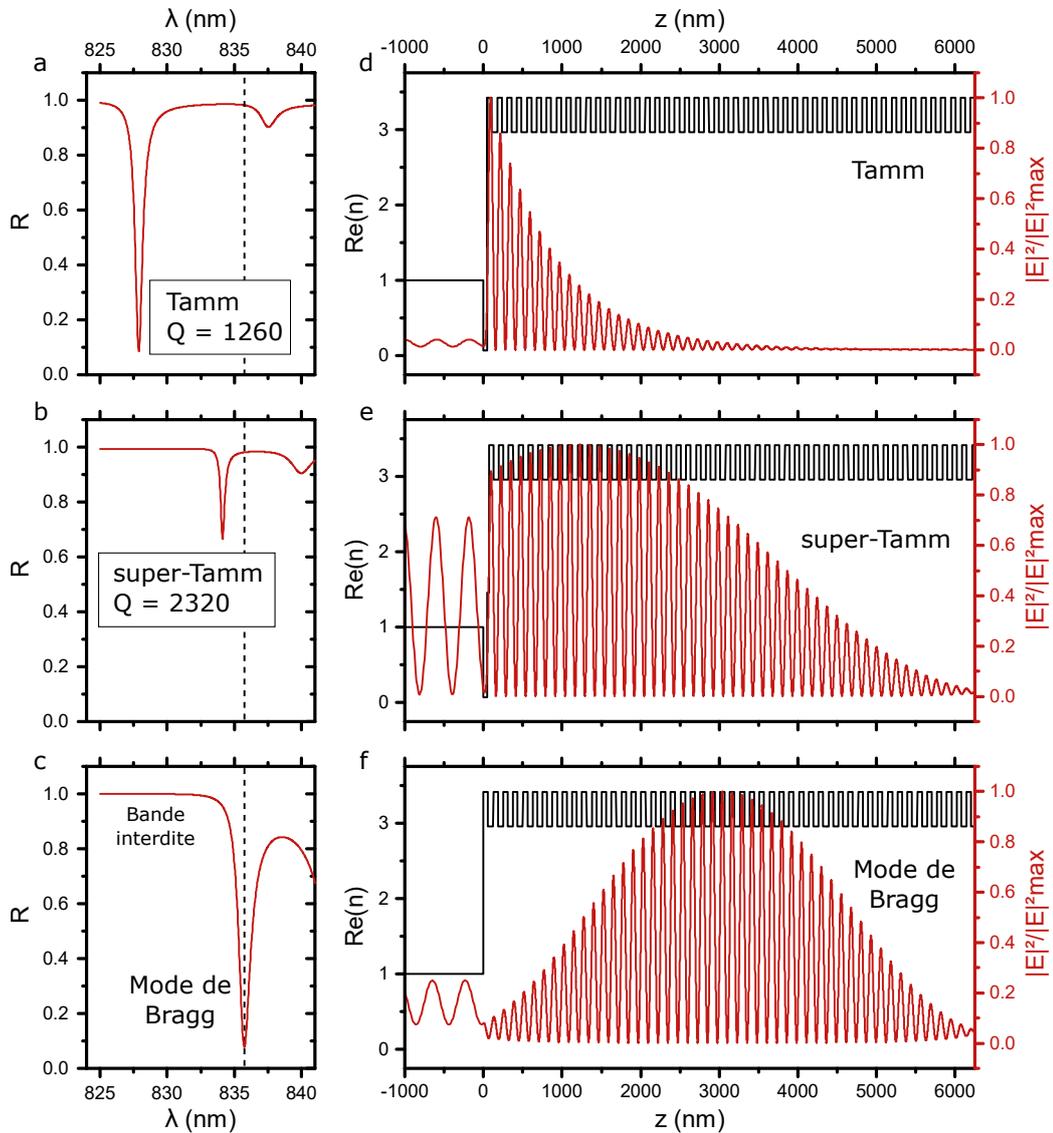


FIGURE 2.1 – Simulation de la réflectivité de la structure Tamm standard (a), super-Tamm (b) et du DBR seul (c). Profil d'indice et module carré du champ électrique calculé à la longueur d'onde du pic de résonance dans les trois structures (d)(e)(f).

Ce type de structure super-Tamm a d'ores et déjà été décrite dans une publication antérieure à la préparation de ce doctorat.¹² Avec une structure légèrement différente, comportant un DBR de 65 paires d'AlGaAs/GaAs centré à 880 nm, des facteurs de qualité allant jusqu'à 5000 ont été mesurés pour le mode ST. Par ailleurs, la possibilité de confiner latéralement le mode ST en structurant la couche de bas indice a été démontrée. Le confinement latéral du mode ST a été observé pour des diamètres de confinement allant jusqu'à 12 μm .

2.2.2 Structure super-Tamm accordée

L'insertion d'une couche diélectrique de bas indice a donc pour effet de réduire les pertes du mode Tamm. Mais cela s'effectue au détriment du confinement vertical du mode, qui s'apparente alors plus à un mode de Bragg de bord de bande interdite. Or, l'extension spatiale du mode optique est, de même que le facteur de qualité, un facteur déterminant dans la conception d'une source laser, car elle détermine l'interaction entre le mode optique et le milieu à gain.¹³ Dans cette sous-section, nous allons décrire une manière de réduire les pertes du mode Tamm avec l'architecture super-Tamm, tout en conservant le confinement vertical du mode à l'interface entre le DBR et la couche métallique.

La position spectrale d'un mode Tamm planaire ainsi que son profil spatial sont principalement déterminés par une condition de phase entre les coefficients de réflexion sur le métal et sur le DBR.^{14,15} Dans la structure ST précédemment simulée (en section 2.2.1), l'ajout d'une couche supplémentaire entre le DBR et l'argent modifiait cette condition de phase, d'où un déplacement du champ électrique du mode ST à l'intérieur du DBR, ainsi qu'un décalage de la résonance vers les grandes longueurs d'onde. Un moyen simple de retrouver l'extension spatiale d'un mode Tamm standard consiste à affiner la dernière couche du DBR, de manière à ce que l'association de cette dernière couche et de la couche de bas indice soit équivalente à une couche quart d'onde. Cela correspond à satisfaire la condition suivante :

$$n_1 d'_1 + n_{\text{SiO}_2} d_{\text{SiO}_2} = \lambda_B/4 \quad (2.1)$$

où n_1 , d'_1 , n_{SiO_2} et d_{SiO_2} désignent respectivement les indices et épaisseurs de la dernière couche du DBR en AlGaAs et de la couche de silice, et λ_B le centre de la bande interdite du DBR.

La figure 2.2 (a) montre le spectre de réflectivité de la structure ST obtenu en satisfaisant la condition précédente, et en choisissant une répartition égale entre les deux couches telle que

$$n_1 d'_1 = n_{\text{SiO}_2} d_{\text{SiO}_2} = \lambda_B/8 \quad (2.2)$$

La couche de silice a donc une épaisseur $d_{\text{SiO}_2} = 68 \text{ nm}$, et la dernière couche du DBR une épaisseur $d'_1 = 29.1 \text{ nm}$, deux fois plus fine que l'épaisseur des autres couches d'AlGaAs du DBR ($d_1 = \lambda_B/4n_1$). Le spectre de réflectivité montre que la résonance ST est située à la même longueur d'onde que celle de la structure standard en figure 2.1 (a), à 0.5 nm près. C'est le signe que l'ajustement choisi pour les épaisseurs terminant le DBR conserve la condition de phase qui détermine la

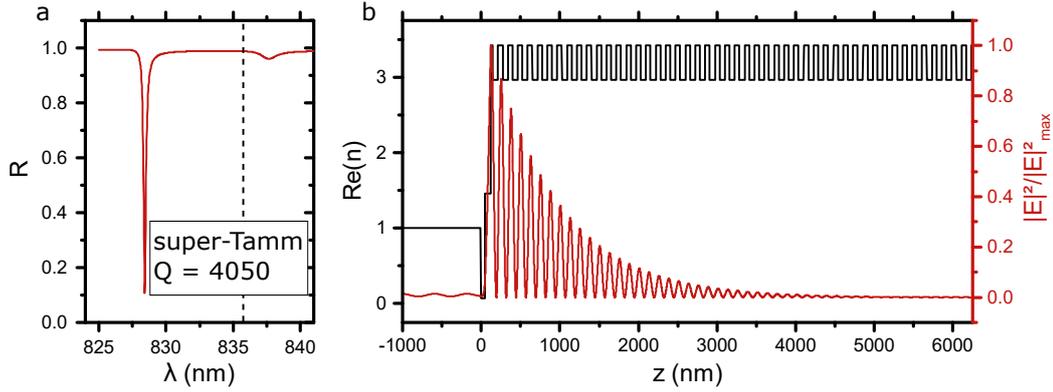


FIGURE 2.2 – (a) Simulation de la réflectivité de la structure ST accordée. Le pointillé indique la position du mode de Bragg (b) Simulation du module carré du champ électrique à la résonance ST (b).

longueur d'onde du Tamm. Pour cette raison, la structure super-Tamm respectant la condition 2.1 sera désignée *structure super-Tamm accordée*. On peut de plus noter que les profondeurs des mode ST accordé (0.89) et Tamm standard (0.91) sont très proches.

En outre, on peut voir sur la figure 2.2 (b) que le profil du champ électrique associé à ce mode ST accordé est très similaire à celui du mode Tamm de la structure standard (figure 2.1 (d)), en étant bien confiné sous la couche d'argent. Pour comparer l'extension du mode dans la partie diélectrique entre les deux structures, on peut définir pour chacun des modes Tamm et ST une longueur L telle que :

$$L = \frac{1}{|E_{max}|^2} \int_{d_{Ag}}^{\infty} |E(z)|^2 dz \quad (2.3)$$

où z est la direction perpendiculaire aux couches. L'abscisse $z = 0$ correspond à l'interface entre l'air et le métal, et $z = d_{Ag}$ à l'interface entre l'argent et le DBR. En adoptant cette définition, les extensions dans la partie diélectrique du mode Tamm standard et du mode ST accordé sont très similaires, avec $L_{ST}/L_{Tamm} \simeq 1.1$. Les deux structures présentent donc des propriétés très proches en termes de position spectrale et de distribution spatiale.

Néanmoins, la présence d'une couche de SiO_2 de bas indice entre le métal et le DBR dans la structure ST modifie la distribution du champ électrique proche du métal. Pour quantifier cette modification, on peut définir le rapport de l'intégrale de l'intensité normalisée du champ ST dans le métal sur la même intégrale calculée pour le mode Tamm standard :

$$r_{ST/Tamm} = \frac{\int_0^{d_{Ag}} |E_{ST}(z)|^2 dz / |E_{ST,max}|^2}{\int_0^{d_{Ag}} |E_{Tamm}(z)|^2 dz / |E_{Tamm,max}|^2} \quad (2.4)$$

Ce rapport est égal à $r_{ST/Tamm} \simeq 0.3$, ce qui prouve que l'architecture ST réduit le champ électrique dans l'argent. La conséquence est une importante diminution des

perdes non radiatives dans le métal, et donc une augmentation du facteur de qualité. À partir du pic de réflectivité de la figure 2.2 (a), on trouve que le facteur de qualité du mode ST accordé est de 4050, contre 1260 pour le mode tamm conventionnel (figure 2.1 (a)).

2.2.3 Choix de l'épaisseur relative de la dernière couche d'AlGaAs et de la couche diélectrique

La structure ST précédemment décrite respectait la condition 2.2, plus stricte que la condition d'accord 2.1, c'est-à-dire que les épaisseurs optiques $n_i d_i$ de la couche de silice et de la dernière couche d'AlGaAs sont égales. Mais le rapport d'épaisseur des deux couches pourrait être optimisé en ajustant un paramètre ϵ tel que

$$d'_1 = \epsilon \frac{\lambda_B}{4n_1} \quad d_{SiO_2} = (1 - \epsilon) \frac{\lambda_B}{4n_{SiO_2}} \quad (2.5)$$

La figure 2.3 présente l'évolution du facteur de qualité Q avec le paramètre ϵ . Le cas $\epsilon = 1$ correspond à une couche complète d'AlGaAs sans SiO_2 , soit à la structure Tamm conventionnelle, et le cas $\epsilon = 0$ au remplacement intégral de la couche d'AlGaAs par la couche de SiO_2 . Le facteur de qualité Q présente un maximum pour $\epsilon = 0.5$, ce qui correspond à une distribution équitable entre les deux couches, et aussi à la structure décrite en détail dans la section 2.2.2 précédente.

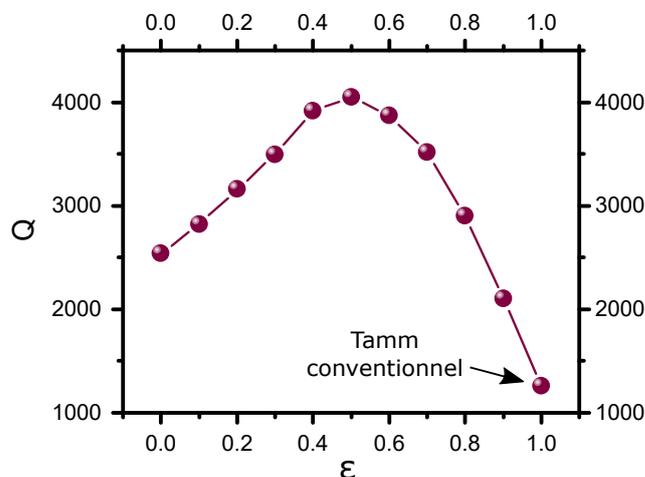


FIGURE 2.3 – Simulation du facteur de qualité Q avec la part ϵ des couches de silice et de haut indice.

Par conséquent, nous ferons le choix de remplacer la dernière couche quart d'onde du DBR initial, en AlGaAs de haut indice, par un doublet d'AlGaAs et de SiO_2 de bas indice, en garantissant une épaisseur totale équivalente à une couche quart d'onde. De cette manière, la position du Tamm en longueur d'onde est préservée, de même que le confinement spatial proche de la surface du métal. Les pertes du mode super-Tamm accordé sont largement réduites. De plus, le choix d'une répartition

équitable entre la couche d'AlGaAs et la couche de bas indice optimise le facteur de qualité, multiplié par $4050/1260 \simeq 3.2$ par rapport à la structure Tamm classique.

2.2.4 Influence de l'épaisseur d'argent

Tous les résultats précédents ont été obtenus en simulant une épaisseur d'argent $d_{Ag} = 50$ nm. Cependant, il est possible de diminuer encore les pertes du mode en épaississant cette couche. Dans ce cas, l'augmentation du facteur de qualité s'effectue par la réduction des pertes radiatives, c'est-à-dire de la quantité de lumière capable de s'échapper de la structure à travers l'argent.

La figure 2.4 présente les spectres de réflectivité des structures Tamm et ST pour l'épaisseur d'argent précédente de 50 nm et pour une couche d'argent plus épaisse à $d_{Ag} = 93$ nm. Cette valeur précise est choisie par rapport aux épaisseurs d'argent qui seront déposées sur l'échantillon réalisé. L'épaississement de 50 à 93 nm fait passer le facteur de qualité de 1260 à 2070 pour la structure Tamm, et de 4050 à 6510 pour la structure ST accordée. L'épaississement du métal permet donc une augmentation supplémentaire du facteur de qualité, qui doit diminuer le seuil d'émission laser.⁵ On peut noter que l'épaississement de l'argent ne décale pas le pic de résonance. Par contre, la profondeur du pic de réflectivité est drastiquement réduite, et est désormais de l'ordre de 5% pour les deux structures avec 93 nm d'argent. Cela signifie qu'il sera difficile voire impossible d'observer le mode Tamm ou ST accordé en réflectométrie avec 93 nm d'argent, et que l'extraction de lumière sera faible comparativement au cas d'une épaisseur plus faible.

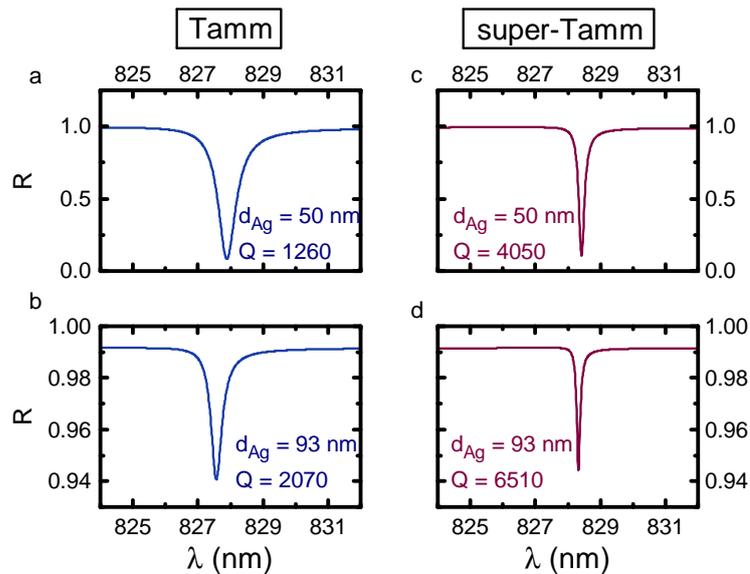


FIGURE 2.4 – Réflectivité des structures Tamm et ST pour $d_{Ag} = 50$ nm et 93 nm.

2.3 Fabrication et caractérisation de l'échantillon

Pour obtenir un effet laser à température ambiante, une structure ST accordée a été réalisée. Nous décrirons dans cette section la fabrication et le détail de la structure, ainsi que la caractérisation optique de la luminescence et des modes optiques.

2.3.1 Fabrication du DBR

La croissance du DBR est effectuée en épitaxie par jet moléculaire (MBE) sur un substrat de GaAs.¹⁶ Cette technique permet la croissance cristalline de matériaux semi-conducteurs à l'aide de flux atomiques et moléculaires dirigés vers la surface du substrat. La croissance s'effectue sous ultra-vide, de manière à limiter les interactions entre les espèces et d'éventuels résidus gazeux. Cela permet d'obtenir des structures de très haute qualité comportant peu de défauts. Le contrôle in situ de la croissance par la technique RHEED permet de plus un contrôle élevé des épaisseurs déposées.¹⁷ L'épitaxie de notre échantillon a été réalisée par Aristide Lemaître du Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies.

Le DBR est conçu pour obtenir une bande interdite centrée sur $\lambda_B = 800$ nm. Un schéma de la structure ST complète est visible en figure 2.5 (a), et la simulation du champ électrique dans les premières couches avec PQ est présentée en figure 2.5 (b). Du substrat vers la surface, la structure du DBR comporte 45 paires de couches quart d'onde régulières d'AlAs et d' $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$, 4 paires contenant chacune 2 PQ en GaAs dans la couche d'AlGaAs, et une paire AlAs/AlGaAs dont l'épaisseur de la couche d'AlGaAs est divisée par deux, en accord avec la structure simulée précédemment.

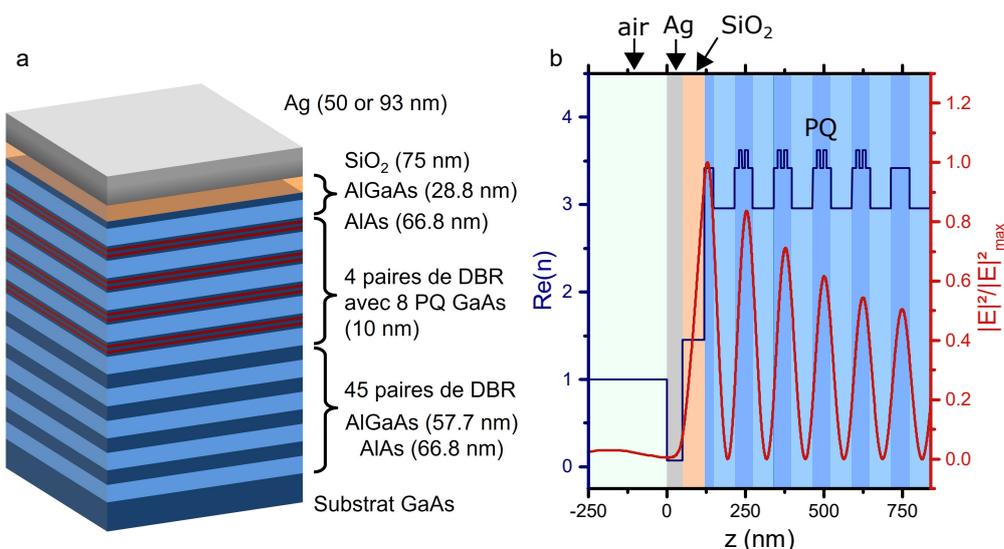


FIGURE 2.5 – (a) Schéma de la structure ST accordée réalisée. (b) Simulation du module carré du champ électrique dans les premières couches de la structure.

Les épaisseurs des couches régulières sont $d_1 = \lambda_B/4n_1 = 57.7$ nm pour l'AlGaAs et $d_2 = \lambda_B/4n_2 = 66.8$ nm pour l'AlAs, n_1 et n_2 désignant respectivement les indices des deux matériaux, estimés à la longueur d'onde centrale λ_B du DBR. La structure précise des quatre paires supérieures est la suivante, du bas du DBR vers la surface : une couche régulière d'AlAs, une couche d'AlGaAs d'épaisseur 13.5 nm, un PQ de GaAs d'épaisseur $d_{PQ} = 10$ nm, une barrière d'AlGaAs d'épaisseur $d_{barriere} = 10$ nm, un second PQ, et une dernière couche d'AlGaAs d'épaisseur 13.5 nm. Pour finir, la dernière paire est constituée d'une couche régulière d'AlAs et d'une demi-couche d'AlGaAs d'épaisseur $d'_1 = d_1/2 = 28.8$ nm.

Pour pouvoir accorder le mode ST avec le gain des PQ, l'échantillon n'est pas mis en rotation pendant l'épitaxie, ce qui induit un gradient d'épaisseur le long du substrat. Cela permet de choisir la position de la bande interdite et donc du mode Tamm avec la position sondée sur la surface du DBR. Celui-ci a été conçu, en tenant compte du gradient d'épaisseur, de manière à pouvoir accorder la structure entre 77 et 300 K. La structure des quatre paires contenant les PQ a été choisie en prenant en compte les éléments suivants. Tout d'abord, les puits doivent être placés autour de maximums du champ électrique pour bien interagir avec le mode. La décroissance du champ électrique à l'intérieur du DBR étant exponentielle avec la distance à la couche d'argent, les puits doivent être placés dans les couches de haut indice les plus proches de la surface. Dans notre cas, dans les quatre dernières couches complètes d'AlGaAs. Par ailleurs, une barrière suffisamment épaisse doit séparer deux PQ pour éviter un éventuel couplage des fonctions d'onde électroniques. Une barrière de 10 nm entre les puits est suffisante^{18,19} et permet d'insérer deux PQ dans une couche d'AlGaAs.

Après l'épitaxie, une couche de SiO₂ d'épaisseur $d_{SiO_2} = 75$ nm est déposée sur la surface du DBR pour compléter la dernière couche. Cette épaisseur est légèrement supérieure à celle prévue lors des simulations, à savoir 68 nm, à cause d'une imprécision du dépôt. Il s'agit ici d'un dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD) (voir section 3.5.3 en page 95).

2.3.2 Luminescence des puits quantiques

Il est utile de caractériser la luminescence des PQ avant de recouvrir l'échantillon d'argent. En effet, une fois l'échantillon couvert d'argent, l'excitation des puits par un laser de pompe est difficile, et leur luminescence est filtrée par le seul mode de la structure capable de se coupler avec l'espace libre, à savoir le mode Tamm. La méthode n'est donc pas idéale pour caractériser la luminescence des PQ. En revanche, en sondant le DBR sans argent, le spectre de photoluminescence mesuré correspond assez bien au spectre d'émission des PQ. En effet, ceux-ci étant situés très proche de la surface, leur émission est relativement peu filtrée par la densité d'états optiques du DBR, surtout si elle est comprise dans la bande interdite du DBR où il n'existe pas de mode optique.

La figure 2.6 (a) montre le spectre de photoluminescence (PL) des PQ en fonction de la température. La PL est obtenue en excitant les puits hors résonance, avec un

laser Ti-Saphir continu émettant à $\lambda_{laser} = 765$ nm, à faible puissance. À basse température, on observe deux pics d'émission distincts correspondant aux excitons de trous lourds ($e1-hh1$) et de trous légers ($e1-lh1$). L'écart d'environ 5 nm entre les deux pics à 77 K est cohérent avec une publication portant sur des PQ similaires.²⁰

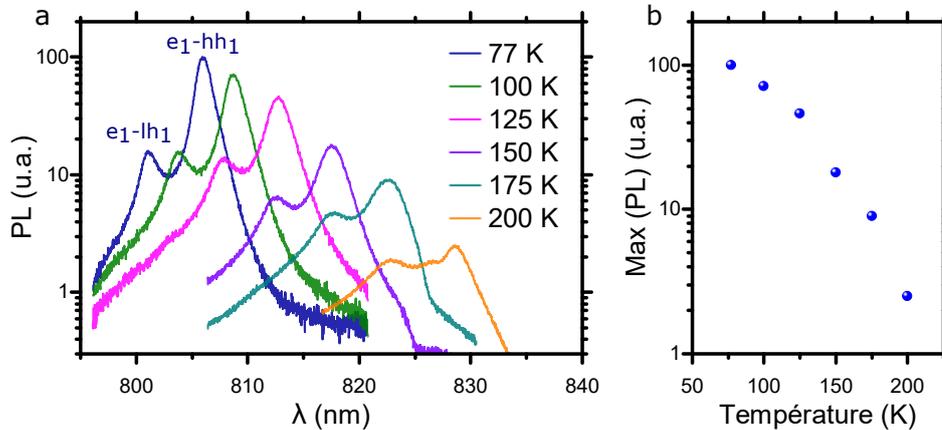


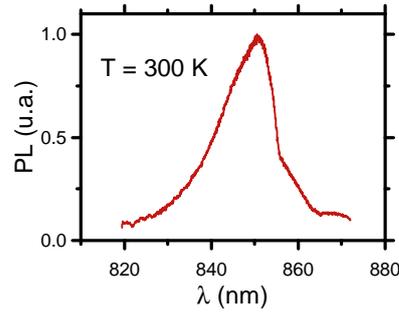
FIGURE 2.6 – (a) Photoluminescence (PL) des PQ en fonction de la température (b) Intensité maximum de l'émission en fonction de la température.

L'augmentation de la température a plusieurs effets. D'abord, l'émission est décalée vers les grandes longueurs d'onde, principalement à cause du rétrécissement de l'énergie de gap du GaAs. Ensuite l'émission s'élargit et diminue en intensité, en raison de l'augmentation des recombinaisons non radiatives qui réduisent le temps de vie des excitons et affaiblissent l'émission. L'intensité maximum du spectre de PL est tracée en fonction de la température en figure 2.6 (b). En passant de 77 à 200 K, l'intensité maximum est divisée par environ 40. Cette diminution drastique de la luminescence des puits traduit aussi une réduction du gain optique disponible. Cela explique la difficulté d'obtenir un effet laser à température ambiante dans une structure présentant des pertes importantes, comme dans les sources hybrides contenant des métaux.

En figure 2.7 se trouve un spectre de photoluminescence de la structure à la température ambiante. Le maximum de l'émission se situe à $\lambda \simeq 850$ nm, et la largeur à mi-hauteur est $\Delta\lambda \simeq 14$ nm. Il faudra donc accorder le mode ST autour de 850 nm pour éventuellement obtenir un effet laser.

2.3.3 Dépôt d'argent par évaporation

Un système de dépôt par évaporation thermique a été utilisé pour déposer l'argent sur la structure. Le dépôt par évaporation thermique consiste à chauffer une petite quantité d'argent, placée dans un creuset, à une température telle qu'elle s'évapore. Pour cela, une tension de 1 kV est appliquée entre le creuset et un fil de tungstène enroulé autour de celui-ci. Le fil est parcouru par un courant continu entre 5 et 10 mA, que l'on ajustera pour obtenir le taux de dépôt désiré. La haute tension appliquée entre le fil chauffé et le creuset arrache des électrons qui viennent

FIGURE 2.7 – Photoluminescence (PL) des PQ à $T = 300$ K

bombarder le creuset et élèvent sa température. L'argent passe d'abord par un état liquide, puis il est vaporisé au-delà d'une certaine température. L'opération a lieu sous un vide de l'ordre de 10^{-6} mBar, ce qui rend balistique la trajectoire des espèces vaporisées. Une balance à quartz proche des échantillons permet de contrôler en temps réel l'épaisseur déposée ainsi que le taux de dépôt. Un taux d'environ $1 \text{ \AA} \cdot \text{s}^{-1}$ permet d'obtenir des couches d'argent de bonne qualité.

Deux dépôts d'argent seront effectués sur notre échantillon pour disposer de deux épaisseurs de travail de 50 nm et de 93 nm. La première épaisseur de 50 nm servira préférentiellement à caractériser le mode ST en réflectométrie. L'épaisseur de 93 nm sera utilisée pour chercher l'effet laser à température ambiante, du fait du haut facteur qualité qu'elle procure, comme nous l'avons vu en section 2.2.4.

2.3.4 Caractérisation passive

Une fois l'argent déposé, on peut passer à la caractérisation du mode ST de la structure. Pour mesurer la largeur intrinsèque du mode, il faut le caractériser de manière passive, donc en réflectométrie plutôt qu'en photoluminescence. L'échantillon est placé dans notre cryostat, et refroidi à 77 K. Cela permet de décaler l'absorption des puits vers les courtes longueurs d'onde, comme le montre l'évolution de la luminescence avec la température en figure 2.6 (a). On élimine de cette manière l'absorption du plasmon Tamm dans les puits quantiques, qui introduirait sinon un élargissement du mode.

Les figures 2.8 montrent les spectres de réflectivité résolus en angle (a) et à incidence nulle (b) de l'échantillon dans une zone couverte par 50 nm d'argent. La parabole observée correspond à la dispersion des modes ST. À $\theta = 0$, le mode ST se situe ici à $\lambda_T = 825.9$ nm. Compte-tenu du spectre d'émission des puits à 77 K présenté en figure 2.6 (a), dont le pic de plus basse longueur d'onde (e1-hh1) se situe à 806 nm, on peut effectivement considérer comme nulle l'absorption de l'hétérostructure semi-conductrice à la longueur d'onde du mode Tamm, et donc que les puits n'élargissent pas la résonance Tamm.

La largeur mesurée du pic est d'environ 0.4 nm, ce qui correspond à un facteur de qualité $Q_{ST,exp} \simeq 2100$. Cette valeur expérimentale est plus faible que la valeur prévue par la simulation, qui était de $Q_{ST,simu} = 4050$ (voir la figure 2.2 en p.71).

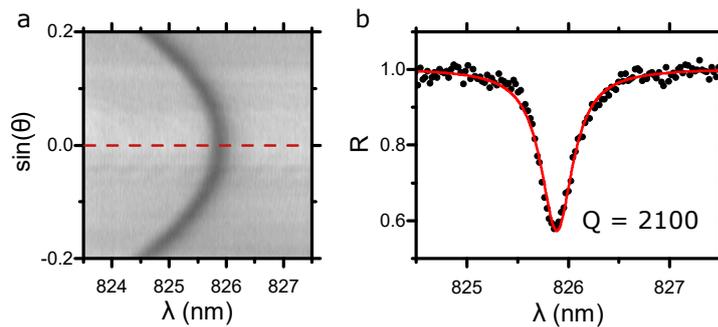


FIGURE 2.8 – (a) Réflectivité de la structure en imagerie de Fourier avec $d_{Ag} = 50$ nm (b) Profil de réflectivité à $\theta = 0$, suivant le pointillé sur (a). La courbe rouge en trait plein est un ajustement lorentzien des points expérimentaux.

Cette différence peut s'expliquer par un désaccord entre les propriétés de la couche d'argent déposée et le modèle utilisé dans les simulations, décrit en section 1.2.3 p.36, ainsi que par la résolution limitée du spectromètre. Néanmoins, le facteur de qualité mesuré est tout de même 1.7 fois plus grand que la valeur calculée pour une structure Tamm classique sans couche diélectrique entre le DBR et le métal ($Q_{Tamm, simu} = 1260$). C'est la confirmation expérimentale que l'architecture ST accordée permet de réduire significativement les pertes du mode Tamm.

2.4 Effet laser à température ambiante

Maintenant que le mode ST et la luminescence des PQ ont été caractérisés, on peut étudier la photoluminescence de la structure couverte d'argent et chercher l'obtention de l'effet laser. Pour cela, il faut parvenir à exciter suffisamment les puits quantiques pour obtenir un gain optique.

2.4.1 Méthode d'excitation et structure modale

La configuration classique de pompage optique, où un laser de pompe hors résonance est focalisé sur la surface de l'échantillon, est assez peu adaptée au cas des structures Tamm. En effet, la lumière incidente est très majoritairement réfléchiée par la couche d'argent en surface, ce qui rend l'excitation des puits quantiques très inefficace. Ici, pour obtenir un pompage plus efficace du milieu à gain, une stratégie d'excitation indirecte est employée, et est schématisée en figure 2.9 (a). Le laser de pompe est focalisé non pas directement sur la surface de l'argent, mais sur le bord d'une micro-rayure gravée dans l'argent à l'aide d'une pointe en diamant, qui dévoile localement la surface du DBR. L'idée consiste à exciter avec le laser de pompe un mode de bord de bande interdite du DBR, avec un angle d'incidence tel que ce mode se propage sous l'argent. Là, l'énergie apportée est en partie absorbée dans les PQ, et les paires électrons/trous créées peuvent se recombiner en émettant des photons dans le mode Tamm.

Afin de réaliser convenablement cette excitation indirecte, il est nécessaire de connaître la structure modale de l'échantillon dans cette zone. La figure 2.9 (b) présente les réflectivités résolues en angle du DBR, mesurées dans la rayure, et sur la couche d'argent de 50 nm, juste à côté de la rayure. À $\theta = 0$, la bande interdite du DBR est bornée par les premiers modes de Bragg inférieur et supérieur, respectivement à 854 et 782 nm. Sur le système DBR/Ag, on distingue la parabole de dispersion des modes ST, dont le mode normal à la surface est situé à $\lambda_T(\theta = 0) = 849$ nm. Ce mode est résonant avec le pic de photoluminescence des puits quantiques (voir figure 2.7 p.77) qui correspond également au pic excitonique d'absorption.²¹ Cela explique que le pic de réflectivité ST soit plus large et moins profond proche de $\sin(\theta) = 0$ qu'aux angles tels que $\sin(\theta) > 0.4$, où l'absorption des PQ est plus faible et le pic de réflectivité plus marqué. Cela signifie par ailleurs que le mode ST normal interagit bien avec les puits. On distingue également une deuxième parabole à plus grande longueur d'onde, dont le sommet est à $\lambda \simeq 857$ nm, qui correspond au mode Tamm d'ordre 2.

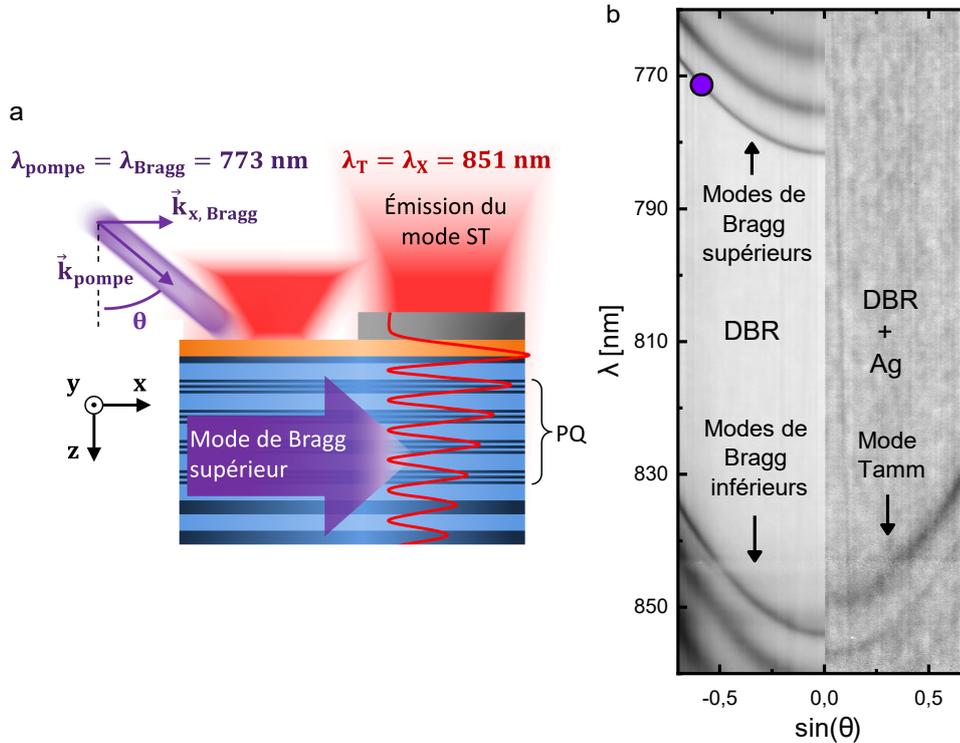


FIGURE 2.9 – (a) Schématisation de la méthode d'excitation indirecte (b) Réflectométrie à l'intérieur et à l'extérieur de la rayure.

Pour exciter efficacement un mode de Bragg avec le laser de pompe, il faut que leur longueur d'onde et leur vecteur d'onde transverse soient les mêmes :

$$\lambda_{pompe} = \lambda_{Bragg} \quad k_{x, pompe} = k_{x, Bragg} \quad (2.6)$$

x étant la direction perpendiculaire au bord de la rayure, et dans laquelle se propage le mode de Bragg. Afin de maximiser la propagation de la lumière incidente vers

l'argent, on choisit d'exciter un mode de Bragg d'angle élevé. Pour cela, il faut que le laser présente un grand angle d'incidence sur l'échantillon. Un moyen simple d'y parvenir consiste à décaler le point d'incidence du laser sur la face d'entrée de l'objectif de microscope, comme schématisé en figure 2.10. En amenant le faisceau vers le bord de l'ouverture de l'objectif, l'angle de sortie du laser est proche du maximum permis par l'ouverture numérique de l'objectif, soit $\theta_{max} = \arcsin(0.75) \simeq 49^\circ$. En pratique, pour ne pas perdre trop de lumière dans l'objectif, le faisceau est ajusté de manière à sortir à $\sin(\theta) \simeq 0.7$ ce qui correspond à un angle d'incidence moyen $\theta \simeq 45^\circ$. La relation de dispersion des modes de Bragg supérieurs, visible en figure 2.9 (b) permet de trouver à quelle longueur d'onde accorder le laser, connaissant l'angle d'incidence. À $\sin(\theta) \simeq 0.7$, le premier mode de Bragg supérieur, repéré par un disque violet dans la figure, se situe à $\lambda_{Bragg} \simeq 773$ nm, longueur d'onde à laquelle nous accorderons le laser. Celui-ci sera utilisé en mode impulsif, par blocage de mode, avec une durée d'impulsion d'environ 0.6 ps et une cadence de 80 MHz. Il est focalisé en une tâche gaussienne de diamètre 17 μm sur la surface de l'échantillon.

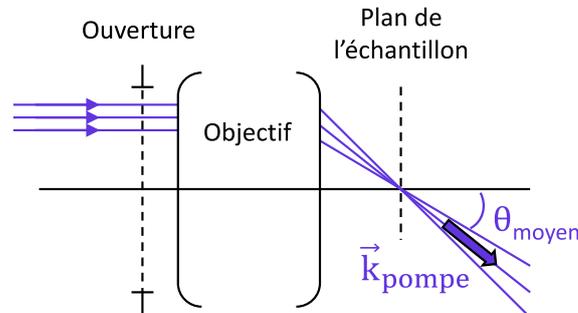


FIGURE 2.10 – Ajustement de l'angle d'incidence moyen du laser d'excitation

2.4.2 Photoluminescence et effet laser

Pour chercher l'effet laser, nous travaillons dans une zone avec une couche d'argent épaisse de 93 nm, pour profiter de l'amélioration du facteur de qualité. Cette zone est proche de l'endroit où les modes ont été identifiés par réflectométrie en figure 2.9 (b), de sorte que la dérive en longueur d'onde entre les deux zones est faible. En figure 2.11 se trouve une image directe de la photoluminescence collectée depuis le point d'excitation, au bord de la rayure, avec une forte puissance de pompe. Des filtres et polariseurs placés devant le système d'imagerie permettent d'éliminer le laser d'excitation de la lumière collectée. De la photoluminescence est émise depuis l'intérieur et l'extérieur de la rayure. Une émission forte provient de la partie gauche de l'image, qui correspond à l'intérieur de la rayure. Comme l'argent a été retiré dans cette zone, laissant apparente la surface du DBR, les puits quantiques sont bien excités et leur luminescence peut facilement s'échapper de la structure. Le diamètre de ce disque d'émission est d'environ 18 μm , ce qui correspond aussi à la taille du point d'excitation.

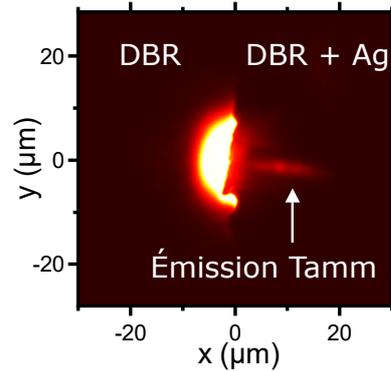


FIGURE 2.11 – Image directe de la luminescence de l'échantillon à haute puissance de pompe

Du côté droit de l'image, depuis la zone couverte d'argent, une émission est également détectée. Elle est allongée dans la direction du faisceau incident, ou perpendiculairement au bord de la rayure, et centrée sur le point d'excitation. Cette forme allongée dans la direction x suggère que cette émission provient effectivement de la propagation vers l'argent d'un mode optique excité depuis l'intérieur de la rayure. De plus, la concentration de l'émission dans la direction y sur une longueur beaucoup plus petite que la taille du point d'excitation, indique que cette émission est issue d'un phénomène non linéaire.

Cette non-linéarité peut être mise en évidence par l'étude du spectre d'émission en fonction de la puissance de pompe. La figure 2.12 (a) présente les spectres d'émission divisés par la puissance incidente, pour quatre puissances différentes. La méthode d'excitation indirecte reposant sur l'excitation d'un mode de Bragg, de sa propagation, et de l'absorption dans les puits quantiques sous l'argent, l'estimation de cette absorption est difficile à estimer. Aussi les spectres seront plus simplement associés à la puissance incidente sur l'échantillon.

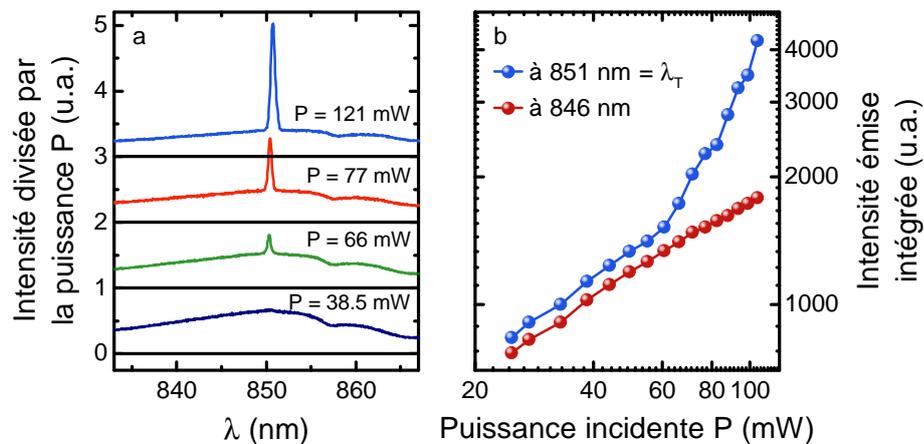


FIGURE 2.12 – (a) Spectres d'émission divisés par la puissance incidente (b) Émission intégrée autour de la raie à 851 nm et autour de 846 nm pour comparaison.

Pour la plus faible excitation à $P_{inc} = 38.5$ mW, l'émission récoltée est large et centrée sur 850 nm, sans qu'apparaisse la signature spectrale d'un mode optique. À partir de $P_{inc} = 66$ mW, un pic se distingue à $\lambda_T = 851$ nm, d'autant plus que la puissance incidente est élevée. Cette longueur d'onde est proche du bas de la parabole Tamm mesurée en réflectométrie sur 50 nm d'argent, en figure 2.9 (b). Cette non-linéarité peut être mieux mise en évidence en traçant l'intensité émise, intégrée autour du pic, en fonction de la puissance incidente. Cela correspond à la courbe bleue sur la figure 2.12 (b). L'évolution de l'émission avec la puissance passe brutalement d'un régime sous-linéaire à basse puissance à une évolution sur-linéaire à partir d'un seuil, à $P_{seuil} \simeq 65$ mW. Cela suggère l'apparition d'un effet laser. Pour comparaison, l'intensité de l'émission, intégrée sur une fenêtre équivalente décalée de 5 nm en dessous du pic à 851 nm est également tracée sur la même figure. L'évolution du signal avec la puissance ne présente pas de variation similaire, ce qui confirme que l'effet de seuil ne survient qu'autour de 851 nm.

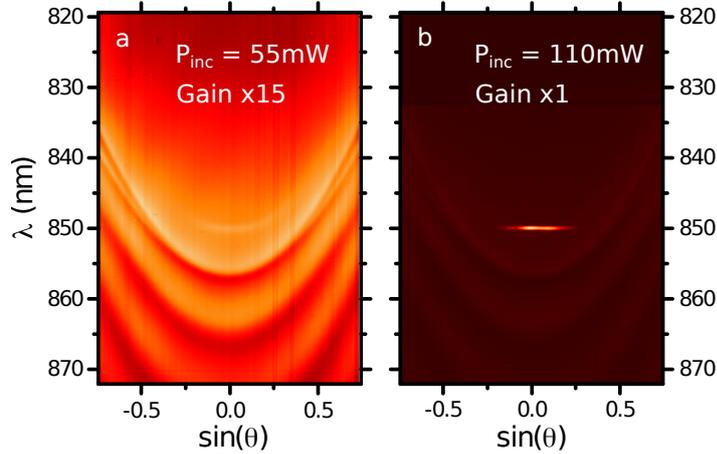


FIGURE 2.13 – Photoluminescence résolue en angle, en dessous du seuil à $P_{inc} = 55$ mW (a) et au dessus à $P_{inc} = 110$ mW (b).

Pour rappel, l'émission intégrée à 851 nm comporte a priori deux contributions : l'émission provenant du DBR, à l'intérieur de la rayure, et la lumière émise depuis l'argent. Pour confirmer que l'effet de seuil provient effectivement du mode Tamm, on peut tracer le spectre de photoluminescence résolu en angle, c'est-à-dire imagé dans le plan de Fourier. La figure 2.13 montre deux spectres d'émission, à deux puissances différentes. En dessous du seuil, à $P_{inc} = 55$ mW, la luminescence collectée est principalement émise à travers les modes de Bragg inférieurs du DBR, donc depuis le fond de la rayure, à gauche sur la figure 2.9 (c). On discerne une faible émission dans la parabole Tamm, dont le bas se situe à $\lambda_T = 851$ nm. Cette émission est faible en comparaison de l'émission dans les modes de Bragg, ce qui s'explique par la faible transmission de la couche d'argent d'épaisseur 93 nm. Au dessus du seuil, à $P_{inc} = 110$ mW, l'émission dans le mode ST est largement dominante. C'est la confirmation que le pic observé précédemment en figure 2.12 (a), dont l'intensité évolue de manière sur-linéaire après le seuil, correspond à de l'émission dans le mode

ST à $\theta = 0$. Elle est désormais monochromatique : la parabole de dispersion ST n'est plus visible, seule reste l'émission dans le mode centré sur $\theta = 0$, à $\lambda_T = 851$ nm, avec une largeur $\Delta\lambda = 0.37$ nm. Cette concentration spectrale et angulaire de l'émission, ainsi que l'évolution sur-linéaire de l'intensité émise au dessus d'un seuil, démontrent le régime laser de l'émission dans le mode ST.

2.5 Conclusion du chapitre

Nous avons présenté dans ce chapitre une méthode pour diminuer les pertes métalliques du mode Tamm. Cette méthode consiste à insérer une fine couche diélectrique de bas indice entre le DBR et le métal, pour y diminuer le champ électrique et les pertes qui y ont lieu. Un affinement de la dernière couche du DBR, de manière à ce que le doublet formé par cette dernière couche et la nouvelle couche de bas indice soit équivalent à une couche quart d'onde, permet de conserver le confinement vertical du mode obtenu, appelé super-Tamm (ST), ainsi que sa position spectrale, et un bon couplage aux modes de l'espace libre.

L'échantillon fabriqué en respectant ce principe présente un mode ST avec un facteur de qualité $Q = 2100$, soit 1.7 fois plus élevé que celui calculé pour une structure Tamm classique. Une réduction supplémentaire des pertes par l'épaississement du métal, ainsi que l'utilisation d'une méthode de pompage optique indirecte passant par l'excitation d'un mode de Bragg, ont permis d'obtenir un effet laser dans la résonance ST à température ambiante, en excitation impulsionnelle. L'effet laser est démontré par l'évolution sur-linéaire, au dessus d'une puissance d'excitation seuil, de l'intensité émise dans le mode ST, ainsi que par les concentrations spectrale et angulaire de l'émission. Ces résultats, constituant la première démonstration de l'effet laser à température ambiante dans une source à mode Tamm inorganique, ont fait l'objet d'une publication dans la revue ACS Photonics.²² Il s'agit en effet d'une étape importante dans le développement pré-applicatif des sources laser à mode Tamm, car elle prouve la possibilité de fabriquer un composant, compatible avec les matériaux et techniques de la micro-électronique, qui peut fonctionner à température ambiante.

Références

- ¹C. Symonds et al., “Confined Tamm Plasmon Lasers”, *Nano Letters* **13**, 3179-3184 (2013).
- ²M. Khajavikhan et al., “Thresholdless Nanoscale Coaxial Lasers”, *Nature* **482**, 204-207 (2012).
- ³Q. Zhang et al., “A Room Temperature Low-Threshold Ultraviolet Plasmonic Nanolaser”, *Nature Communications* **5**, 1-9 (2014).
- ⁴W. Wei, X. Yan et X. Zhang, “Ultrahigh Purcell Factor in Low-Threshold Nanolaser Based on Asymmetric Hybrid Plasmonic Cavity”, *Scientific Reports* **6**, 1-7 (2016).
- ⁵A. A. Vyshnevyy et D. Y. Fedyanin, “Lasing Threshold of Thresholdless and Non-Thresholdless Metal-Semiconductor Nanolasers”, *Optics Express* **26**, 33473-33483 (2018).
- ⁶G. Lheureux et al., “Polarization-Controlled Confined Tamm Plasmon Lasers”, *ACS Photonics* **2**, 842-848 (2015).
- ⁷S. Azzini et al., “Generation and Spatial Control of Hybrid Tamm Plasmon / Surface Plasmon Modes”, *ACS Photonics* **3**, 1776-1781 (2016).
- ⁸Y.-J. Lu et al., “Plasmonic Nanolaser Using Epitaxially Grown Silver Film”, *Science* **337**, 450-453 (2012).
- ⁹J. Ho et al., “Low-Threshold near-Infrared GaAs–AlGaAs Core–Shell Nanowire Plasmon Laser”, *ACS Photonics* **2**, 165-171 (2015).
- ¹⁰N. Liu et al., “Lithographically Defined, Room Temperature Low Threshold Sub-wavelength Red-Emitting Hybrid Plasmonic Lasers”, *Nano Letters* **16**, 7822-7828 (2016).
- ¹¹Y.-L. Ho et al., “On-Chip Monolithically Fabricated Plasmonic-Waveguide Nanolaser”, *Nano Letters* **18**, 7769-7776 (2018).
- ¹²C. Symonds et al., “High Quality Factor Confined Tamm Modes”, *Scientific Reports* **7**, 1-7 (2017).
- ¹³A. Mock, “First Principles Derivation of Microcavity Semiconductor Laser Threshold Condition and Its Application to FDTD Active Cavity Modeling”, *JOSA B* **27**, 2262-2272 (2010).
- ¹⁴M. Kaliteevski et al., “Tamm Plasmon-Polaritons : Possible Electromagnetic States at the Interface of a Metal and a Dielectric Bragg Mirror”, *Physical Review B* **76**, 165415 (2007).
- ¹⁵M. Adams et al., “A Model for Confined Tamm Plasmon Devices”, *Journal of the Optical Society of America B* **36**, 125 (2019).
- ¹⁶G. Brasse et P. Camy, “Couches minces cristallines - Procédés de fabrication et applications”, *Techniques de l'ingénieur Optique Photonique base documentaire : TIP520WEB*. 10.51257/a-v1-e6308 (2018).

-
- ¹⁷J. H. Neave et al., “Dynamics of Film Growth of GaAs by MBE from Rheed Observations”, *Applied Physics A* **31**, 1-8 (1983).
- ¹⁸S. E. Okan et al., “The Exciton Transition Energies in Symmetric Double GaAs/Al_xGa_{1-x}As Quantum Wells”, *physica status solidi (b)* **212**, 263-270 (1999).
- ¹⁹K. Sivalertporn, “Effect of Barrier Width on the Exciton States in Coupled Quantum Wells in an Applied Electric Field”, *Physics Letters A* **380**, 1990-1994 (2016).
- ²⁰G. T. Dang, H. Kanbe et M. Taniwaki, “Photoluminescence of an Al_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs Multiple Quantum Well in the Temperature Range from 5 to 400 K”, *Journal of Applied Physics* **106**, 093523 (2009).
- ²¹D. A. B. Miller, “Optical Physics of Quantum Wells”, in *Quantum Dynamics of Simple Systems*, G. L. Oppo, S. M. Barnett, E. Riis, and M. Wilkinson (Institute of Physics, London, 1996), p. 239-266.
- ²²V. Toanen et al., “Room-Temperature Lasing in a Low-Loss Tamm Plasmon Cavity”, *ACS Photonics* **7**, 2952-2957 (2020).

Chapitre 3

Sources Tamm à injection électrique : conception et première méthode de fabrication

3.1 Motivation

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, le principal atout des sources à mode Tamm est la possibilité de structurer la couche métallique en surface pour contrôler le mode optique, et ainsi créer de nouvelles sources de lumières. Cependant, leur intérêt pratique est conditionné par la possibilité de fonctionner hors d'un laboratoire, dans les conditions standards d'un dispositif intégré, c'est-à-dire en excitation électrique et à température ambiante. Un autre avantage essentiel des structures Tamm est qu'elles se prêtent a priori particulièrement bien à l'injection électrique. En effet, le métal qui crée le mode Tamm peut aussi servir d'électrode pour injecter les porteurs de charges, directement dans la zone où existe le mode.

Ce chapitre présente une première approche de la fabrication de sources à plasmon Tamm à injection électrique. Après la définition de la structure, le développement de la fabrication sera détaillé, ainsi que les résultats obtenus.

3.2 Structure cible

En figure 3.1 se trouve le schéma de la structure cible choisie. Celle-ci est issue de premiers travaux réalisés par Aristide Lemaître dans le cadre de l'ANR Nehmesis.¹ Nous partons d'un miroir de Bragg semi-conducteur en AlGaAs/AlAs contenant des puits quantiques (PQ) d'InGaAs proches de sa surface. Pour amener les porteurs de charge dans les PQ, la structure est dopée de part et d'autre des émetteurs, ceux-ci se trouvant dans la zone intrinsèque d'une jonction p-i-n. Le miroir de Bragg, majoritairement dopé n, est épitaxié sur un substrat de GaAs de type n. Seules les dernières couches épitaxiées, au dessus des PQ, sont dopées p. Dans l'esprit d'une structure simple, le courant électrique traverse l'intégralité du miroir de Bragg et sortira par la face arrière du substrat de GaAs.

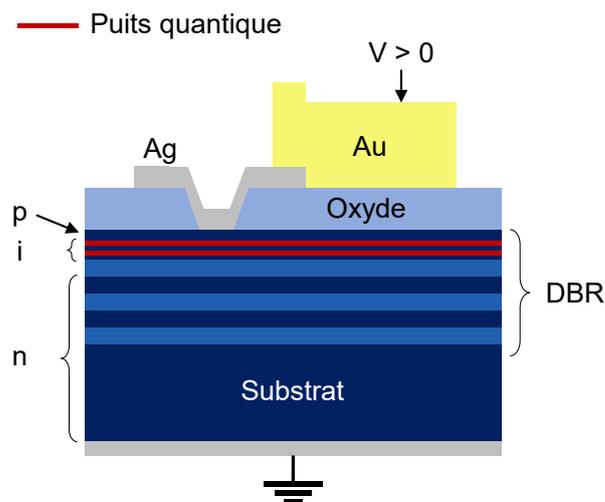


FIGURE 3.1 – Schéma de la structure cible pour réaliser une LED Tamm

À la surface de la structure, une micro-structuration est nécessaire afin d'amener localement le courant électrique. Une fine couche d'oxyde, présentant des ouvertures circulaires de différents diamètres, est présente à la surface du miroir de Bragg, et permet d'isoler les diodes les unes de autres. Un pad d'argent recouvre cette ouverture, laquelle limite le contact entre le miroir de Bragg et l'argent. Cette zone de contact sert à la fois à injecter le courant électrique et à créer le mode Tamm. C'est également par là que sortira la lumière émise par le dispositif. Un pad métallique épais en or, chevauchant légèrement le pad d'argent est également déposé sur la couche d'oxyde. C'est sur ce pad d'or que l'on amènera le courant électrique via une pointe de test ou un fil conducteur.

De nombreuses possibilités existent pour obtenir cette structures cible. Deux procédés de fabrication seront présentés dans ce manuscrit. Le premier procédé, décrit dans ce chapitre, peut être vu comme l'application de techniques standards de microfabrication au cas des sources Tamm. Tirant les conclusions de cette première méthode, un deuxième procédé sera décrit dans le chapitre suivant.

3.3 Définition optique de la structure

3.3.1 Définition du miroir de Bragg

Conception générale

La première étape consiste à définir la structure du miroir de Bragg support de la jonction p-i-n. Nous partons sur un DBR constitué de couches quart d'onde d'AlAs et d' $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ sur substrat GaAs, avec des PQ d' $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ dans la couche de haut indice en surface. La figure 3.2 (a) montre le profil d'indice optique dans la structure choisie. Habituellement, les structures Tamm sont terminées en surface par une couche quart d'onde de haut indice.^{2,3} Ici, cette dernière couche est allongée

jusqu'à une épaisseur effective de $3\lambda_B/4$, où λ_B est le centre de la bande interdite du DBR, afin de placer plus de puits quantiques dans la structure et d'augmenter le gain optique disponible. L'épaisseur effective $3\lambda_B/4$ permet d'obtenir le mode Tamm à la même longueur d'onde et avec des propriétés similaires qu'avec une dernière couche d'épaisseur effective $\lambda_B/4$.

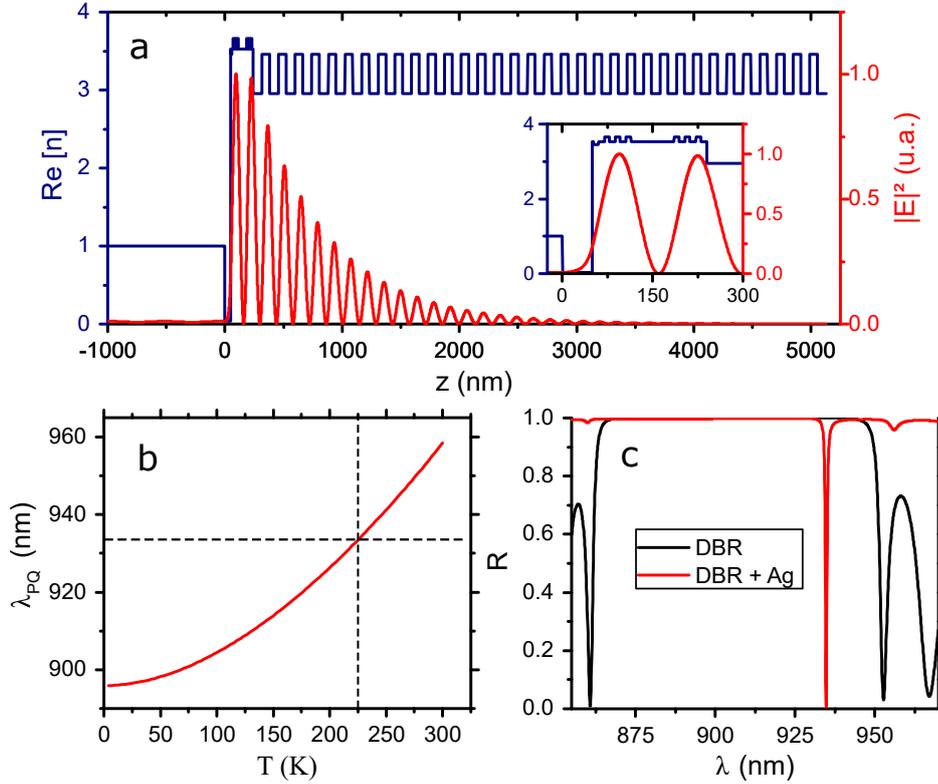


FIGURE 3.2 – (a) Profil d'indice optique dans la structure et simulation du champ électrique à la résonance Tamm à 934.8 nm (b) Longueur d'onde d'émission des PQ d'InGaAs avec la température (c) Simulation de la réflectivité du DBR centré à 905 nm avec et sans argent à $T = 225$ K.

Les épaisseurs du DBR sont choisies pour accorder le mode Tamm avec l'émission des PQ d'InGaAs de largeur 8 nm. L'absence de rotation du substrat pendant l'épitaxie induit un gradient d'épaisseur dans les couches déposées qui permet ensuite de choisir la longueur d'onde du Tamm en se déplaçant le long du substrat. On souhaite avoir un DBR accordable à basse température (77 K) et à température ambiante. Pour cela, on définit les épaisseurs "nominales" du DBR en visant un accord Tamm/PQ à une température intermédiaire de 225 K. La figure 3.2 (b) montre la variation de la longueur d'onde d'émission des PQ avec la température. Pour obtenir cette courbe, la longueur d'onde d'émission des puits a été mesurée à température ambiante sur une structure similaire, puis extrapolée à basse température avec une loi de Varshni.⁴ Cette estimation est suffisante compte tenu de la large accordabilité du mode optique d'un bord à l'autre de la surface épitaxiée. La luminescence des PQ est attendue proche de 935 nm à 225 K, aussi nous définirons les épaisseurs du

DBR de manière à obtenir un mode Tamm à la même longueur d'onde à cette température. Pour cela, la méthode des matrices de transfert est utilisée pour simuler la structure. La figure 3.2 (c) présente la simulation de la réflectivité d'un DBR de 35 couches avec une dernière couche de haut indice d'épaisseur $3\lambda_B/4$, centré sur $\lambda_B = 905$ nm. En ajoutant 50 nm d'argent à la surface, on obtient un mode Tamm à $\lambda_T \simeq 935$ nm comme souhaité. En figure 3.2 (a) se trouve également la simulation du module carré du champ électrique dans la structure. La couche d'épaisseur $3\lambda_B/4$ contient deux pics du champ électrique. Les PQ doivent être placés proche de maximums du champ électrique pour bien interagir avec celui-ci. Nous placerons donc six PQ, trois autour de chaque maximum du champ, dans cette couche de GaAs de haut indice. Ces six puits sont repérables par une légère augmentation de l'indice optique dans le zoom sur la couche $3\lambda_B/4$ en figure 3.2 (a). Cette position des puits par rapport aux pics du champ électrique garantit une bonne interaction avec le mode Tamm.

Nombre de paires du DBR

Le nombre de paires de couches quart d'onde constituant le DBR détermine les pertes radiatives à travers celui-ci. Il s'agit donc d'un paramètre important dans le contrôle du facteur de qualité Q . Dans notre cas, le miroir semi-réfléchissant contrôlant les pertes radiatives utiles est la couche métallique. Les pertes à travers le DBR sont donc à minimiser en choisissant un grand nombre de paires. La figure 3.3 montre la dépendance du facteur de qualité du mode Tamm avec le nombre de paires de couches du DBR. Entre 10 et 30 paires, le facteur de qualité augmente très rapidement avec le nombre de couches. À partir de 40 paires, Q plafonne vers 1300.

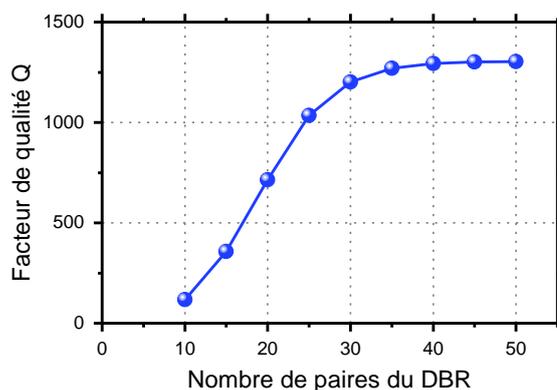


FIGURE 3.3 – Évolution du facteur de qualité du mode Tamm avec le nombre de paires de couches du DBR

Le nombre de paires de couches quart d'onde a également une influence sur les propriétés électriques des DBR dopés. En effet, les multiples interfaces entre matériaux d'énergies de gap différentes constituent des barrières pour les porteurs de charge, de sorte que le DBR se comporte comme une résistance en série avec la

jonction p-i-n et le reste de la structure.⁵ Cette résistance série est d'autant plus élevée que le nombre de couches est grand.

Dans notre cas, nous partons sur un DBR constitué de 35 paires de couches quart d'onde, ce qui est un nombre raisonnable pour la résistance série du DBR,^{6,7} tout en permettant un facteur de qualité de 1270, proche du maximum atteignable à $Q_{max} \simeq 1300$.

3.3.2 Confinement du mode Tamm

L'étude précédente vise à définir le mode Tamm dans une structure considérée plane. Or le but est de fabriquer des sources à mode Tamm confiné dans les trois directions. Comme le rappelle le schéma de la figure 3.4 (a), le confinement latéral du mode est réalisé par une couche isolante, percée d'ouvertures circulaire au fond desquelles l'argent est en contact avec la surface du DBR. Le confinement s'effectue alors à la condition que le mode Tamm à l'interface DBR/Ag n'ait aucun autre mode avec lequel se coupler à l'extérieur des ouvertures, c'est-à-dire dans le système DBR/oxyde/Ag. Il convient donc de choisir une épaisseur d'oxyde garantissant l'absence de mode optique dans ce système. La démarche est opposée à celle décrite en section 2.2 (p.68), où l'on ajustait l'épaisseur de la couche intermédiaire pour optimiser les propriétés du mode super-Tamm.

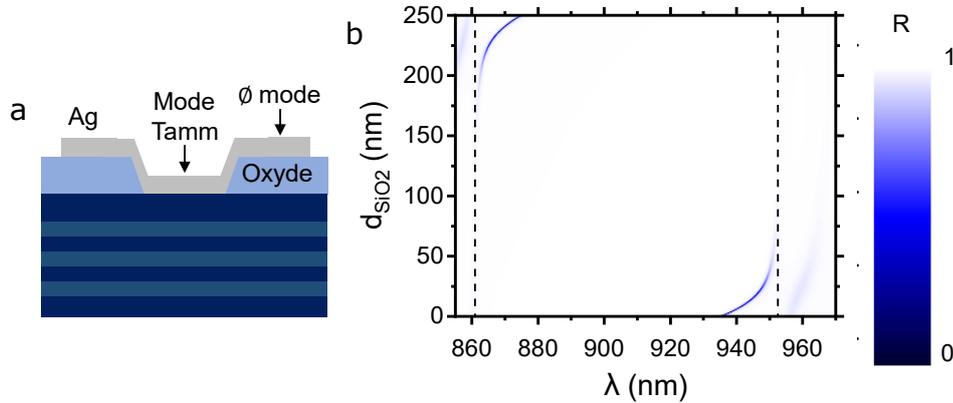


FIGURE 3.4 – (a) Schéma de principe du confinement latéral (b) Simulation de la réflectivité de la structure DBR/Ag/SiO₂ en fonction de l'épaisseur de SiO₂, à $T = 225$ K, avec $\lambda_B = 905$ nm et $d_{Ag} = 50$ nm. Les pointillés indiquent la position des modes de Bragg encadrant la bande interdite du DBR.

La figure 3.4 (b) montre le spectre de réflectivité à incidence nulle du système DBR/oxyde/Ag en fonction de l'épaisseur de la couche d'oxyde. Celle-ci est une couche de silice d'indice 1.47, dont l'épaisseur varie de 0 à 250 nm. La structure Tamm “classique” correspond à $d_{SiO_2} = 0$ nm, où l'on retrouve le mode à $\lambda_T \simeq 935$ nm. Les pointillés indiquent les bords de la bande interdite du DBR. Pour une faible épaisseur d_{SiO_2} inférieure à 100 nm, l'ajout de cette couche de bas indice décale la résonance vers le bord de la bande interdite de basse énergie, comme nous l'avons vu dans la section 2.2.1 avec l'étude de la structure super-Tamm. La profondeur du

pic Tamm diminue quand l'épaisseur augmente, jusqu'à ce que le pic disparaisse. Entre $\simeq 100$ et 150 nm, la réflectivité de la structure est environ égale à 1 sur toute la bande interdite du DBR : il n'y a aucun mode optique au sein de la bande interdite avec lequel le mode Tamm sans silice pourrait se coupler. Pour une épaisseur supérieure à 150 nm, le mode Tamm apparaît à nouveau depuis l'autre bord de la bande interdite. Nous choisisons donc une épaisseur de 100 nm de SiO_2 pour un confinement latéral efficace du mode Tamm.

3.4 Épitaxie et dopage

Le miroir de Bragg précédemment décrit a été fabriqué en épitaxie par jet moléculaire (MBE) par Aristide Lemaître du Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies. Lors de l'épitaxie, des impuretés sont ajoutées aux jets atomiques des matériaux III-V pour doper la structure. La structure épitaxiée est schématisée en figure 3.5 (a).

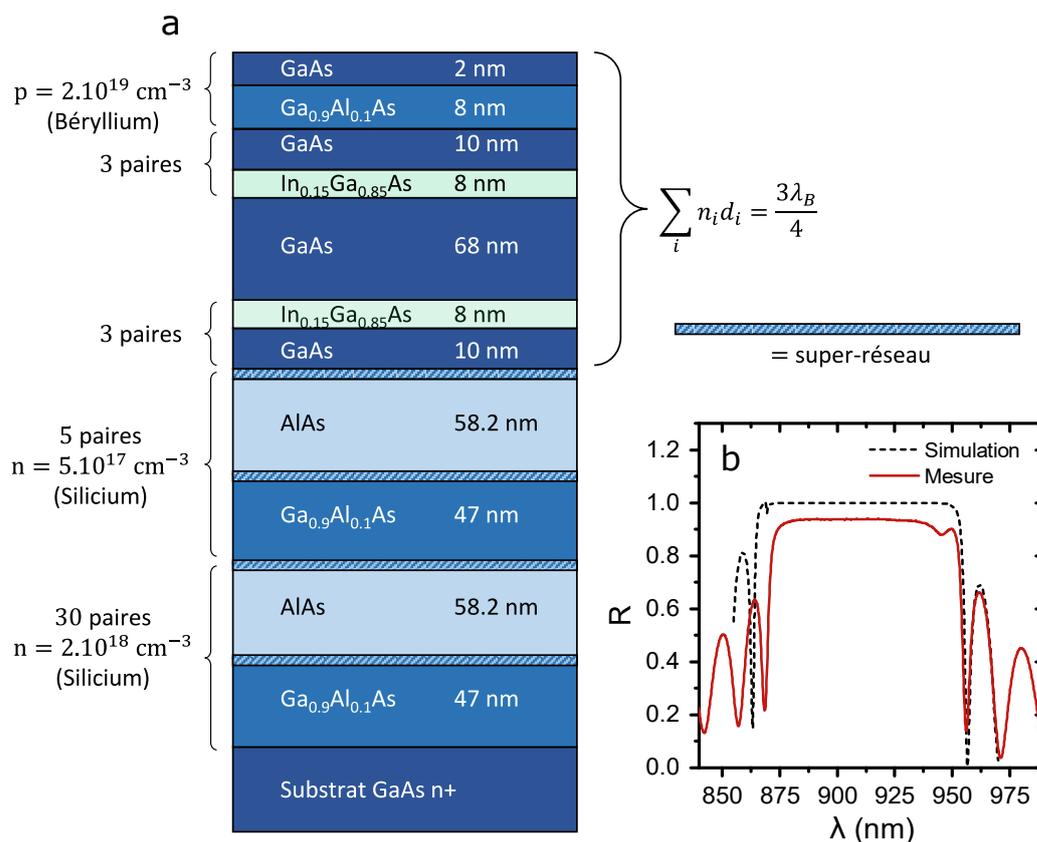


FIGURE 3.5 – (a) Schéma du DBR épitaxié (b) Mesure de la réflectivité du DBR proche du centre, et réflectivité prévue par les simulations préparatoires.

À la surface du DBR se trouvent deux fines couches de GaAs et GaAlAs fortement dopées p au béryllium à une densité $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Ce dopage très élevé facilite le passage des porteurs de charges à travers la jonction Schottky qui apparaîtra une

fois l'argent déposé à la surface. Sous l'empilement $3\lambda_B/4$, le DBR est dopé n avec des atomes de silicium. Les cinq premières paires sont assez faiblement dopées à $n = 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, car le dopage n induit une absorption en dessous du gap et peut donc dégrader le mode optique.^{6,8,9} Le reste du DBR, où le champ électrique du mode Tamm est plus faible, est plus fortement dopé à $n = 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Des super-réseaux sont présents entre l'AlGaAs et l'AlAs pour limiter les résistances d'interface et réduire la résistance série de l'ensemble.¹⁰

La figure 3.5 (b) compare une mesure de réflectivité sur le DBR épitaxié, proche du centre du substrat, ainsi qu'une simulation préparatoire du DBR en son centre, à la température ambiante. Les deux bandes interdites sont assez proches. Celle de la structure épitaxiée est un peu moins large ($\simeq 87 \text{ nm}$) que celle de la structure simulée ($\simeq 93 \text{ nm}$), ce qui peut éventuellement s'expliquer par le dopage ou les super-réseaux, non pris en compte dans les simulations.

3.5 Première méthode de fabrication

3.5.1 Vue d'ensemble

La figure 3.6 présente le premier procédé de fabrication développé pour atteindre la structure cible. Le contact entre le DBR et la couche d'argent est défini par une couche de silice comportant des ouvertures circulaires. Ces dernières sont obtenues par gravure humide de la silice après une étape de lithographie optique.

Les étapes du procédé sont les suivantes :

- i. dépôt de 100 nm de silice en dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD) sur le DBR épitaxié,
- ii. dépôt d'une résine photosensible AZ[®] 5214E par spin-coating et définition des ouvertures circulaires par lithographie laser,
- iii. gravure humide de la silice dans les ouvertures et lift-off de la résine,
- iv. définition des pads d'argent par spin-coating de résine et lithographie optique,
- v. dépôt d'argent par pulvérisation cathodique et lift-off,
- vi. définition des pads de contact par spin-coating de résine et lithographie optique,
- vii. dépôt d'or (avec couche d'accroche) puis lift-off.

Chacune de ces étapes sera décrite en détail dans la suite de cette section.

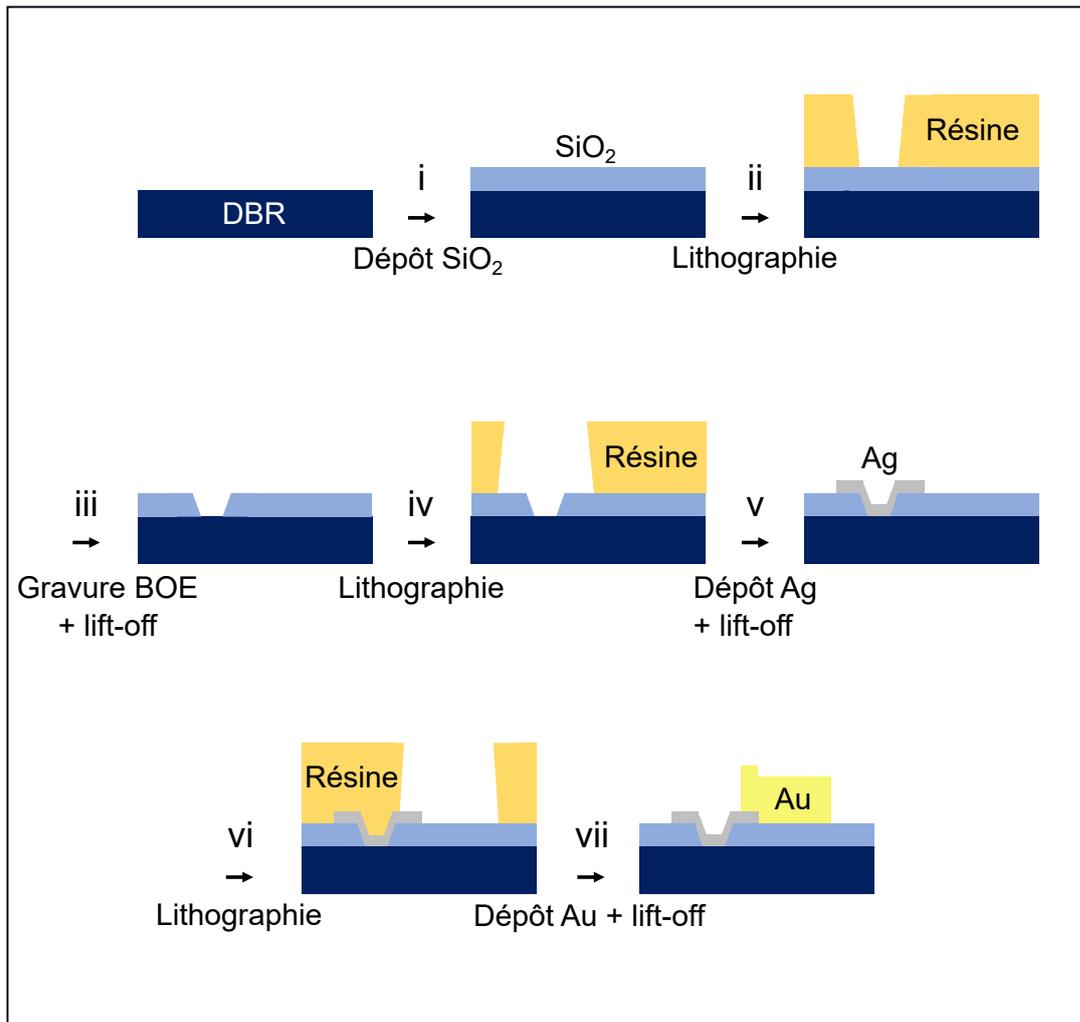


FIGURE 3.6 – Premier procédé de fabrication des sources Tamm à injection électriques.

3.5.2 Nettoyage des échantillons

En microfabrication, le nettoyage des échantillons entre les différentes étapes est souvent crucial. Dans le cas de nos hétérostructures épitaxiées sur substrat de GaAs, nous appliquons avant chaque étape de lithographie la procédure de nettoyage suivante, couramment utilisée en microfabrication :

- bain d'acétone (1 minute minimum),
- bain d'alcool isopropylique (IPA) (1 minute minimum),
- séchage à l'azote.

3.5.3 Dépôt de SiO₂ par PECVD

Après le nettoyage, une couche isolante de silice d'épaisseur 100 nm est déposée sur la surface du DBR. Dans notre cas, il s'agit d'un dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD).¹¹ La technique consiste à introduire des précurseurs en phase gazeuse dans un réacteur dans lequel on entretient un plasma froid. L'énergie cinétique des électrons du plasma fournit aux précurseurs l'énergie nécessaire pour interagir, se combiner et condenser à la surface du substrat, et ainsi former un dépôt solide. Une caractéristique du dépôt est qu'il n'est pas balistique, et couvre les flancs d'éventuelles micro-structures pré-existantes.¹² Le plasma permet notamment d'effectuer les dépôts à des températures relativement basses, souvent entre 200 °C et 400 °C, quand les dépôts en CVD sans plasma s'effectuent le plus souvent autour de 800 °C.^{13,14} Pour la fabrication des sources à plasmons Tamm, la couche de silice était déposée à 300 °C.

3.5.4 Photolithographie

La photolithographie permet de transférer vers un substrat des motifs définis sur un masque, via l'exposition et le développement d'une résine photosensible. Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé la résine commerciale AZ[®] 5214E, qui peut être utilisée en mode positif (la zone exposée part au développement) ou négatif (la zone premièrement exposée reste au développement après inversion de la résine et une deuxième exposition de tout l'échantillon).¹⁵ Comme on peut le voir sur le schéma de la figure 3.7, le mode négatif permet d'obtenir des flancs de résine adaptés au lift-off d'une couche déposée après la lithographie.

Spin-coating et recuit

Après nettoyage de l'échantillon, on procède à l'étalement de la résine photosensible par spin-coating. Les paramètres d'étalement sont rapportés en table 3.1.

Durée	Vitesse	Accélération
30 s	3000 tr/min	3000 tr/min/s

TABLE 3.1 – Paramètres d'étalement de la résine

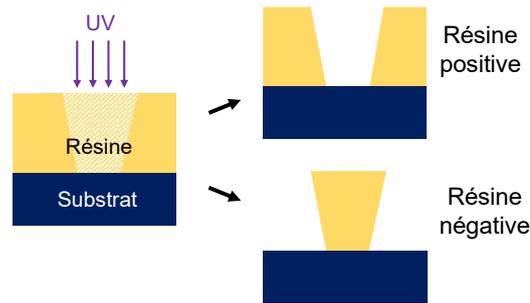


FIGURE 3.7 – Structuration d’une résine photosensible par photolithographie, dans le cas d’une résine positive ou négative.

La résine est ensuite recuite pendant 50s sur une plaque chauffante à 110°C pour éliminer la majeure partie du solvant encore présent après l’étalement. Avec ces paramètres, une épaisseur de résine proche de 1.6 μm est obtenue.¹⁵

Lithographie laser

Dans le cadre de cette thèse, un système de photolithographie directe par laser a été utilisé pour les étapes d’exposition de la résine. Cette technique est couramment employée pour l’écriture de masque destinés à être utilisés avec un aligneur UV. Elle consiste à insoler directement la résine étalée sur le substrat par balayage d’un faisceau laser UV suivant une trajectoire définie dans un fichier de type *.gds* créé par l’utilisateur.

Cette technique présente plusieurs avantages. Tout d’abord, le fichier GDS peut être défini à chaque utilisation. Il y a donc un gain de flexibilité comparé à une lithographie classique par contact, où un masque doit être gravé chaque fois que l’on souhaite changer le design.



FIGURE 3.8 – Système de photolithographie directe par laser $\mu\text{PG 101}$

Ensuite, si l’on travaille avec des échantillons petits, typiquement entre 8 et 15 mm dans notre cas, alors il devient difficile d’atteindre une résolution micrométrique en lithographie de contact. En effet, lors du spin-coating, une surépaisseur de résine est généralement présente sur les bords du substrat. Sans traitement spécifique, cette surépaisseur peut faire accrocher le substrat au masque lors du contact, ce que l’on

évite en augmentant la distance entre les deux, au détriment de la résolution qui se trouve diminuée par diffraction. Des procédés existent pour se débarrasser de la surépaisseur (“edge-bead removal”) mais ils sont difficilement applicables à des échantillons de petite taille. La lithographie laser quant à elle s’affranchit de cette difficulté, car il n’y a aucun contact entre la surface du substrat et la tête d’écriture laser. La surépaisseur du bord ne compromet donc pas la réussite de la lithographie à plus de $\simeq 1$ mm du bord de l’échantillon.

Dans ce travail de thèse, nous avons utilisé le système de lithographie μ PG 101 de Heidelberg Instruments, dont la résolution théorique est de $0.9 \mu\text{m}$. Le rayonnement UV est issu d’une diode laser émettant à 375 nm . Les deux paramètres déterminants sont les suivants :

- la puissance du laser d’insolation. La dose reçue par la résine est directement proportionnelle à la puissance.
- la focalisation du laser sur la surface de l’échantillon. La profondeur de champ du spot laser focalisé étant très courte, sa taille et l’éclairement obtenu sont très dépendants de la distance entre l’échantillon et la tête laser. D’une mauvaise focalisation résultera donc une possible sous-exposition, une moins bonne résolution voire une déformation des motifs. Pour que la focalisation du laser soit constante au cours de l’exposition, il est primordial que la face arrière de l’échantillon soit bien plane. Nos échantillons étant de petite taille, il est fréquent que de la résine se dépose sur la face arrière lors du spin-coating, auquel cas un nettoyage de sa face arrière doit être effectué avant l’exposition.

Résultats

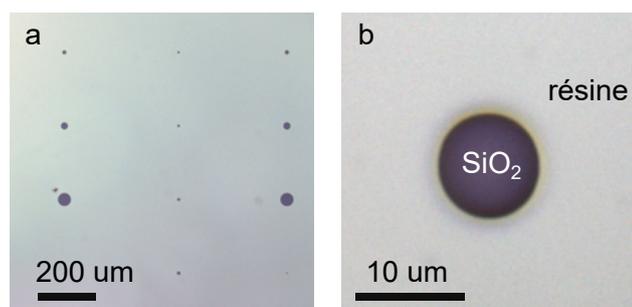


FIGURE 3.9 – Disques lithographiés. (a) Vue en champ large. (b) Vue rapprochée d’un disque de diamètre visé $\phi_{GDS} = 8 \mu\text{m}$

Ici le but est de définir des trous circulaires dans la couche de résine, pour ensuite transférer ces ouvertures à la couche d’oxyde via une attaque chimique. L’échantillon est donc insolé par le laser sur des disques de diamètres compris entre 2 et $40 \mu\text{m}$. La puissance du laser est fixée à $P_{laser} = 8 \text{ mW}$, avec une durée d’impulsion relative de 50% . Le faisceau du laser est de plus atténué par un filtre, qui laisse passer $\simeq 20\%$ de l’énergie lumineuse. L’échantillon est développé pendant une minute dans la solution

commerciale AZ[®] 726 MIF pour ouvrir les trous. La figure 3.9 montre un exemple de trous lithographiés. Les trous obtenus sont assez circulaires, et leur diamètre est proche des diamètres visés. Typiquement, pour le trou montré en figure 3.9 (b), $\phi_{litho} \simeq 9.2 \mu\text{m}$, pour $\phi_{GDS} = 8 \mu\text{m}$.

3.5.5 Gravure du SiO₂

Après l'étape de lithographie, il faut désormais graver la couche d'oxyde au fond des trous dans la résine, pour définir les ouvertures où le DBR et l'argent seront en contact, comme représenté en figure 3.10. Le SiO₂ peut être gravé par voie sèche ou humide. La gravure sèche, de type "Reactive Ion Etching" (RIE) par exemple, est couramment utilisée.¹⁶ Un avantage majeur de cette méthode est qu'une très bonne résolution est possible lors du transfert des motifs de résine lithographiée à l'oxyde lors de la gravure. En revanche, la sélectivité entre la silice et le substrat est généralement moins élevée qu'en voie humide. Il y a donc un risque de graver le substrat une fois celui-ci atteint par le plasma.

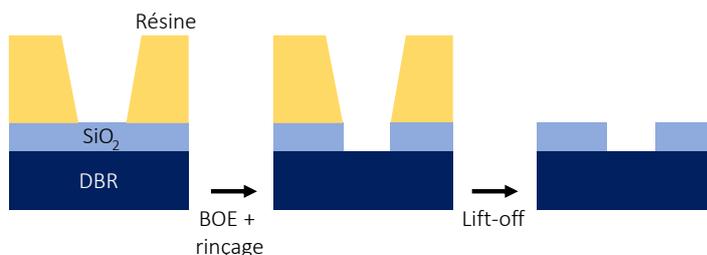
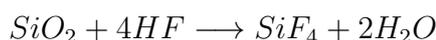


FIGURE 3.10 – Schéma de la gravure de l'oxyde puis dissolution de la résine

En voie humide, l'acide fluorhydrique (HF) est l'espèce classiquement utilisée pour graver la silice. Celle-ci est gravée suivant la réaction bilan¹⁷ :



L'avantage du HF est son excellente sélectivité avec des substrats Si ou GaAs. Une solution de HF diluée à 10 % dans l'eau grave un SiO₂ thermique à environ 23 nm/min,¹⁸ alors qu'elle grave le GaAs à une vitesse généralement négligeable de l'ordre de 1 à 10 nm/heure.^{19,20} La gravure de la silice par une solution de HF est donc généralement compatible avec une fabrication menée sur silicium ou GaAs. En revanche, la gravure étant isotrope, la résolution des motifs gravés est souvent moins bonne qu'en gravure sèche.

La réaction de gravure de l'oxyde consommant des ions F⁻, la vitesse de gravure est assez difficile à contrôler avec une simple solution de HF diluée dans l'eau. Aussi, l'acide fluorhydrique est souvent mélangé à du fluorure d'ammonium pour former une solution tampon, qui permet entre autres de réguler la concentration en HF et d'assurer une vitesse de gravure constante.¹⁷ La solution obtenue, dénommée BOE pour Buffered Oxyde Etch, est ainsi fréquemment utilisée lorsqu'il s'agit de graver des motifs issus d'une lithographie dans la couche d'oxyde.

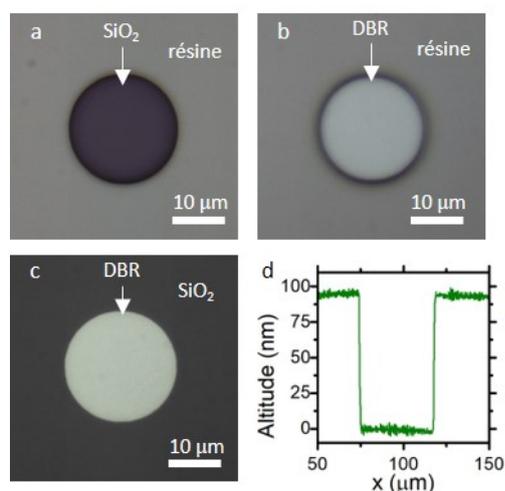


FIGURE 3.11 – Gravure et lift-off d'un disque. (a) Disque lithographié de 20 µm avant gravure (b) après gravure de 30 s au BOE (c) après dissolution de la résine dans l'acétone. (d) Profil d'un disque de 40 µm après dissolution de la résine.

Dans ce travail de thèse, nous avons utilisé une solution de BOE 6 :1 (six volumes de NH_4F à 40% dans l'eau pour un volume de HF à 49% dans l'eau). L'échantillon est immergé et agité durant 30 s dans le BOE, puis est longuement rincé à l'eau déionisée. La vitesse de gravure de la silice au BOE est connue pour être assez dépendante de la nature de l'oxyde. Les oxydes thermiques, réputés les plus lents à graver car les plus denses, sont gravés à $\simeq 100$ nm/min dans le BOE 5 :1.¹⁸ Les oxydes déposés, moins denses, sont généralement gravés plus vite. La figure 3.11 montre la gravure d'un disque de 20 µm avec une immersion de 30 s dans le BOE. L'oxyde est complètement gravé après 30 s, et la taille du disque lithographié est bien respectée. La mesure au profilomètre après gravure et dissolution de la résine en figure 3.11 (d) montre que l'on a une épaisseur de SiO_2 très proche de 100 nm, qui est l'épaisseur visée pendant la PECVD.

Cependant, certaines ouvertures présentent des défauts sur la surface découverte du DBR, comme dans le disque montré en figure 3.12. Ces défauts affectent principalement les disques les plus larges (20 et 40 µm), et de manière non systématique. La plupart des disques présentant un aspect correct comme en figure 3.11, il a été choisi de poursuivre la fabrication sur ces échantillons. Une analyse de ces défauts au regard des résultats optiques sera donnée dans la section 3.6.2 (p.109).

3.5.6 Définition des pads de contact

Une fois les ouvertures définies dans la couche d'oxyde, il convient de déposer deux pads métalliques sur la structure. Le premier pad est un carré d'argent, de côté 100 µm, et centré sur l'ouverture dans la couche isolante (voir figure 3.1, p.88). C'est lui qui va créer le mode Tamm à son interface avec le DBR. Le deuxième pad est un carré d'or épais, de côté 200 µm et chevauchant le pad d'argent, pour poser

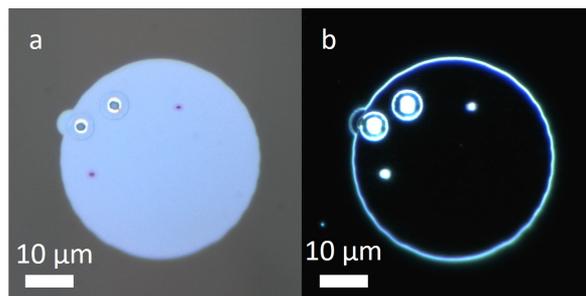


FIGURE 3.12 – Défauts dans un disque gravé de $40\ \mu\text{m}$ en imagerie de (a) champ clair (b) champ sombre.

un fil ou une pointe de contact électrique. Ces deux pads sont structurés par lift-off des couches métalliques.

Lithographie des pads

Pour structurer un matériau par lift-off, il est préférable de procéder à une photolithographie négative. En effet, l’angle des flancs de résine obtenu (voir figure 3.7, p.96) évite d’y déposer le matériau en question, et facilite donc l’accès à la résine pour l’acétone. Dans notre cas, la même résine AZ[®] 5214E est utilisée en mode négatif. Pour cela, elle est d’abord insolée, puis recuite, ce qui rend les zones insolées de la résine insolubles dans le développeur. C’est l’étape dite d’inversion. La résine est ensuite exposée une deuxième fois (“flood exposure”) avec une forte dose sur toute sa surface, pour rendre soluble dans le développeur tout ce qui n’a pas été précédemment inversé.

	Aligneur EVG-620	Lithographie laser
Soft-bake	2 min 120 °C	50 s 110 °C
Exposition	$50\ \text{mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$	$\simeq 0.2 \times 50\% \times 6\ \text{mW}$
Reversal bake	1 min 120 °C	2 min 120 °C
Flood exposure	$220\ \text{mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$	$350\ \text{mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$
Développement	1 min	45 s

TABLE 3.2 – Paramètres de lithographie pour la définition des pads de contact

Deux systèmes de lithographie ont été utilisés pour cette étape. Un système d’aligneur UV EVG-620 utilisé avec un masque chrome sur verre a d’abord été utilisé. Si cette méthode de lithographie est généralement bien adaptée pour l’écriture de nos motifs de dimension $\sim 100\ \mu\text{m}$, elle a été abandonnée au cours de la thèse au profit de la lithographie laser. Ce choix a été motivé par des raisons pratiques et par la possibilité d’adapter facilement le design d’un échantillon à l’autre. Des diodes fabriquées avec les deux techniques sont présentées dans ce manuscrit, sans que cette différence n’influe sur leurs propriétés.

Les paramètres de lithographie utilisés avec l’aligneur UV et en lithographie laser sont donnés en table 3.2. En lithographie laser, l’exposition suivant le recuit

d'inversion est effectuée à l'aide d'un aligneur Kloé UV-KUB 2. Une image de la résine structurée après lithographie est montrée en figure 3.13.

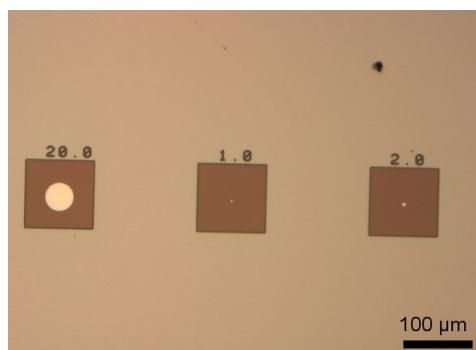


FIGURE 3.13 – Résine lithographiée avec l'aligneur UV pour la structuration du pad d'argent

Dépôt de l'argent par pulvérisation cathodique magnétron

Pour les sources Tamm électriques, deux méthodes ont été utilisées pour déposer le pad d'argent : le dépôt par évaporation thermique décrit dans la section 2.3.3 (p.76) et un dépôt par pulvérisation cathodique magnétron. Ce deuxième type de dépôt a été effectué avec un système Quorum Q150T Plus. Ce système, doté d'une pompe turbomoléculaire permettant un bon vide secondaire, a été systématiquement utilisé à partir de son acquisition. Il fournit en effet des couches d'argent d'aussi bonne qualité que celles déposées par évaporation, tout en étant beaucoup plus pratique et rapide à l'utilisation, et garantit une meilleure reproductibilité d'un dépôt à l'autre. Une balance à quartz permet un contrôle en temps réel de l'épaisseur déposée. Une photographie du système est présente en figure 3.14.



FIGURE 3.14 – Système de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron Quorum Q150T Plus, utilisé pour les dépôts d'argent.

En pulvérisation cathodique, un plasma froid est créé autour d'une cible composée du matériau à déposer.²¹ La cible est soumise à un potentiel négatif et constitue

la cathode du système. Les cations, issus de l'ionisation des atomes du gaz inerte utilisé (de l'argon dans notre cas), bombardent la cathode et arrachent des atomes de la cible par collision. Les espèces arrachées sont majoritairement neutres et peuvent condenser sur l'échantillon placé en regard du plasma.

En pulvérisation cathodique magnétron, des aimants sont en plus placés derrière la cible à pulvériser.^{21,22} Ils créent ainsi un champ magnétique autour de la cible pour y piéger les électrons. Cela permet de concentrer le plasma à proximité immédiate de la cible. Les avantages sont multiples. D'une part, l'efficacité du processus de pulvérisation est améliorée, car le confinement du plasma proche de la cible augmente la probabilité qu'un cation bombarde la cible et y arrache des atomes. Le système magnétron permet aussi au plasma d'exister avec une pression d'argon plus faible, ce qui améliore la qualité du dépôt. Enfin, le plasma étant loin du substrat, celui-ci est assez peu chauffé. Dans notre cas, l'argent est déposé sur une résine lithographiée pour ensuite subir un lift-off. Or une résine chauffée trop fort devient très difficilement soluble dans les solvants usuels. Il est donc important que la résine ne soit pas trop chauffée lors du dépôt. Un inconvénient du dépôt par pulvérisation est que le dépôt est peu directif, contrairement aux méthodes de dépôt par évaporation. Ce n'est pas idéal pour le lift-off de la résine car, si les flancs de résine sont couverts du matériau déposé, alors le solvant a plus de mal à atteindre la résine pour la solubiliser.

Pour les échantillons Tamm électriques, l'épaisseur de la couche d'argent déposée est généralement comprise entre 40 et 50 nm, ce qui constitue un bon compromis sur les pertes radiatives du mode, comme nous l'avons vu dans la section 1.2.5 (p.41).

Dépôt de titane - or

Pour les pads de contact, une combinaison de titane et d'or est déposée sur les échantillons. Le titane constitue une couche d'accroche permettant à l'or d'adhérer à la surface de la couche isolante. Le dépôt est effectué dans un système d'évaporation thermique par canon à électron Alliance Concept EVA300. Ici le matériau à déposer est placé dans un creuset et est bombardé par un faisceau d'électrons. Le processus a lieu sous une pression inférieure à 10^{-5} mBar. Le matériau étant vaporisé, la trajectoire des espèces est balistique, ce qui est idéal pour un lift-off de la couche déposée. En revanche, l'échantillon subit un échauffement, qui peut rendre plus difficile le lift-off.

Ce système contient plusieurs creusets, pour déposer successivement des matériaux différents sans remise à l'air. Dans notre cas, cette possibilité est essentielle, car une remise à l'air après le dépôt de titane entraînerait son oxydation immédiate, au détriment de l'adhérence de l'or sur le titane. 20 nm de titane et 300 nm d'or sont successivement déposés, à une vitesse d'environ $0.2 \text{ nm} \cdot \text{s}^{-1}$.

Lift-off

Après chacun des dépôts métalliques, la résine est retirée via un bain d'acétone, suivi d'un passage de quelques secondes aux ultrasons, puis d'un rinçage à l'IPA. En

figure 3.15 (a) et (b) se trouvent deux images de l'argent déposé par pulvérisation avant et après lift-off de la résine. En figure 3.15 (c) se trouve une image d'une diode Tamm en fin de process, après dépôt et lift-off de la couche Ti/Au.

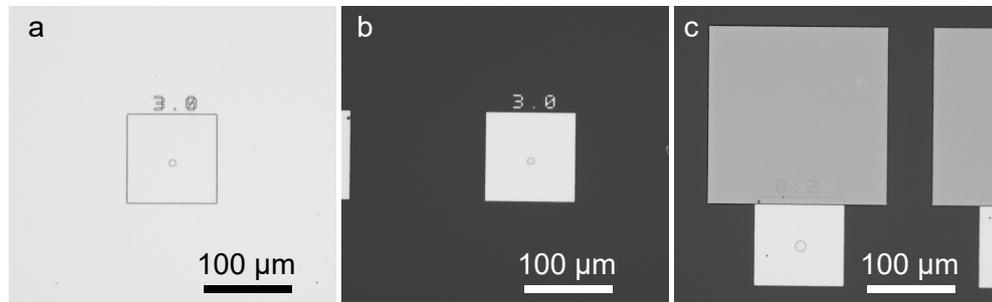


FIGURE 3.15 – Structuration des pads métalliques par lift-off. (a) Dépôt d'argent par pulvérisation (b) Lift-off de l'argent (c) Diodes terminées après dépôt et lift-off de la couche Ti/Au

3.6 Premiers résultats et nécessité d'une fabrication adaptée

3.6.1 Premières LED à structure Tamm

Caractérisation électrique

Dans cette sous-partie se trouvent les résultats expérimentaux obtenus avec les premiers échantillons ainsi fabriqués. Tout d'abord, des mesures électriques sous pointes permettent de mesurer les propriétés électriques des diodes. Cette technique de mesure a été décrite en section 1.3.4 en page 53. En figure 3.16 se trouvent les courbes courant-tension et densité de courant-tension associées à des diodes de différents diamètres. Les caractéristiques I - V obtenues montrent que la structure se comporte bien comme une diode. À tension donnée, le courant traversant une diode est d'autant plus grand que son diamètre est grand. Dans une structure idéale, où la distribution de courant serait uniforme et limitée par la surface S des disques d'injection dans toute l'épaisseur de la structure, le courant I devrait être proportionnel à S . Cela revient à écrire le courant I comme le produit de la surface S par une densité de courant $J(V)$ uniforme, qui dépend uniquement de la tension V . En pratique, la diffusion du courant électrique lors de la traversée de l'échantillon élargit sa distribution latérale loin du disque. Mais dans le cas où la conductance des diodes $G(V, S) = I/V$ est déterminée par la structure supérieure proche du disque d'injection (la jonction p-i-n principalement), on peut y négliger la diffusion des porteurs et alors J ne dépend toujours que de la tension V . Cette situation est schématisée par le cas 1 de la figure 3.17.

Les densités de courant $J = I/S$ sont tracées en figure 3.16 (b). Il apparaît clairement qu'à tension donnée, J dépend fortement de la surface d'injection S . En

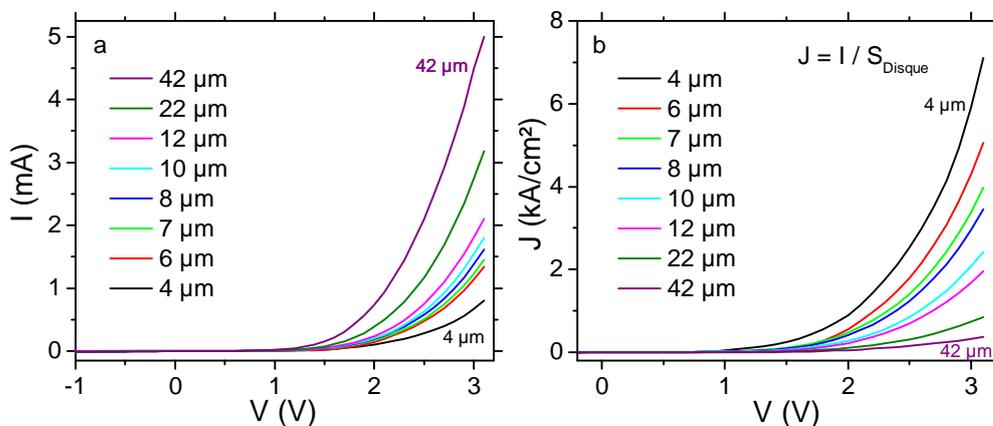


FIGURE 3.16 – (a) Courbes courant - tension I - V des diodes pour différents diamètre du disque d'injection. (b) Densités de courant $J = I/S$ pour les mêmes diodes. Pour les deux sous-figures, l'ordre de la légende suit la disposition des courbes.

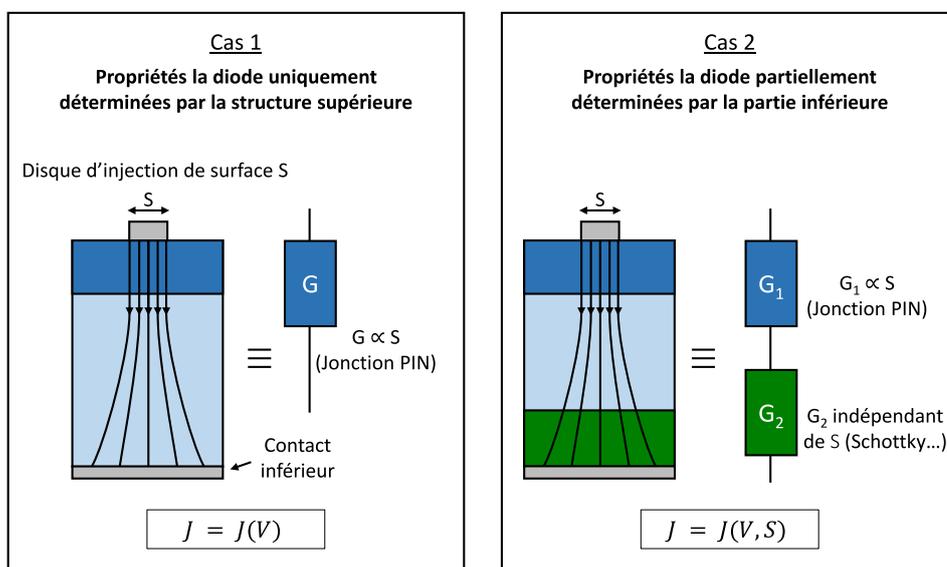


FIGURE 3.17 – Schématisation du comportement électrique des diodes dans deux cas de figure : (a) Les propriétés électrique des diodes sont déterminées par leur structure supérieure, de conductance G , où la diffusion des porteurs peut être négligée. (b) La partie inférieure de la structure (jonction Schottky, DBR), où la distribution des porteurs est élargie, détermine également le comportement électrique des diodes.

l'occurrence, J est d'autant plus grand que le diamètre du disque d'injection est petit. Le modèle précédemment décrit ne s'applique donc pas aux diodes étudiées : leur conductivité n'est pas proportionnelle à la surface d'injection. L'hypothèse la plus probable pour expliquer ce résultat est la présence d'une jonction Schottky à l'interface entre le substrat dopé n et la laque d'argent permettant de coller l'échantillon au support en cuivre.²³ Cette situation est schématisée par le cas 2 en figure 3.17. On peut en effet supposer que la distribution du courant au niveau du contact inférieur ne dépend pas de la surface S d'injection, en raison de l'étalement des lignes de courant lors du transport à travers le DBR et le substrat. Dans ce cas, la jonction Schottky vue par les diodes de différents diamètres est la même. La conductance globale des diodes n'est alors plus proportionnelle à la surface S , et J dépend de V et de S . Le DBR pourrait aussi contribuer à cet effet, en introduisant une résistance série qui n'est pas inversement proportionnelle à la surface d'injection. En revanche, la jonction p-i-n dans laquelle se situent les puits quantiques ne devrait pas contribuer à cet effet, puisque cette partie de l'hétérostructure est située juste sous les disques d'injection, de manière à ce qu'on puisse y négliger l'étalement des lignes de courant.

Caractérisation optique

Passons maintenant à la caractérisation des modes optiques de l'échantillon fabriqué. Une caractérisation purement optique par les techniques de réflectométrie et de photoluminescence permet d'analyser les modes de la structure, sans les perturbations pouvant survenir en injection électrique (champs électriques, effets thermiques...). Il s'agit tout d'abord de déterminer si un mode Tamm est présent à l'interface entre le DBR et l'argent, et si sa position est cohérente avec les simulations. Dans ce cas, le procédé de fabrication pourra être validé, au moins en ce qui concerne la conservation du plasmon Tamm.

Commençons par l'étude du DBR, par rapport auquel nous pourrons ensuite évaluer les propriétés du plasmon Tamm. Les modes du DBR sans argent peuvent être caractérisés par réflectométrie ou photoluminescence depuis les zones non recouvertes de métal, entre les différentes diodes. Le DBR est alors couvert par la couche isolante de silice, mais celle-ci étant fine et transparente, elle n'a que très peu d'influence sur les spectres de réflectivité et d'émission de la structure.

Les figures 3.18 (a) et (b) présentent une réflectométrie du DBR ainsi que la photoluminescence au même point, à $T = 75\text{ K}$. La bande interdite du DBR se situe entre 844 et 929 nm à incidence normale, sa largeur est donc de 85 nm. Des barres verticales assez bruitées sont visibles sur l'image de réflectométrie. Elles sont dues à des creux de la réponse de notre système d'analyse optique, qui est plus adapté à des longueurs d'onde inférieures à $\simeq 870\text{ nm}$. La photoluminescence des puits présentée en figure 3.18 (b) est obtenue en focalisant le laser de pompe titane-saphir sur le DBR. Le laser est réglé de manière à exciter les puits hors résonance, à $\lambda_{laser} = 760\text{ nm}$. Il est utilisé en mode continu et à basse puissance, afin de ne pas perturber l'émission par des effets de peuplement ou des effets thermiques. La luminescence émise est centrée à $\lambda_{PQ} = 883\text{ nm}$.

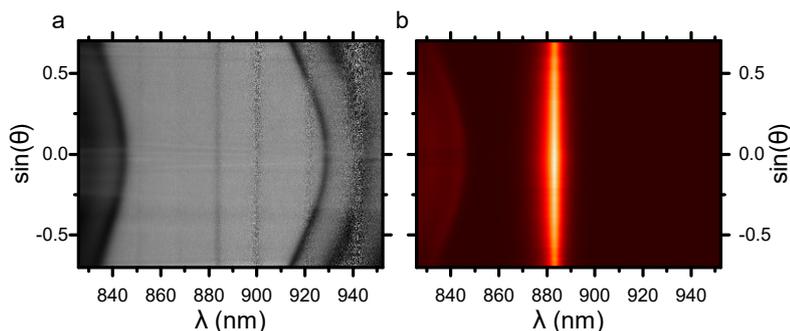


FIGURE 3.18 – (a) Réflectométrie du DBR à 75 K (b) PL du DBR à 75 K. Laser en mode continu à $\lambda_{laser} = 760$ nm.

Il s'agit maintenant de vérifier les propriétés du mode Tamm, là où l'argent est directement en contact avec le DBR, c'est-à-dire au fond des ouvertures circulaires. Sur cet échantillon, l'épaisseur d'argent est de 40 nm. En figure 3.19 (a) se trouve une simulation de la réflectivité du DBR et du DBR couvert d'argent, à incidence nulle. Les paramètres de la simulation sont choisis de manière à ce que le spectre de réflectivité calculé du DBR soit conforme au spectre expérimental (figure 3.18 (a)). En ajoutant 40 nm d'argent, le spectre présente un pic de réflectivité profond, vers $\lambda_{th} = 909$ nm, correspondant au mode Tamm. Il est positionné à $\simeq 20$ nm du mode de Bragg de basse énergie. Les barres en pointillés bleus repèrent la longueur d'onde d'émission des puits quantiques à $T = 75$ K et 300 K. Le mode Tamm simulé se situant entre ces deux limites, il doit en principe être accordé avec la luminescence des puits à une température intermédiaire.

La figure 3.19 (b) montre le spectre de réflectivité expérimental, mesuré sur l'argent au fond d'une ouverture circulaire de diamètre 40 μm , à $T = 75$ K. La qualité moyenne de cette image de réflectométrie, notamment aux grands angles, s'explique par la structure spatiale de l'échantillon autour de la zone sondée, laquelle est visible en figure 3.19 (c). Les barres horizontales sont des artefacts d'imagerie, liés à la forme carré du pad d'argent entourant l'ouverture circulaire, dans laquelle est focalisée la lumière de la lampe. On distingue néanmoins trois paraboles de dispersion. Les deux extrêmes correspondent aux modes de Bragg bordant la bande interdite du DBR. Ces pics n'apparaissent pas ou très faiblement dans le spectre de réflectivité simulé pour le système DBR/Ag. Leur présence dans le spectre expérimental s'explique par de la lumière incidente parasite, qui n'est pas focalisée sur le disque d'excitation, représenté par un cercle rouge sur l'image de la figure 3.19 (c). Cette lumière parasite, qui provient de la lampe d'éclairage, peut être issue de réflexions multiples à l'intérieur de l'objectif de microscope. Elle éclaire faiblement la surface du DBR en dehors de la diode, d'où cette contribution du spectre du DBR au spectre enregistré depuis l'argent.

Aucun mode optique n'est visible proche de 909 nm, où le plasmon Tamm est attendu. Cependant, une autre parabole, dont le sommet se situe à $\lambda_{exp} \simeq 859$ nm se distingue assez clairement. L'absorption des puits quantiques à cette longueur d'onde, inférieure à la longueur d'onde de transition à $\lambda_{PQ} = 883$ nm, explique en

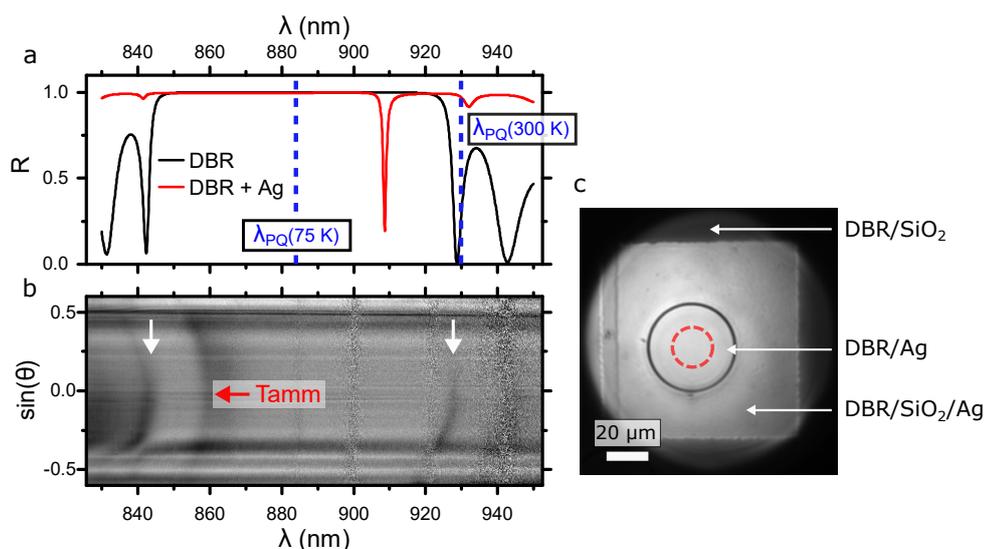


FIGURE 3.19 – (a) Simulation du DBR et du mode Tamm avec $d_{Ag} = 40\text{ nm}$ à incidence normale, à 75 K (b) Réflectométrie sur argent, à 75 K, au fond d'une ouverture de $40\text{ }\mu\text{m}$. Les flèches blanches indiquent les modes de Bragg du bord de bande interdite, et la flèche rouge le mode Tamm. (c) Image (champ large) du pad d'argent d'une diode de diamètre $40\text{ }\mu\text{m}$. Le cercle rouge indique la taille du point d'excitation pour les mesures de réflectométrie.

partie la largeur et la faible profondeur de ce pic de réflectivité. Il a été vérifié que cette parabole n'apparaît pas en sondant le système DBR/SiO₂/Ag, c'est-à-dire sur l'argent à l'extérieur du disque. Cette parabole est donc propre au contact DBR/Ag. Les modes Tamm étant les seuls modes présents dans la structure, cette parabole correspond forcément à la dispersion de la résonance Tamm.

De manière pratique, ce décalage entre les résonances Tamm prévue et observée implique que l'accord ne sera pas possible entre le mode optique et l'émission des puits, en tout cas aux températures atteignables en refroidissant à l'azote liquide. Mais plus fondamentalement, cela signifie qu'une étape de la fabrication a décalé la résonance Tamm d'environ 50 nm vers les courtes longueurs d'onde.

Caractérisation électro-optique

Bien sûr, ce décalage et ses possibles causes seront analysés en détail dans la suite du manuscrit. Avant de s'y intéresser, on peut tout de même étudier la lumière émise par les diodes par électroluminescence.

En figure 3.20 se trouvent les résultats d'électroluminescence d'une diode de diamètre $40\text{ }\mu\text{m}$, proche de la zone étudiée précédemment. L'émission observée directement (figure 3.20 (a)) est très inhomogène et provient majoritairement du bord du disque. L'inhomogénéité de l'émission suggère une dégradation de la surface du DBR au fond des ouvertures, ou bien un mauvais accord entre les modes optiques et l'émission, ce qui est attendu compte tenu des longueurs d'onde d'émission des

puits quantiques et du mode Tamm observé en réflectométrie. En imageant le disque sur la fente d'entrée du spectromètre et en fermant cette dernière, on peut tracer le spectre d'émission suivant une coupe verticale du disque. La zone sélectionnée par la fente est schématisée par les deux bandes en pointillé sur l'image (a). On obtient de cette manière un spectre d'émission résolu spatialement (figure 3.20 (b)). L'émission a lieu principalement à deux longueurs d'onde. On observe l'émission associée à la transition principale des puits quantiques à $\lambda_{PQ} = 883$ nm, ainsi qu'une émission autour de 855 nm provenant du bord du disque et dans une moindre mesure de l'intérieur. L'imagerie de Fourier (figure 3.20 (c)) montre que cette deuxième émission correspond à la parabole Tamm précédemment identifiée, dont le sommet est ici à $\lambda_{Tamm} = 857$ nm. L'écart d'environ 2 nm entre cette parabole et celle observée en réflectométrie s'explique notamment par la courte distance entre les deux diodes étudiées. L'excitation électrique permet donc d'exciter faiblement la résonance Tamm, bien que celle-ci soit, comme prévu, très désaccordée avec les puits quantiques.

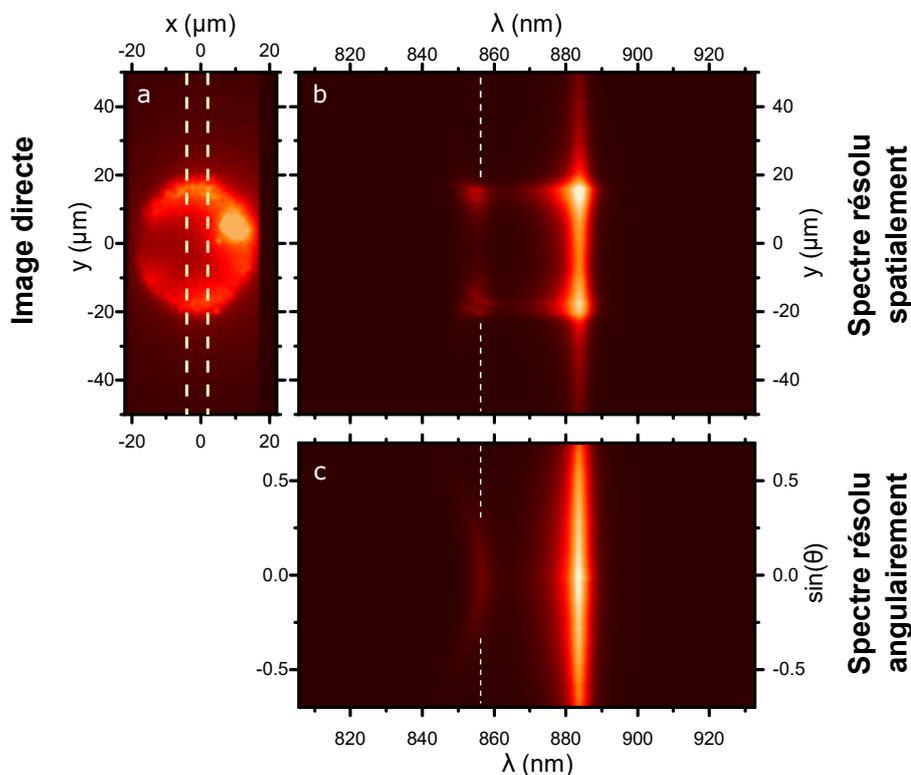


FIGURE 3.20 – Électroluminescence d'une diode de $40 \mu\text{m}$ à 75 K , en mode continu à $V = 3.5 \text{ V}$ et $I = 0.8 \text{ mA}$ (a) Image directe de l'EL. (b) Spectre spatial le long de la bande en pointillé sur l'image (a). (c) Imagerie de Fourier correspondante.

L'émission à 883 nm est non dispersive, elle n'est donc pas affectée par les modes optiques de la structure. Elle s'échappe alors grâce à la faible transparence de la couche d'argent de 40 nm . Malgré cela, dans la direction normale à la surface, cette émission est 14 fois plus intense que l'émission dans le mode Tamm. Cela s'explique par le désaccord $\Delta = \lambda_{PQ} - \lambda_{Tamm} = +26 \text{ nm}$ élevé entre le mode et le pic d'émission

des puits quantiques. Néanmoins, le fait que l'émission à λ_{PQ} soit majoritaire devant toute autre émission malgré la faible transparence de l'argent suggère que les puits quantiques sont convenablement excités par l'injection électrique.

Pour conclure sur cette étude, le procédé de fabrication mis en œuvre permet d'exciter les puits quantiques. Mais ceux-ci se retrouvent inaccordables avec la résonance Tamm, décalée d'environ 50 nm vers les courtes longueurs d'onde par rapport à la position calculée avec les matrices de transfert. Un décalage vers les courtes longueurs d'onde du mode Tamm s'explique par un amincissement des dernières couches du miroir de Bragg, ce qui correspond, en pratique, à une gravure du DBR. La crédibilité de cette hypothèse est renforcée par l'inhomogénéité de l'émission à l'intérieur du disque d'injection, qui peut suggérer une surface rugueuse du fait d'une gravure

3.6.2 Problème de la gravure humide de la couche isolante

Microscopie des ouvertures circulaires

Compte tenu de ces résultats expérimentaux, il convient à présent de déterminer quelles étapes de la fabrication sont responsables de l'écart entre les modes Tamm attendu et observé. Le décalage du mode s'effectuant vers les courtes longueurs d'onde, il faut chercher les étapes susceptibles d'attaquer la surface du DBR. La première espèce à suspecter est la solution BOE gravant la couche de SiO_2 . En effet, comme il a été montré dans la section 3.5.5, l'étape de gravure au BOE faisait apparaître, de manière locale et non systématique, des motifs à la surface du DBR, au fond des ouvertures où la silice est gravée. Ces motifs peuvent être des indices d'une gravure plus globale du semi-conducteur.

Pour identifier la nature de ces motifs, et pour plus généralement trouver des signes de dégradation de la surface du DBR, des analyses au microscope électronique à balayage (MEB) puis au microscope à force atomique ont été conduites dans les ouvertures de silice. Ces études ont été menées en collaboration avec Sylvain Minot et François Bessueille de l'Institut des Sciences Analytiques. L'analyse est effectuée sur un échantillon pour lequel la fabrication a été conduite à terme, mais dans des ouvertures de silice en bord d'échantillon, qui ont été protégées par la résine pendant toute la fabrication postérieure à la gravure. Ainsi, les ouvertures étudiées sont dans le même état qu'après la gravure. De cette manière, on s'affranchit d'éventuels effets dus aux étapes de fabrication suivantes.

La figure 3.21 (a) montre une ouverture de diamètre $\phi = 40 \mu\text{m}$ observée en imagerie optique. Un défaut similaire à ceux observés dans la partie 3.5.5 en figure 3.12 (p.100) est observé. La figure 3.21 (b) montre une image du même disque en imagerie MEB. Le défaut observé se révèle être un trou dans la surface du DBR. La présence de plusieurs contours concentriques indique que la gravure s'étend dans la profondeur du DBR sur plusieurs couches.

En figure 3.21 (c) se trouve une image rapprochée du bord d'une ouverture. Le contour sombre repéré par les deux flèches blanches correspond à la pente de la couche de silice à sa limite. Mais sur la surface découverte du DBR apparaît une

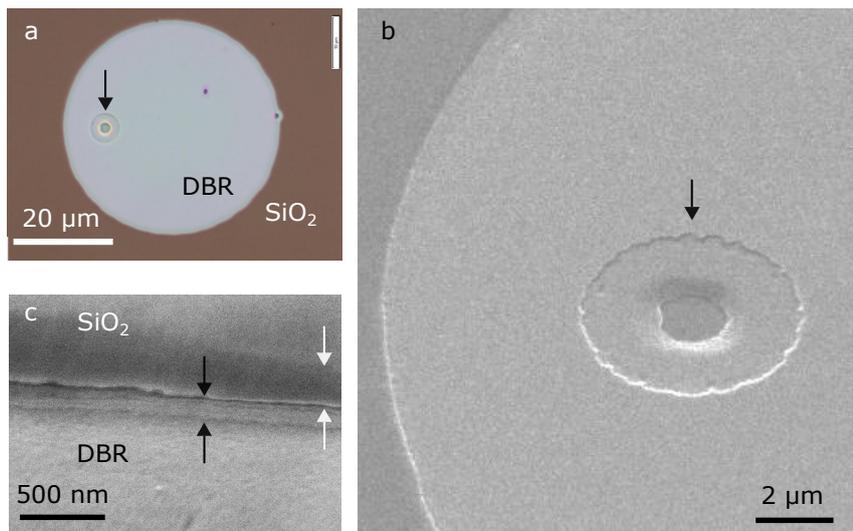


FIGURE 3.21 – (a) Imagerie d'un disque de $40\ \mu\text{m}$ en microscopie optique (b) Le même disque observé en imagerie MEB. (c) Vue rapprochée du bord de gravure de la silice.

zone sombre, juste à côté du bord de la couche de silice. Cette zone est repérée par les deux flèches noires sur l'image. Plusieurs marches se distinguent dans cette zone, ce qui suggère la gravure de l'hétérostructure semi-conductrice. Si cette hypothèse s'avère juste, cela signifie qu'outre les gravures locales observables en microscopie optique, le DBR est par ailleurs gravé de manière assez uniforme, sur plusieurs couches, au fond des ouvertures.

Pour confirmer et quantifier la gravure du DBR, ces marches ont également été observées en microscopie AFM. Les figures 3.22 (a) et (b) montrent respectivement une image AFM d'un bord de disque et un profil d'épaisseur perpendiculaire au bord de la couche de silice. Sur l'image AFM, on distingue clairement des marches après la plus grande marche qui correspond à la silice. Sur le profil, des changements brutaux de pente indiquent la gravure de matériaux différents. La première marche, d'épaisseur $\simeq 78\ \text{nm}$, correspond au flanc de gravure de la couche de SiO_2 .¹ Ensuite se discernent au moins trois marches de pentes différentes, ce qui confirme la gravure de l'hétérostructure semi-conductrice, sur plusieurs couches. L'épaisseur totale gravée est d'environ $46\ \text{nm}$. Qualitativement, cette gravure est cohérente avec le décalage observé du mode Tamm vers les courtes longueurs d'onde. De plus, pour une gravure de $46\ \text{nm}$, la structure aurait été gravée jusqu'au deuxième puits quantique en partant de la surface (voir la structure épitaxiée en figure 3.5 p.92). Il resterait donc quatre puits sur les six initialement présents, ce qui justifie qu'on puisse observer leur photoluminescence malgré la gravure.

1. Cette mesure est en bon accord avec l'épaisseur attendue. Une erreur de calibration lors du dépôt sur cet échantillon avait conduit à une couche plus fine que $100\ \text{nm}$, et estimée à $75\ \text{nm}$.

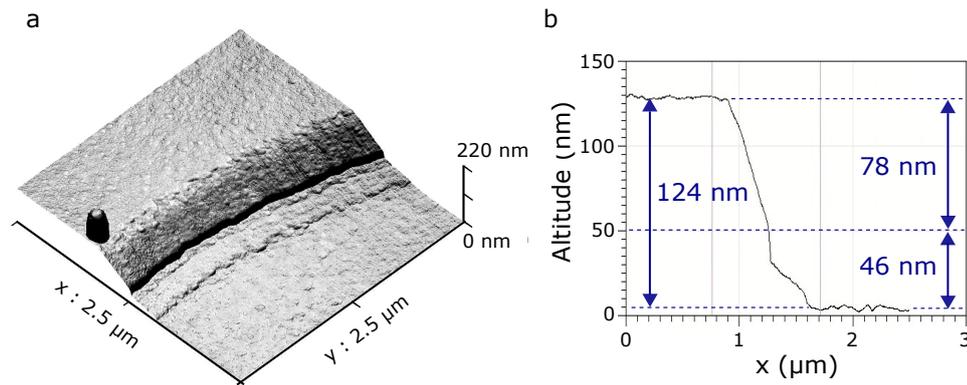


FIGURE 3.22 – (a) Imagerie AFM d'un bord d'ouverture (b) Profil perpendiculaire au bord d'ouverture.

Interprétation

Cette gravure des premières couches du DBR peut sembler surprenante, car la vitesse de gravure du GaAs dans l'acide fluorhydrique est très faible : de l'ordre de $1 \text{ nm} \cdot \text{h}^{-1}$ pour du HF à 10% selon Voncken et al.,¹⁹ et d'environ $16 \text{ nm} \cdot \text{h}^{-1}$ pour du HF à 5%, 10% et 20% selon Smeenk et al..²⁰ Pour comparaison, la teneur en HF de notre solution de BOE est d'environ 6%.

On peut interpréter cette faible vitesse de gravure par une explication simple du mécanisme de gravure du GaAs dans une solution d'acide fluorhydrique sans solution tampon. Le fluor, élément chimique le plus électronégatif, peut se substituer aux atomes d'arsenic dans les liaisons Ga-As à la surface du miroir de Bragg, suivant l'équation bilan :



Le composé GaF_3 étant très peu soluble, il passive la surface et la gravure ne peut avoir lieu de manière significative. En revanche, dans la solution BOE se trouvent des ions ammonium NH_4^+ , issus de la dissociation du fluorure d'ammonium NH_4F . Ces ions NH_4^+ sont eux-mêmes en équilibre avec de l'ammoniac NH_3 , qui possède un fort pouvoir complexant et pourrait solubiliser le fluorure de gallium, permettant alors au fluor de se substituer à d'autres atomes d'arsenic. Ce mécanisme composé d'une substitution de l'arsenic par le fluor puis d'une dissolution par l'ammoniac pourrait expliquer la gravure du GaAs par la solution BOE.

Pour conclure, ces analyses montrent que la définition des ouvertures dans la couche isolante ne peut se faire via une gravure au BOE. En effet, la sensibilité du mode Tamm aux épaisseurs des dernières couches du DBR rend inadaptée toute méthode de fabrication qui pourrait graver quelques nanomètres de semiconducteur en surface. Une gravure dans une simple solution d'acide fluorhydrique pourrait être envisagée. Mais sans solution tampon, la gravure de motifs micrométriques s'avère beaucoup plus difficile, car la gravure de la silice n'est pas contrôlée. De cette analyse sera tirée une conclusion principale : pour la structuration spatiale d'un mode Tamm, il est fondamental de s'assurer que la méthode utilisée ne dégrade pas la surface du

DBR, même sur quelques nanomètres.

3.7 Approche simplifiée et LED Tamm de grande surface

Après l'échec de cette première méthode de fabrication et la mise en évidence de la gravure du DBR par la solution BOE, nous avons décidé d'évaluer la possibilité de fabriquer une LED Tamm en mettant en œuvre un processus simplifié sans microstructuration. Ce processus consiste d'abord à déposer une couche d'argent sur un petit morceau du DBR dopé. Ensuite, des diodes sont isolées en utilisant une pointe en tungstène montée sur une platine micrométrique. En exerçant une pression sur la surface de l'argent et en déplaçant la pointe, l'argent est gravé sur une fine bande de la largeur de la pointe. En arrachant l'argent le long d'un contour fermé, on isole de manière simple une diode à structure Tamm. La pose d'un fil de contact à l'intérieur du contour permet ensuite de faire passer un courant électrique à travers la diode créée, entre le fil et la face inférieure de l'échantillon. Une image d'une de ces diodes se trouve en figure 3.23 (a).

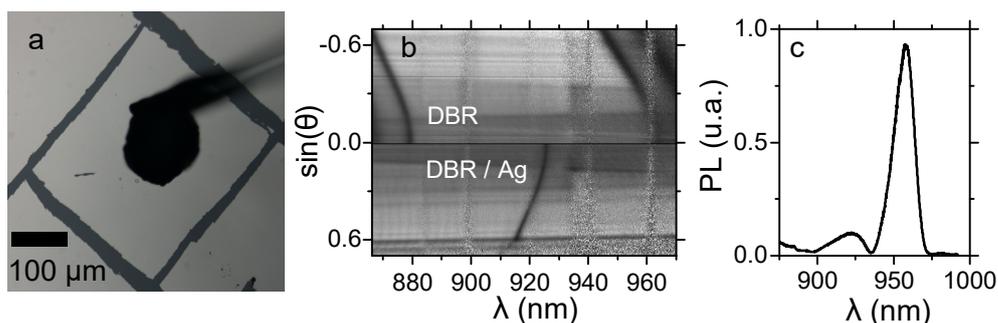


FIGURE 3.23 – (a) Diode de grande surface gravée et contactée par un fil d'aluminium. (b) Réflectométrie effectuée à côté d'une diode. Haut : DBR. Bas : argent sur DBR. (c) Spectre de photoluminescence depuis le DBR à température ambiante.

Cette méthode présente deux principaux avantages. D'abord, elle est simple et rapide à mettre en œuvre car elle ne demande pas de microfabrication en salle blanche. Mais surtout, elle permet de découpler l'étude électro-optique du mode Tamm dans la structure dopée de tout procédé de fabrication, si ce n'est le dépôt d'argent. C'est donc une configuration idéale pour une démonstration de principe. L'inconvénient est la grande taille des diodes ainsi dessinées : il est difficile de définir des diodes de surface plus petite que $200 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m} = 4 \times 10^{-4} \text{cm}^2$. Ces diodes seront donc dénommées "LED de grande surface".

La figure 3.23 (b) présente deux mesures de réflectométrie sur le DBR sans et avec argent, proche d'une diode, à 75 K. La résonance Tamm se situe proche du milieu de la bande interdite du DBR. À $\theta = 0$, le mode Tamm se situe à $\lambda_T = 925.8 \text{nm}$. Sa largeur à mi-hauteur est $\Delta\lambda = 2.4 \text{nm}$, ce qui correspond à un facteur de qualité $Q \simeq 390$.

En figure 3.23 (c) se trouve une mesure de photoluminescence effectuée sur le DBR sans argent, à température ambiante. Le maximum de l'émission se situe vers 955 nm. Il faut donc refroidir l'échantillon pour amener la luminescence des puits quantiques à plus basse longueur d'onde et réaliser l'accord avec le mode Tamm.

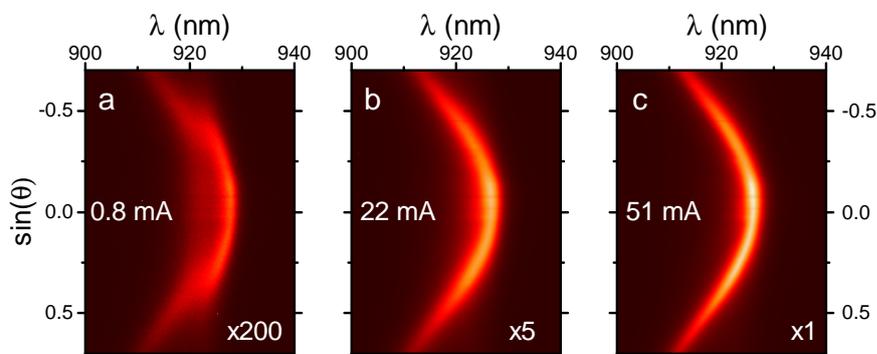


FIGURE 3.24 – EL en régime impulsionnel. $(V, i) = (1.6 \text{ V}, 0.8 \text{ mA})$ (a) $(4.3 \text{ V}, 22 \text{ mA})$ (b) et $(8.3 \text{ V}, 51 \text{ mA})$ (c)

Des mesures d'électroluminescence en imagerie de Fourier sont présentées en figure 3.24. La diode est excitée en mode impulsionnel, sur une durée $\tau = 100 \text{ ns}$ avec une période de $100 \mu\text{s}$. Le courant est mesuré à l'aide d'une résistance de 100Ω en série avec la diode. À $T \simeq 175 \text{ K}$, l'émission s'effectue majoritairement dans la résonance Tamm : la structure est accordée. Pour une injection faible (image (a)), on observe un anticroisement entre les dispersions de l'exciton et de la résonance Tamm. Les PQ et le mode Tamm sont donc en régime de couplage fort. C'est un signe d'une forte interaction entre le mode et les PQ. Si ce régime a déjà été observé et caractérisé sur les modes Tamm optiques, ce résultat est la première observation de polaritons Tamm-exciton en injection électrique.

À plus forte excitation (images (b) et (c)), le régime de couplage fort est brisé et la dispersion de l'émission correspond à la parabole Tamm.²⁴ La disparition des polaritons est encourageante quant à la possibilité d'obtenir un effet laser. En effet, il faut que le niveau d'énergie haut des PQ soit suffisamment peuplé pour que l'absorption diminue significativement et que le couplage fort disparaisse, ce qui revient à être proche du seuil de transparence des PQ.

La figure 3.25 montre deux images de la diode précédemment testée, éclairée par une lampe sur la partie (a) et en émission sur la partie (b). L'image d'émission montre que lorsque le mode optique est accordé avec les PQ, l'essentiel de l'électroluminescence détectée est émise depuis l'argent, et de manière très homogène.

En conclusion, ces résultats démontrent la possibilité de réaliser une LED résonnante avec un mode Tamm. Le prix à payer pour cette démonstration de principe était l'abandon de la micro-structuration, pour s'assurer de ne pas affecter la surface du miroir de Bragg. Le défi consiste maintenant à élaborer un nouveau procédé de microfabrication permettant d'obtenir le même résultat sur une diode Tamm micrométrique, suivant la structure cible définie dans la section 3.2 en page 87. C'est

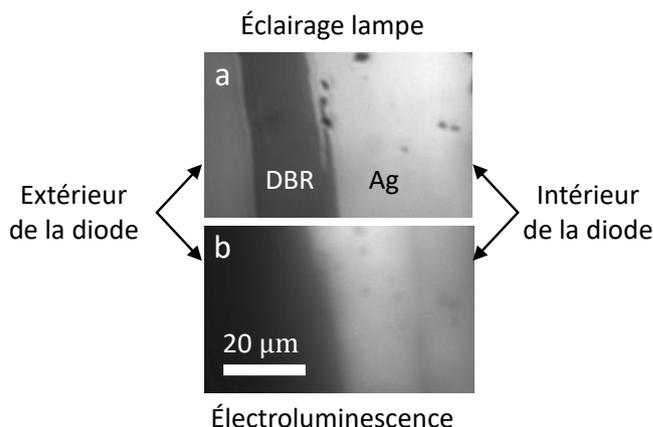


FIGURE 3.25 – LED de grande surface (a) éclairée par une lampe (b) traversée par 8 mA à 5.3 V, à 180 K

l'objet du chapitre suivant.

3.8 Conclusion du chapitre

Un avantage des sources de lumières à mode Tamm est que la partie métallique, qui est en contact avec le DBR et qui crée la résonance Tamm, peut également servir d'électrode pour exciter électriquement la structure, et ceci sans effectuer de gravure de l'hétérostructure semi-conductrice. Nous avons décrit dans ce chapitre un premier développement de sources Tamm à injection électrique utilisant ce principe. Ce travail a démarré par la définition d'une structure cible simple permettant cette injection. Cette structure est d'abord caractérisée par le dopage du miroir de Bragg (DBR) et la formation d'une jonction p-i-n autour des puits quantiques constituant la zone active. Ensuite, une micro-structuration de la surface a été définie, pour apporter les porteurs de charge au niveau de la face supérieure du DBR.

Un premier procédé de fabrication a été décrit et mis en œuvre pour réaliser cette structure cible. Les tests effectués sur les premiers composants fabriqués montrent que cette méthode permet d'exciter électriquement les puits quantiques. En revanche, un mode Tamm a été observé, mais très fortement décalé vers les courtes longueurs d'onde par rapport aux simulations préliminaires. Par conséquent, l'accord entre le mode Tamm et le milieu émetteur n'a pas pu être atteint, rendant impossible une excitation correcte du mode Tamm.

Une analyse en microscopie MEB et AFM des échantillons fabriqués a montré que l'étape de définition de la couche isolante de silice, à l'aide d'une solution tamponnée d'acide fluorhydrique, grave la surface du DBR sur plusieurs dizaines de nanomètres. Une telle gravure est incompatible avec le contrôle de la résonance Tamm, qui est très sensible à la composition et aux épaisseurs des dernières couches du DBR, à l'interface avec le métal. Par ailleurs, cette gravure est cohérente avec le décalage entre les modes Tamm observé et simulé.

Avant de définir un nouveau procédé de fabrication, une méthode alternative et

simplifiée a été mise en œuvre pour réaliser l'excitation électrique du mode Tamm. Cette méthode consiste à définir des diodes Tamm de grande surface en déposant une couche d'argent uniformément sur la surface du DBR dopé, puis en la gravant avec une pointe en tungstène placée sur un système de micro-contrôle. Cette méthode permet l'injection électrique de la structure Tamm sans risquer de dégrader la surface du DBR par une micro-structuration effectuée en salle blanche. De bons résultats ont été obtenus, avec la première excitation électrique d'un mode Tamm accordé avec le milieu émetteur, à $T = 175$ K.

La conclusion globale de cette étude est qu'une attention toute particulière doit être portée sur l'état de surface du DBR au cours des différentes étapes de fabrication. Le chapitre suivant consiste donc à définir un nouveau procédé de fabrication de diodes Tamm micrométriques. Ce procédé devra être le plus neutre possible pour la surface du DBR, afin de ne pas dégrader le mode Tamm.

Références

- ¹C. Symonds, *Nouvelles sources laser hybrides métal/semiconducteur*, Agence nationale de la recherche, <https://anr.fr/Projet-ANR-13-BS10-0004>.
- ²M. Kaliteevski et al., “Tamm Plasmon-Polaritons : Possible Electromagnetic States at the Interface of a Metal and a Dielectric Bragg Mirror”, *Physical Review B* **76**, 165415 (2007).
- ³C. Symonds et al., “Emission of Tamm Plasmon/Exciton Polaritons”, *Applied Physics Letters* **95**, 151114 (2009).
- ⁴Y. P. Varshni, “Temperature Dependence of the Energy Gap in Semiconductors”, *Physica* **34**, 149-154 (1967).
- ⁵K. Tai et al., “Drastic Reduction of Series Resistance in Doped Semiconductor Distributed Bragg Reflectors for Surface-emitting Lasers”, *Applied Physics Letters* **56**, 2496-2498 (1990).
- ⁶X. Wang et al., “Polarization-Stabilized Tunable VCSEL with Internal-Cavity Sub-Wavelength Grating”, *Optics Express* **27**, 35499-35511 (2019).
- ⁷D. Wen et al., “VCSELs with On-Facet Metasurfaces for Polarization State Generation and Detection”, *Advanced Optical Materials* **9**, 2001780 (2021).
- ⁸H. C. Casey, D. D. Sell et K. W. Wecht, “Concentration Dependence of the Absorption Coefficient for n- and p-Type GaAs between 1.3 and 1.6 eV”, *Journal of Applied Physics* **46**, 250-257 (1975).
- ⁹G. B. Lush et al., “Concentration-dependent Optical-absorption Coefficient in N-type GaAs”, *Journal of Applied Physics* **74**, 4694-4702 (1993).
- ¹⁰Y.-K. Su, J. Zhong et S.-J. Chang, “A Novel Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser with Semiconductor/Superlattice Distributed Bragg Reflectors”, *IEEE Photonics Technology Letters* **14**, 1388-1390 (2002).
- ¹¹E. Bergmann, “Dépôts sous vide par procédés plasma - Principes”, *Techniques de l'ingénieur Traitements des métaux base documentaire : TIP553WEB*. [10.51257/a-v2-m1663](https://www.techniques-ingenieur.fr/techniques-ingenieur/traitements-des-metallurgie/traitements-des-metallurgie/traitements-des-metallurgie/10.51257/a-v2-m1663) (2014).
- ¹²P.-Y. Lesaichere et al., “Characterization and Simulation of PECVD and APCVD Oxide Step Coverage”, in *Seventh International IEEE Conference on VLSI Multilevel Interconnection* (juin 1990), p. 159-165.
- ¹³J. Y.-m. Lee, M. M. Dange et K. Sooriakumar, “A Novel Lift-off Process Using Low-Temperature PECVD Silicon Nitride for the Fabrication of Self-Aligned Gate GaAs MESFETs and InP MISFETs”, *Microelectronic Engineering* **18**, 215-223 (1992).
- ¹⁴J. H. Lee et al., “Characteristic of SiO₂ Films Deposited by Using Low-Temperature PECVD with TEOS/N₂/O₂”, *Journal of the Korean Physical Society* **46**, 890 (2005).

-
- ¹⁵Merck Performance Materials GmbH, *Technical Data Sheet AZ 5214 E Photoresist*, microchemicals.com, (2016) https://www.microchemicals.com/micro/tds_az_5214e_photoresist.pdf.
- ¹⁶M. Zhang et P. Watson, “Reactive Ion Etching Selectivity of Si/SiO₂ : Comparing of Two Fluorocarbon Gases CHF₃ and CF₄”, 6 (2019).
- ¹⁷MicroChemicals, *Wet-Chemical Etching of Silicon and SiO₂*, microchemicals.com, (2018) https://www.microchemicals.com/technical_information/silicon_etching.pdf.
- ¹⁸K. Williams, K. Gupta et M. Wasilik, “Etch Rates for Micromachining Processing- Part II”, *Journal of Microelectromechanical Systems* **12**, 761-778 (2003).
- ¹⁹M. Voncken et al., “Multiple Release Layer Study of the Intrinsic Lateral Etch Rate of the Epitaxial Lift-off Process”, *Applied Physics A* **79**, 1801-1807 (2004).
- ²⁰N. J. Smeenk et al., “Arsenic Formation on GaAs during Etching in HF Solutions : Relevance for the Epitaxial Lift-Off Process”, *ECS Journal of Solid State Science and Technology* **2**, P58 (2012).
- ²¹J. T. Gudmundsson, “Physics and Technology of Magnetron Sputtering Discharges”, *Plasma Sources Science and Technology* **29**, 113001 (2020).
- ²²A. Billard et F. Perry, “Pulvérisation cathodique magnétron”, *Techniques de l'ingénieur Traitements des métaux base documentaire : TIP553WEB. 10 . 51257/a-v1-m1654* (2005).
- ²³M. F. Millea, M. McColl et C. A. Mead, “Schottky Barriers on GaAs”, *Physical Review* **177**, 1164-1172 (1969).
- ²⁴C. Symonds et al., “Lasing in a Hybrid GaAs/Silver Tamm Structure”, *Applied Physics Letters* **100**, 121122 (2012).

Chapitre 4

Source Tamm à injection électrique : fabrication adaptée aux modes de surface

Il a été montré dans le chapitre précédent que la première méthode de micro-structuration proposée pour les sources Tamm à injection électrique n'est pas viable. Cette méthode utilisait des procédés classiquement utilisés dans la microfabrication des semi-conducteurs, comme la gravure d'une couche d'oxyde avec une solution BOE. Or nous avons vu que cette étape de gravure était responsable d'une attaque de la surface du DBR sur plusieurs dizaines de nanomètres. Dans la fabrication des sources de lumière à cavité verticale comme les VCSEL, une telle gravure n'est pas forcément problématique, car le mode optique est confiné dans la cavité loin de la surface, et n'est pas sensible à une gravure de quelques nanomètres.

Le cas des modes Tamm est différent. De par son caractère surfacique, le mode Tamm est très dépendant des épaisseurs et de l'état des dernières couches du miroir de Bragg à la surface des échantillons. Il est donc primordial de développer une fabrication qui tient compte de cette sensibilité à la surface. Rappelons-le, les structures Tamm sont a priori très bien adaptées à l'injection électrique, grâce à la possibilité d'utiliser le métal pour créer le mode optique et pour y injecter directement les porteurs de charge. Mais de cet avantage structurel découle aussi une difficulté technologique : il faut pouvoir micro-structurer la surface sans dégrader la surface du DBR et par conséquent le mode Tamm. Ce chapitre décrit donc une méthode de développement et un procédé de fabrication de composants utilisant un mode optique de surface résonant.

4.1 Accord mode Tamm - émetteurs

Dans la fabrication de composants VCSEL ou de LED à mode de cavité résonant (RCLED) usuels, il est fréquent de procéder à une cartographie de la réflectivité et de la photoluminescence de l'hétérostructure semi-conductrice après son épitaxie, pour évaluer l'accord entre le mode optique et la luminescence des émet-

teurs. Cette mesure préliminaire permet de choisir sur quel morceau du substrat conduire la microfabrication, en fonction de l'accord souhaité. Cette cartographie peut être conduite directement après l'épitaxie, car le mode optique d'intérêt est un mode de cavité supporté par la seule hétérostructure semi-conductrice.

Dans le cas des structures Tamm, la mesure de réflectivité de l'hétérostructure n'est pas toujours suffisante pour estimer correctement la position spectrale de la résonance Tamm. Si la structure exacte du miroir de Bragg, et surtout de ses dernières couches en surface, est très précisément connue, alors la simulation permet de prévoir la position du mode Tamm. Mais en pratique, les propriétés du mode Tamm étant très dépendantes des dernières couches du miroir de Bragg, il suffit de légères variations de ces dernières, non mesurables par la réflectométrie, pour altérer significativement la position du mode.

Pour illustrer ce point, la simulation en figure 4.1 (a) montre la réflectivité d'un DBR simplifié, terminé par une couche $3\lambda_B/4$ d' $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ complète, ou raccourcie d'une longueur $l = 5$ nm. La bande interdite ne subit presque aucune modification en enlevant 5 nm à la dernière couche. En revanche, le mode Tamm obtenu en ajoutant 50 nm d'argent à la surface du DBR (figure 4.1 (b)) est significativement translaté d'environ 6 nm vers les courtes longueurs d'onde. En faisant varier la longueur l , on observe que le milieu de la bande interdite du DBR bouge très peu avec l . En revanche, le mode Tamm se déplace de 1.4 nm par nanomètre retiré à la dernière couche du DBR (figure 4.1 (c)). Cette valeur, bien que dépendante de la composition du DBR en surface, est une bonne estimation de la sensibilité du mode Tamm avec les épaisseurs des dernières couches.

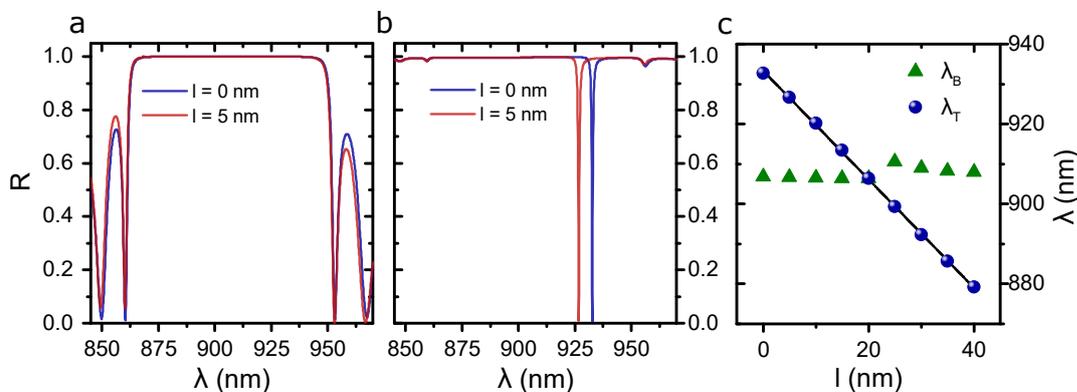


FIGURE 4.1 – Simulation du raccourcissement de la dernière couche du DBR. (a) (resp. (b)) DBR (resp. DBR + argent) avec une couche complète ou raccourcie de $l = 5$ nm. (c) Variation du mode Tamm à λ_T et du milieu λ_B de la bande interdite du DBR avec le raccourcissement l de la dernière couche du DBR. La droite noire est un ajustement linéaire des valeurs λ_T simulés.

Expérimentalement, pour déterminer la position du mode Tamm, un dépôt d'argent par pulvérisation est effectué sur le DBR, sur lequel est posé un masque métallique percé de petites ouvertures circulaires. Les disques d'argent millimétriques ainsi déposés permettent, par photoluminescence ou réflectométrie, de mesurer le

mode Tamm et son accord avec les émetteurs. La photoluminescence des puits et la bande interdite peuvent toujours être évaluées en dehors des disques d'argent. Ces disques sont suffisamment petits pour que l'essentiel de la surface de l'échantillon reste disponible pour la micro-structuration.

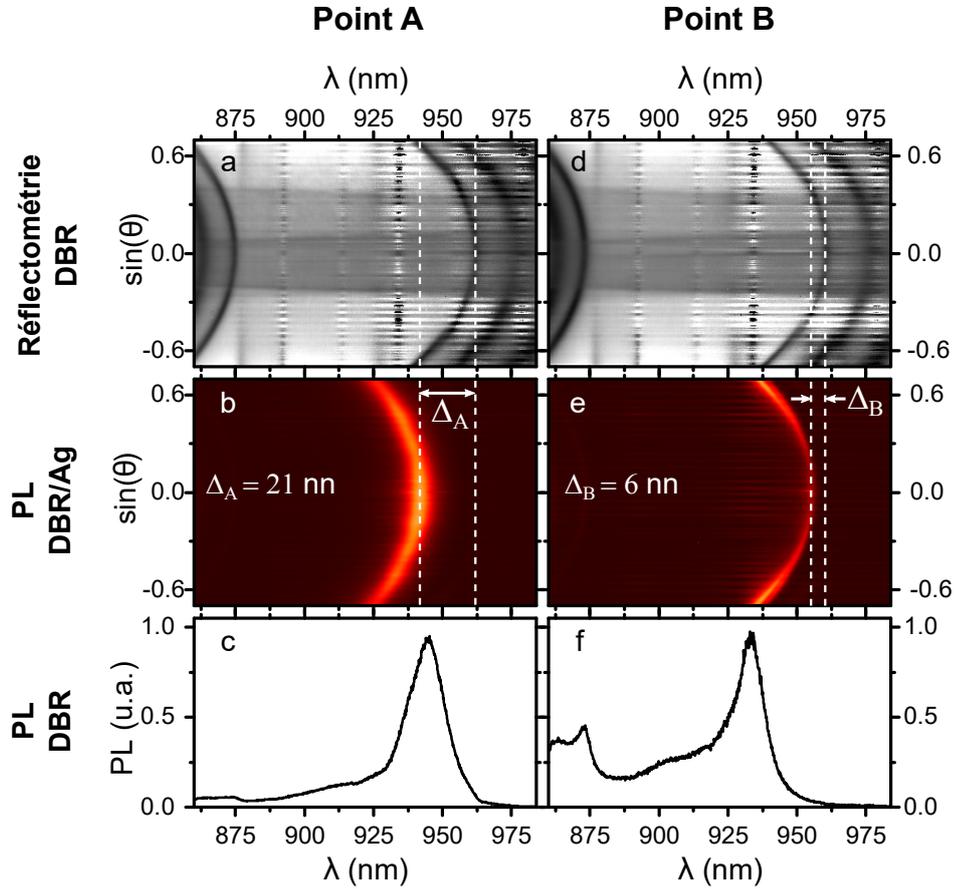


FIGURE 4.2 – (a)(b)(c) (respectivement (d)(e)(f)) : Réflectométrie du DBR, PL sur DBR/Ag et PL sur DBR au point A (resp. point B).

La figure 4.2 présente la réflectométrie et la PL du DBR ainsi que la PL du système DBR/Ag en deux points A et B du substrat, espacés d'environ $\simeq 1.5$ cm. Les mesures sur DBR sont effectuées juste à côté des points d'argent, de manière à pouvoir négliger la dérive de la bande interdite entre la mesure sur argent et la mesure sur DBR. Les positions des modes sont indiquées dans la table 4.1. La bande interdite est quasiment la même entre les deux points de mesure. Pourtant l'écart Δ entre le mode Tamm et le bord haut de la bande interdite est très différent : 21 nm pour le point A et 6 nm pour le point B. Il y a donc entre les deux points une différence de structure du DBR, qui détermine la position du mode Tamm, mais non mesurable par la seule réflectométrie du DBR. Ce n'est donc qu'une fois de l'argent déposé que l'on peut déterminer par la mesure la position du mode Tamm et son accord avec la luminescence des émetteurs. Cela justifie notre nouvelle méthode de cartographie "spécifique" du mode Tamm, par dépôt local d'argent, avant de

démarrer une microfabrication.

Point	A	B
Bords de bande interdite $\lambda_L ; \lambda_H$	876 ; 964	874 ; 962
Mode Tamm λ_T	943	956
$\Delta = \lambda_H - \lambda_T$	21	6
Max émission des puits λ_{PQ}	945	933

TABLE 4.1 – Position des modes optiques aux points de mesure A et B. Toutes les valeurs sont en nm.

4.2 Méthodologie d’élaboration du procédé de fabrication

La méthode précédemment décrite permet de déterminer la position “vraie” du mode Tamm, c’est-à-dire sa position dans la configuration idéale où la surface du DBR n’a pas encore pu être dégradée par des étapes de fabrication. Il a été vu dans le chapitre précédent que notre micro-structuration, notamment l’attaque au BOE, dégradait le DBR et donc le mode Tamm. L’enjeu est donc de développer une nouvelle fabrication qui laisse intacte la surface du DBR.

Pour cela, la méthode choisie consiste d’abord à déterminer la position “vraie” du mode, avec un dépôt d’argent sur une partie du morceau choisi. Puis, après chaque nouvelle étape de fabrication qui n’a pas encore été validée, de l’argent est encore déposé sur une partie de l’échantillon, pour contrôler le mode Tamm par réflectométrie ou photoluminescence. Si la position du mode a changé, c’est que l’étape de fabrication a significativement altéré la surface du DBR. L’étape de fabrication doit donc être revue. Si le mode Tamm n’a pas bougé, l’étape peut alors être validée, sous réserve qu’elle respecte d’autres contraintes qui lui sont propres.

C’est en appliquant cette méthode qu’a été développé le procédé de fabrication décrit par la suite. Parfois la vérification du mode optique ne sera pas mentionnée. Mais elle a été effectuée pour chacune des étapes qui sera conservée dans le procédé de fabrication final. Nous verrons qu’au bout du compte, la fabrication adoptée pour les sources électriques à mode Tamm se caractérisera par une protection permanente de la surface utile du DBR, c’est-à-dire la surface du DBR qui sera en contact avec l’argent pour former le mode et par laquelle transiteront les charges. Cette protection sera assurée soit par la résine photosensible, soit par l’argent.

4.3 Structuration de l’isolant par lift-off

4.3.1 Contraintes

Comme la structuration d’une couche de silice par photolithographie puis gravure BOE était responsable d’une attaque du DBR, entraînant une dégradation du

mode optique, il faut définir un procédé alternatif pour structurer une couche isolante. La solution retenue est une structuration par lift-off. Les figures 4.3 (a) et (b) rappellent le principe de la structuration par gravure employée précédemment, et la structuration par lift-off envisagée. Il s'agit donc, comme le montre le schéma inférieur, de définir des disques dans une résine par photolithographie négative, de déposer la couche isolante, puis de retirer la résine restante et l'isolant déposé dessus. L'avantage de cette technique est que la surface utile du DBR (le fond des ouvertures) est protégée par la résine du début (spin-coating) à la fin (lift-off).

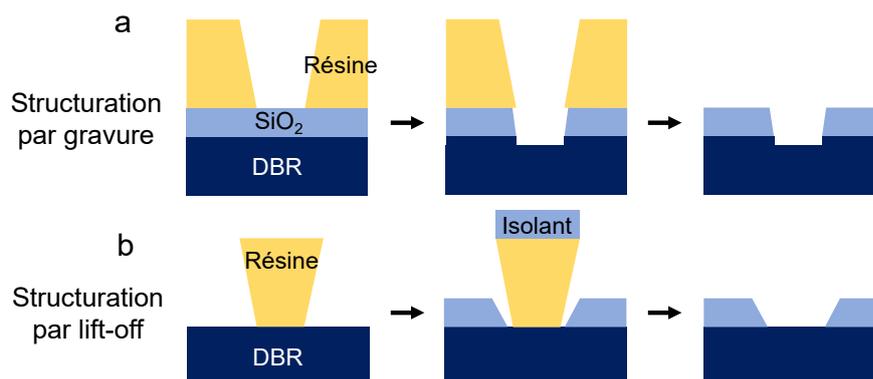


FIGURE 4.3 – Schéma de la structuration d'une couche isolante par gravure ou par lift-off

Néanmoins, plusieurs contraintes doivent être respectées pour le succès de la structuration.

- Le matériau déposé doit être un bon isolant électrique. La couche doit être de bonne qualité et ne pas présenter de trous, par lesquels un courant électrique pourrait circuler entre les pads de contact et le DBR.
- La lithographie de la résine doit être ajustée finement, afin d'avoir des flancs dits "négatifs" comme sur la partie inférieure de la figure 4.3.
- Le dépôt doit être directif, pour éviter que l'oxyde se dépose sur les flancs de résine, ce qui empêcherait ou gênerait le lift-off.
- Le dépôt du matériau doit s'effectuer à basse température, car le lift-off d'une résine chauffée trop fort ou longtemps peut s'avérer difficile voire impossible.
- La méthode de dépôt doit permettre de déposer une couche fine d'épaisseur contrôlée d'environ 100 nm.

La méthode retenue qui satisfait toutes ces contraintes est le lift-off d'une couche d'oxyde d'yttrium Y_2O_3 , déposée par ablation laser pulsé (PLD), après la structuration d'une résine AZ[®] 5214E utilisée en mode négatif.

4.3.2 Photolithographie négative des disques

La première étape consiste à définir par lithographie laser des disques de résine avec une forme adéquate. En l'occurrence, les disques doivent être moins larges à

leur pied qu'à leur sommet pour garantir une discontinuité entre l'oxyde déposé sur le DBR et le sommet du disque (figure 4.3). Cette inclinaison des flancs de résine, tournés vers l'intérieur de la résine, est qualifiée de "négative". Elle est obtenue avec une résine négative ou bien une résine réversible utilisée en mode négatif. Dans notre cas, nous avons utilisé la résine réversible AZ[®] 5214E en mode négatif, comme pour la définition des pads de contact (voir la section 3.5.6 p.100).

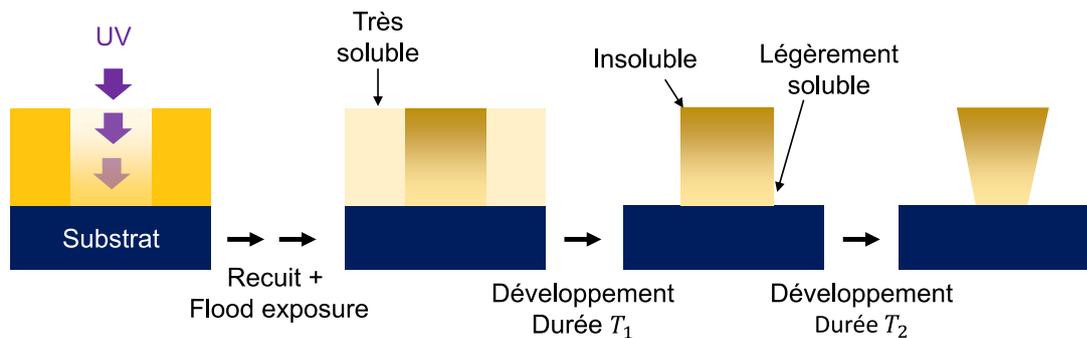


FIGURE 4.4 – Structuration de la résine réversible en mode négatif.

La figure 4.4 schématise le procédé d'inversion. Les résines réversibles contiennent des agents réticulants en plus des composés photoactifs. Lorsqu'ils sont chauffés à une température supérieure à 110 °C et en présence d'agents photoactifs déjà exposés, ces agents réticulants rendent la résine insensible au rayonnement UV et insoluble dans le révélateur. La résine non insolée est ensuite rendue complètement soluble avec une exposition de forte dose ("flood exposure") suivant le recuit d'inversion. Lors de la première insolation, la résine ne reçoit pas la même quantité d'énergie à sa surface que proche du substrat, car le rayonnement UV est atténué au fur et à mesure qu'il traverse l'épaisseur de la résine. Ainsi, proche du substrat, le degré d'inversion de la résine est plus faible. La partie inférieure de la résine sera donc légèrement soluble dans le révélateur, c'est la raison pour laquelle des flancs négatifs peuvent être obtenus. Le processus de développement de la résine peut, en première approche, être séparé en deux étapes. Pendant une durée T_1 , la résine non insolée lors de la première exposition, rendue très soluble par la "flood exposure", est solubilisée par le révélateur. Il faut ensuite poursuivre le développement pendant une durée T_2 pour que la résine premièrement exposée soit légèrement gravée à sa base.

Les paramètres de contrôle de la forme de la résine sont principalement la dose et le temps de développement. Des séries de lithographies ont été effectuées sur des substrats de test en GaAs pour choisir ces paramètres. Les paramètres d'étalement de la résine, de recuit et d'exposition post-recuit sont fixés et sont identiques à ceux décrits dans les tables 3.1 (p.95) et 3.2 (p.100) pour le process de lithographie laser.

La dose est contrôlée en modifiant le paramètre r de durée relative d'impulsion (en %) dans le logiciel contrôlant l'exposition. La puissance du laser est fixée à $P_{laser} = 8 \text{ mW}$, avec l'atténuation de transmission $\simeq 20\%$. Quant à la durée de développement, dans notre cas, il est plus pertinent de s'intéresser au temps T_2 correspondant au temps d'attaque des flancs des disques, à partir du moment où

l'essentiel de la résine est déjà parti. En effet, en raison de facteurs difficilement contrôlables, comme la régularité de l'agitation pendant le développement ou le vieillissement de la résine, des résultats différents peuvent être obtenus pour une même durée totale de développement. Or il est assez aisé d'estimer visuellement la durée T_1 nécessaire à graver l'essentiel de la résine : il suffit d'observer l'évolution et la disparition des franges d'interférences à la surface de l'échantillon pendant le développement. Les franges disparaissent quand toute la résine à l'extérieur des disques est dissoute, c'est à cet instant qu'il faut démarrer la mesure de la durée de développement "secondaire" T_2 .

Des images de microscopie électronique des disques obtenus sont présentées en figure 4.5. Le paramètre r est varié entre 5% et 25%, pour des durées de développement T_2 de 5 s, 10 s et 15 s. La temps de développement T_1 est d'environ 25 ± 2 s. Le diamètre visé des disques est $\phi_{GDS} = 5 \mu\text{m}$.

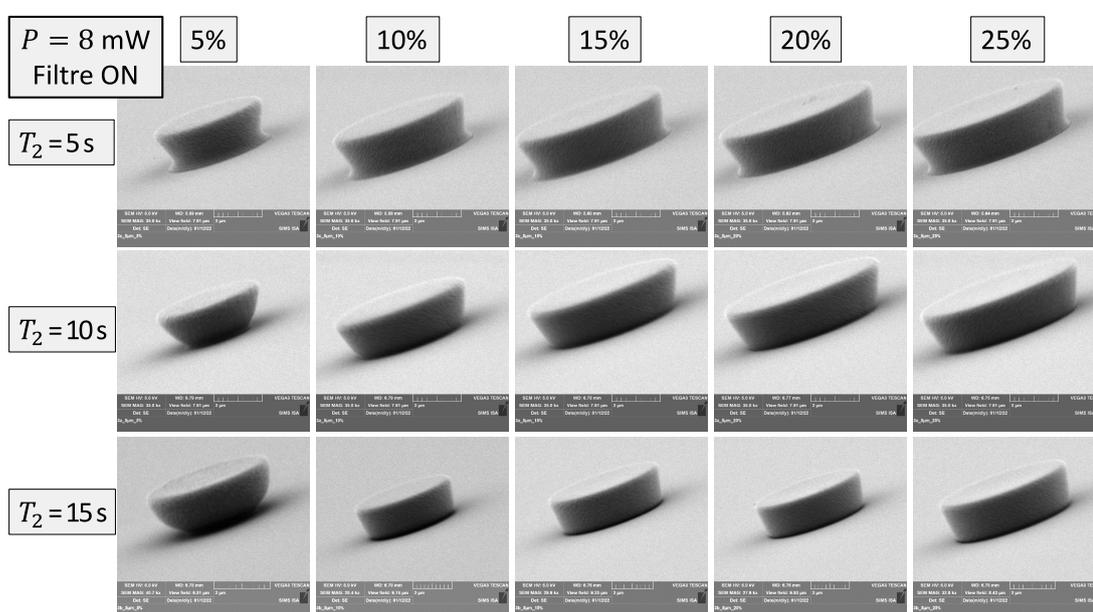


FIGURE 4.5 – Microscopie électronique des disques de résine en fonction de la puissance du laser UV et le temps de développement.

Tous les disques présentent des flancs négatifs. Mais pour le temps de développement $T_2 = 5$ s, les disques présentent à leur base un rebord plus large, presque aussi large que le disque à son sommet. Nous verrons plus tard que ce rebord va gêner le lift-off de la couche d'oxyde, car l'oxyde se déposant dessus sera mal arraché lors du lift-off. Ce temps de développement est donc insuffisant. Pour $T_2 = 10$ et 15 s, ce rebord a disparu. Par ailleurs, d'autres essais avec des temps de développement plus longs ont montré qu'un temps total de 60 s (valeur standard et recommandée dans la documentation de la résine¹) était trop long, car la plupart des disques se décollaient du substrat. C'est la raison pour laquelle nous nous sommes limités à des temps de développement légèrement supérieurs au temps T_1 . À la puissance d'insolation la plus faible ($r = 5\%$), la résine a été largement creusée à la base des disques, allant

jusqu'à présenter une forme de cuvette pour $T_2 = 15$ s. Les disques les plus étroits, de $\phi_{GDS} = 2 \mu\text{m}$ sont d'ailleurs tous partis, pour les trois temps de révélation. La résine est clairement sous-insolée.

Pour $r \geq 10\%$ et $T_2 \geq 10$ s, la forme des disques dépend peu de la puissance. On peut seulement noter un élargissement des disques avec la puissance, sans effet sur l'inclinaison des flancs. Nous choisirons donc une puissance intermédiaire avec $P_{laser} = 8 \text{ mW}$ et $r = 15\%$, avec le filtre d'atténuation. Pour la durée de développement, nous garderons le temps $T_2 = 10$ s, qui donne une bonne forme de résine. Le temps total de développement est donc $T = T_1 + T_2 \simeq 35$ s. C'est suffisamment court pour ne pas risquer un décrochage des disques, qui survient vers $T \simeq 60$ s.

4.3.3 Dépôt d' Y_2O_3 par PLD

Une fois la résine correctement structurée, il faut déposer par dessus une fine couche d'épaisseur $\simeq 100$ nm d'un matériau isolant. Pour rappel, le dépôt doit vérifier les conditions suivantes :

- dépôt directif,
- dépôt sans chauffer l'échantillon,
- bon contrôle de l'épaisseur,
- bonne qualité de la couche pour l'isolation électrique.

Dans le premier procédé de fabrication des sources Tamm électriques, nous utilisons en guise de couche isolante un film de silice déposé par PECVD (voir section 3.5.3, p.95). Les couches déposées par PECVD sont très inadaptées à une structuration par lift-off, car la méthode de dépôt est très peu directive. En effet, un matériau déposé par une méthode non directive telle que la PECVD peut couvrir les flancs des motifs de résine, comme schématisé en figure 4.6, même si les flancs sont négatifs. Cela peut compliquer la réalisation du lift-off, car le solvant accède difficilement à la résine. Mais surtout, le départ de la résine peut laisser un rebord indésirable du matériau déposé au bord de la structuration, comme montré sur le schéma. Or il est nécessaire d'avoir une transition "douce" de l'oxyde au bord des ouvertures, pour assurer une bonne continuité de l'argent ultérieurement déposé, entre l'intérieur et l'extérieur des ouvertures. Pour cette raison, il est donc primordial que le matériau isolant soit déposé de manière directive.

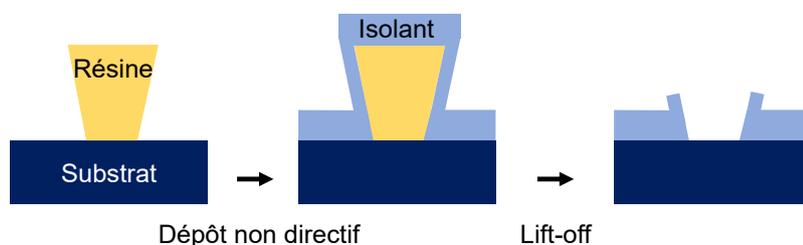


FIGURE 4.6 – Lift-off d'une couche isolante déposée de manière non directive.

L'équipe Matériaux et Nanostructures Photoniques de l'iLM possède une exper-

tise sur les dépôts par ablation laser pulsé, ou PLD pour Pulsed Laser Deposition. L'équipe utilise cette technique notamment pour le dépôt de films d' Y_2O_3 et d' Al_2O_3 dopés par des terres rares pour la conversion de longueur d'onde.² La PLD consiste à focaliser un laser impulsionnel souvent nanoseconde sur une cible, en amenant une énergie supérieure au seuil de vaporisation.³ Un plasma est alors créé à partir des espèces vaporisées, concentré dans un cône perpendiculaire à la cible. Lorsque l'impulsion laser cesse, les espèces du plasma sont propulsées par un effet de détente vers le substrat placé en regard de la cible et peuvent s'y recombinaer.^{4,5} Le dépôt est donc directif. De plus, l'échauffement ayant lieu uniquement au point d'ablation, le substrat reste à température ambiante, ce qui est idéal pour le lift-off.⁶

Les dépôts sont effectués dans le bâti visible en figure 4.7. L'enceinte est pompée jusqu'à une pression inférieure à 10^{-6} mBar. Le laser est un système à excimère KrF émettant à 248 nm. Des impulsions d'environ 20 ns sont émises à une fréquence de 5 Hz. Le faisceau est focalisé sur la cible à l'aide d'une lentille convergente sur une tache de surface $\simeq 2 \text{ mm}^2$. La fluence reçue par la cible est d'environ 3.6 J/cm^2 . Pendant le dépôt, une pression d'oxygène de $P = 10^{-3}$ mBar est maintenue pour diminuer l'énergie cinétique des espèces du plasma et assurer une meilleure qualité des dépôts. La cible est placée sur un support rotatif motorisé afin d'éviter l'usure rapide et les défauts que causeraient une ablation en un seul point. Le substrat est quant à lui placé à 6 cm en face de la cible. Dans ces conditions, le taux de dépôt est d'environ 3.2 nm/min . Ce taux est déterminé à partir d'une mesure d'épaisseur au profilomètre d'un échantillon témoin.

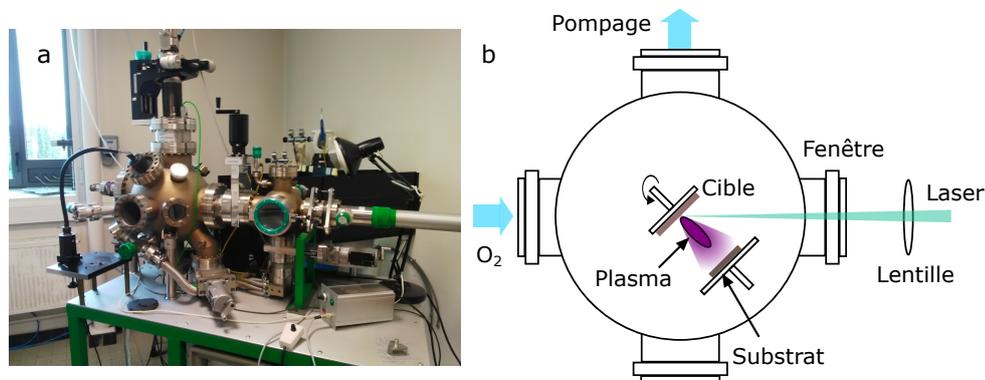


FIGURE 4.7 – (a) Bâti de PLD (b) Schéma de l'intérieur du bâti de PLD.

4.3.4 Lift-off et résultat

Après le dépôt PLD, le lift-off est effectué pour retirer les disques de résine, selon le process décrit dans la table 4.2. Un court passage aux ultrasons est nécessaire, sans quoi la résine ne se retire pas complètement.

Comme c'était attendu, le résultat du lift-off dépend beaucoup de la structuration préalable de la résine. En figure 4.8 (a) et (b) se trouvent des images MEB des échantillons de test dont on a détaillé la lithographie en section 4.3.2, après le lift-off

Acétone	5 min
Acétone et ultrasons	30 s
Acétone	1 min
IPA	1 min

TABLE 4.2 – Procédure de lift-off des disques de résine après le dépôt d' Y_2O_3 . Les trois bains sont à température ambiante.

de l' Y_2O_3 , et pour des temps de développement secondaire de la résine $T_2 = 5$ s et 15 s. 50 nm d'argent ont été déposés après le lift-off, pour éviter que l'oxyde et le substrat GaAs chargent pendant la microscopie électronique, et car cette épaisseur est typique de ce que l'on dépose dans la suite de la fabrication. On évalue ainsi la qualité de la structuration quant à sa fonction, à savoir assurer une continuité entre l'argent sur l'oxyde et au fond des trous.

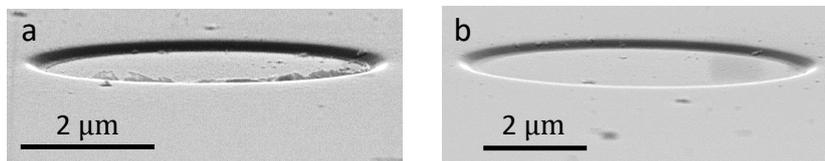


FIGURE 4.8 – Ouvertures après lift-off et dépôt de 50 nm d'argent, pour (a) $T_2 = 5$ s (b) $T_2 = 15$ s.

Pour $T_2 = 5$ s, la limite de l' Y_2O_3 sur le contour du disque est localement arrachée. La continuité du métal n'est donc pas assurée sur tout le contour du disque. Cet arrachement de la couche est dû au rebord présent au pied des disques de résine pour un temps de développement trop court (voir la figure 4.5, p.125). Cette situation est similaire à celle décrite en figure 4.6 en p.126, mais ici c'est la forme de la résine qui occasionne un dépôt du matériau sur ses flancs, et non la directivité du dépôt. Les figures 4.9 (a) et (b) montrent le disque d'injection d'une diode Tamm, fabriquée sur un morceau du miroir de Bragg. Les défauts présents dans l' Y_2O_3 , à l'extérieur du disque, seront discutés dans la section 4.3.5. Pour cet échantillon, le temps de développement était encore plus court ($T_2 \simeq 0$ s) et le résultat du lift-off similaire. L'image (b) est une image d'électroluminescence. On voit que l'émission provient majoritairement du bord arraché de l' Y_2O_3 qui agit comme un élément diffusant. On voit donc qu'en plus de la problématique de la continuité du métal, ce rebord perturbe l'émission de lumière. Cette forme de la limite de la couche d'oxyde n'est donc pas acceptable.

L'image 4.8 (b) montre un disque obtenu avec un temps de développement secondaire $T_2 = 15$ s. Ici la limite de la couche d' Y_2O_3 est bien progressive, et la continuité de l'argent est assurée entre l'intérieur et l'extérieur du disque sur l'intégralité du contour. Ce temps de développement garantit donc une forme adéquate de l'oxyde au bord des ouvertures circulaires.

Pour valider ce procédé de structuration, il convient de vérifier que le mode Tamm n'a pas été affecté. Pour cela, le mode a été mesuré par réflectométrie en deux points

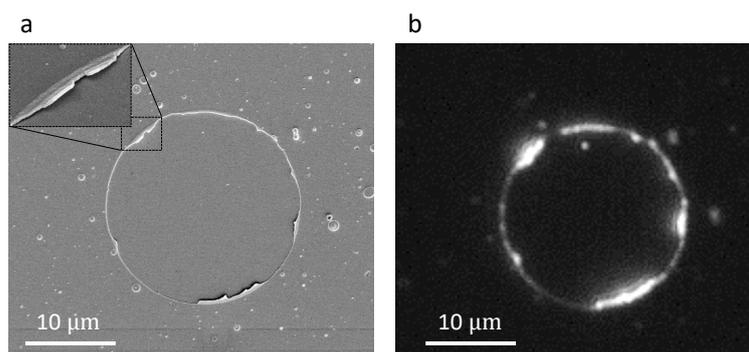


FIGURE 4.9 – (a) Diode Tamm avec un temps de développement trop court $T_2 \simeq 0$ s (b) Électroluminescence de la diode.

d'un même échantillon. Les résultats sont présentés en figure 4.10. La partie haute correspond à un dépôt d'argent de référence sur le DBR avant toute fabrication, la partie basse à un dépôt sur le DBR avec Y_2O_3 structuré. Le mode Tamm est observé dans les deux cas, à des longueurs d'onde très proches $\lambda_{ref} = 964.1$ nm et $\lambda_{lift-off} = 966.2$ nm. L'écart d'environ 2 nm s'explique par la distance entre les deux points de mesure. Ces résultats permettent donc de valider la structuration par lift-off de la couche d' Y_2O_3 déposée par PLD.

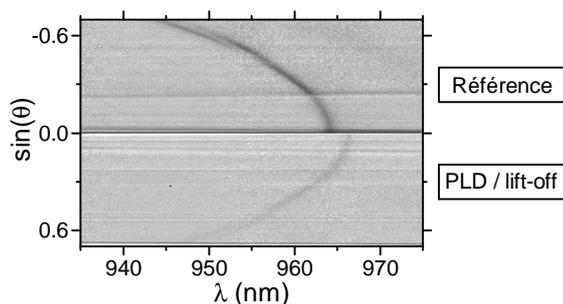


FIGURE 4.10 – Réflectométrie du mode Tamm. Haut : dépôt d'argent de référence sur le DBR avant toute fabrication. Bas : dépôt d'argent mesuré dans les disques définis par lift-off.

4.3.5 Défauts et amélioration des couches PLD

Lors des premiers essais de dépôt par PLD, effectués dans les conditions décrites en section 4.3.3, des couches de qualité moyenne étaient généralement obtenues. Ces couches présentaient des défauts en densité importante comme on peut l'observer sur les figures 4.11 (a) et (b). D'un point de vue purement optique, ces défauts ne sont pas problématiques, car le mode Tamm existe dans les ouvertures où l' Y_2O_3 n'est pas présent. En revanche, ils peuvent avoir un impact sur les caractéristiques isolantes de la couche.

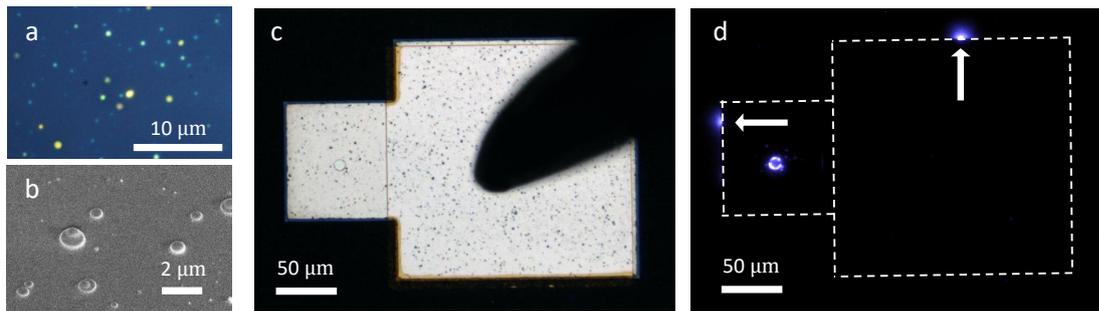


FIGURE 4.11 – (a-b) Microscopie optique (a) et électronique (b) de défauts sur une couche d' Y_2O_3 . (c) Image d'une diode avec une couche d' Y_2O_3 défectueuse (d) EL de la diode à 4.5 V.

L'imagerie MEB montre que ces défauts sont en général des “boules” qui dépassent de la couche. Mais si certaines de ces boules se retirent de la couche d'oxyde, alors il peut en résulter des trous dans cette couche et donc des canaux de conduction parasites entre le DBR et un dépôt métallique (argent ou pad de contact Ti/Au). Les figures 4.11 (c) et (d) montrent l'effet de ces défauts avec une diode Tamm fabriquée avec une couche d' Y_2O_3 défectueuse. L' Y_2O_3 n'est plus directement visible autour du composant, car il est recouvert d'une couche d'AgI. Cette couche est issue de la suite de la fabrication, sa présence sera expliquée plus loin dans la section 4.4.2. L'image (d) est une image d'électroluminescence. On observe que de la lumière est émise par deux points, repérés par des flèches blanches, au bord des pads d'argent et de titane/or. Cela signifie que des porteurs de charge sont injectés sous les pads, par des trous dans la couche d' Y_2O_3 .

Pour améliorer la qualité des couches et s'affranchir de ces défauts, un nouveau protocole a été établi pour le dépôt PLD. La présence de tels défauts est souvent liée à la qualité et à l'état d'usure de la cible utilisée. Nous avons donc décidé d'utiliser, pour chaque dépôt, une zone de la cible qui n'a jamais été précédemment ablatée. Néanmoins, avant le dépôt sur l'échantillon, la cible est pré-ablatée quelques minutes pour se débarrasser d'impuretés éventuellement présentes en surface. Ensuite, le dépôt de 100 nm sur l'échantillon est effectué en deux étapes. Après un premier demi-dépôt de 50 nm, l'échantillon est sorti du bâti, nettoyé par un rinçage abondant à l'eau déionisée, puis séché. Ce nettoyage permet de retirer de la surface les défauts susceptibles de partir et de laisser des trous dans la couche d'oxyde. L'échantillon est ensuite remis dans l'enceinte de PLD pour la deuxième partie du dépôt. La probabilité qu'un défaut du deuxième dépôt laisse un trou au même endroit qu'un trou issu du premier est très faible. De cette manière, les éventuels trous du premier dépôt sont comblés de manière quasi-certaine, et on assure d'avoir une épaisseur isolante d'au moins 50 nm sur toute la surface du DBR.

En figure 4.12 se trouvent des images de deux dépôts d' Y_2O_3 . Le premier dépôt (a) a été effectué en une étape, sans pré-ablation. Le deuxième dépôt (b) a été effectué suivant la procédure précédemment décrite. L'absence de défaut visible sur la deuxième couche montre l'efficacité de la méthode employée.

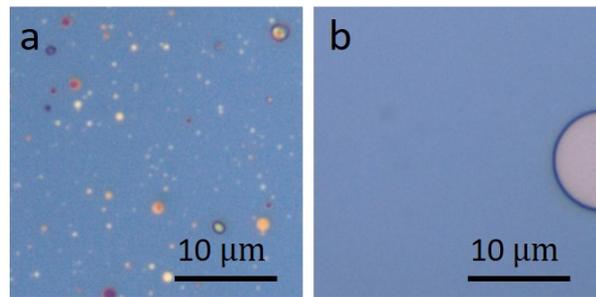


FIGURE 4.12 – Deux dépôts d' Y_2O_3 par PLD. (a) Dépôt avec une cible déjà ablatée, en une étape (b) Dépôt en deux étapes avec une cible “neuve”, avec pré-ablation et nettoyage intermédiaire après le premier dépôt.

4.4 Structuration de l'argent

Dans le procédé de fabrication décrit dans le chapitre 3, un pad d'argent centré sur les ouvertures circulaires était ensuite structuré par lift-off après une étape de lithographie. Il sera d'abord montré dans cette partie que cette méthode n'est pas viable pour la fabrication des sources Tamm. Une méthode de structuration alternative par voie chimique sera ensuite décrite.

4.4.1 Analyse de la structuration par lift-off

La structuration du pad d'argent a été décrite dans la section 3.5.6 (p.99). Pour rappel, une résine est d'abord structurée par lithographie négative pour laisser une ouverture autour des disques précédemment définis. Pour cela, la résine est insolée, recuite, à nouveau insolée (“flood exposure”) puis développée pendant une minute. L'argent est déposé par pulvérisation, puis la résine est retirée. Le procédé est schématisé en figure 4.13.

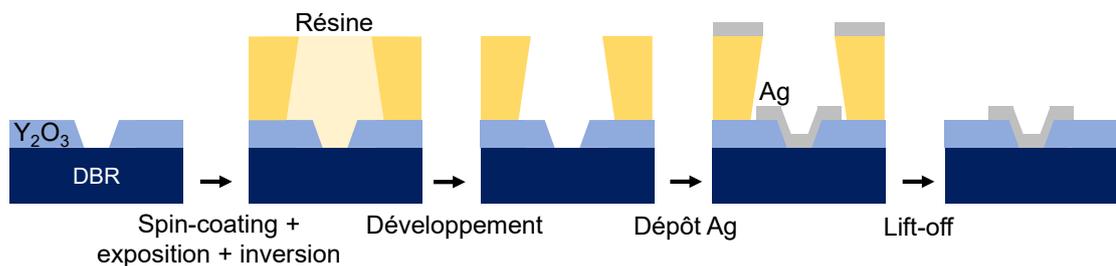


FIGURE 4.13 – Structuration de l'argent par lift-off.

Pour étudier une éventuelle influence de ce procédé sur le DBR et le mode Tamm, nous avons comparé le mode optique dans deux configurations sur un même échantillon. Des ouvertures sont d'abord définies dans une couche d' Y_2O_3 par lift-off. Puis une couche d'argent de 40 nm est déposée sans structuration sur une partie de l'échantillon, l'autre étant cachée lors du dépôt. Le mode Tamm est mesuré pour

référence par réflectométrie dans les ouvertures (figure 4.14 (haut)). Le mode est mesuré à $\lambda_{ref} = 966$ nm.

Un deuxième dépôt est ensuite effectué sur l'échantillon, sur la zone précédemment masquée. Mais cette fois l'argent est structuré par lift-off pour former les carrés centrés sur les disques. L'interface DBR/Ag au fond des ouvertures est à nouveau observée (figure 4.14 (bas)). Plusieurs modes optiques sont visibles. Deux modes, repérés par des flèches blanches, sont assez marqués aux grands angles et peu discernables vers $\theta = 0$. Ces modes sont les modes de bord de bande interdite du DBR. Leur observation découle de lumière incidente parasite qui éclaire le DBR à l'extérieur du pad d'argent. Le mode Tamm est discernable à $\lambda_{lift-off} \simeq 903$ nm.¹ Il est largement décalé vers les courtes longueurs d'onde, de l'autre côté de la bande interdite du DBR. Les deux points de mesure comparés sont légèrement distants, mais la dérive du mode Tamm au sein de la bande interdite est d'environ 10 nm sur tout l'échantillon, ce qui est très insuffisant pour expliquer le décalage de $\simeq 966 - 903 = 63$ nm observé. Par ailleurs, un décalage similaire a été observée sur un autre échantillon fabriqué de la même manière, entre le mode Tamm avant toute fabrication et après structuration de l'argent. D'après les simulations de gravure du DBR présentées en figure 4.1 (p.120), ce décalage du mode correspondrait à une gravure sur une épaisseur de l'ordre de $63 \text{ nm} / 1.4 \sim 45$ nm.

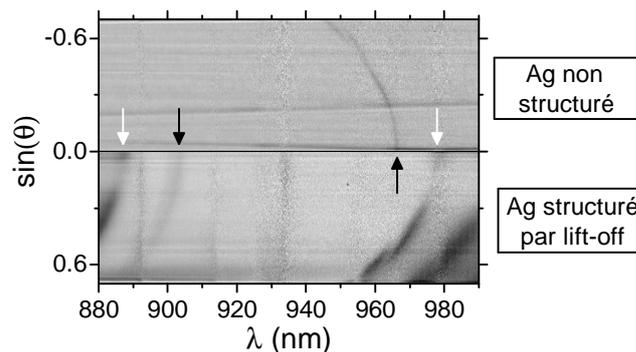


FIGURE 4.14 – Réflectométrie dans le fond des disques d' Y_2O_3 . Haut : Après dépôt d'argent non structuré. Bas : Après dépôt d'argent structuré par lift-off. Les flèches noires repèrent le mode Tamm, les flèches blanches les modes de bord de bande interdite.

On peut donc en conclure que la structuration de l'argent par lift-off suivant ce procédé dégrade la surface du DBR de manière inacceptable pour la fabrication des sources Tamm. C'est donc a priori le révélateur qui, après avoir gravé la résine soluble jusqu'à atteindre le DBR, va également graver ce dernier. Le révélateur utilisé est la solution commerciale AZ[®] 726 MIF. Il s'agit d'une solution d'hydroxyde de tétraméthylammonium (TMAH) à 2.38% dilué dans l'eau, avec des surfactants. Si le TMAH est utilisé pour graver le silicium ou dans certains cas le nitrure de gallium,⁷⁻⁹

1. Ce mode n'est pas visible sur une autre réflectométrie, effectuée sur le pad d'argent en dehors de l'ouverture circulaire, soit sur le système DBR/ Y_2O_3 /Ag. Cela prouve que le mode à 903 nm n'est présent que sous l'interface DBR/Ag.

la gravure du GaAs par le TMAH n'a jamais été reportée, ce qui rend ce résultat assez surprenant.

Avant d'aborder une méthode alternative pour former les pads d'argent, il est utile de repenser à l'étape de structuration de la couche isolante par lift-off, pour évaluer quelles zones du DBR sont possiblement dégradées par une exposition au révélateur. La figure 4.15 (a) montre pour rappel la forme du disque de résine, pour un temps de développement secondaire $T_2 = 15$ s, sur substrat GaAs. Toute la surface du substrat a été exposée au révélateur AZ[®] 726 MIF pendant une durée T_2 , hormis la zone protégée sous le disque, qui se trouve être la zone utile qui sera couverte d'argent. La figure 4.15 (b) montre une image grossie de la surface du GaAs proche de la limite de l' Y_2O_3 , après le lift-off. On discerne un léger fossé dans le GaAs, proche de la limite avec l'oxyde. Ce fossé est vraisemblablement la trace de la gravure du substrat par le révélateur. Il est donc important de limiter le temps de développement au minimum acceptable pour le lift-off, pour graver au minimum la surface du DBR sur l'extérieur des ouvertures.

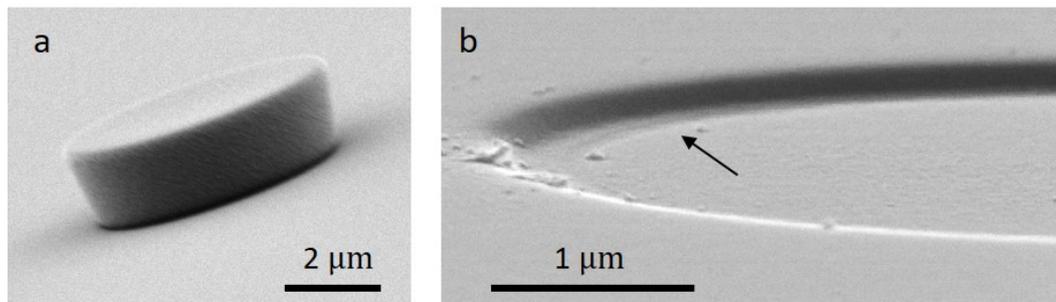


FIGURE 4.15 – (a) Disque de résine développée pendant $T_1 = 24$ s + $T_2 = 15$ s, sur substrat GaAs. (b) Ouverture après lift-off. La flèche indique le fossé visible à la limite de la couche d' Y_2O_3 .

4.4.2 Structuration par voie chimique

Compte tenu de ce résultat, il s'agit à présent de définir une méthode alternative pour structurer l'argent. Une solution pourrait être d'utiliser une autre résine, qui serait développée avec une solution révélatrice sans effet sur la surface de notre hétérostructure. Cela demanderait un travail de développement pour atteindre la maîtrise nécessaire de la résine, mais surtout un effort d'analyse pour vérifier que le révélateur n'a aucune influence sur la surface du DBR. Quand bien même, le procédé ne serait pas forcément applicable à une structure à mode de surface constituée de matériaux différents. Le transfert de nos structures vers d'autres matériaux, par exemple pour atteindre d'autres domaines de longueur d'onde, demanderait le même travail de vérification.

La stratégie que nous avons préférée consiste plutôt à éviter tout risque d'attaque de la surface du substrat par le révélateur. Pour cela, nous choisissons de déposer l'argent partout sur l'échantillon, sans lithographie, puis de le structurer. Le point

clef est le suivant : une fois l'argent déposé sur l'échantillon, la zone critique de notre structure, à savoir l'interface DBR/Ag au fond des trous d' Y_2O_3 , est protégée. Seule une dégradation de la couche d'argent (par vieillissement, oxydation ou attaque chimique) pourrait alors dégrader le mode optique. Mais la surface utile de l'hétérostructure semi-conductrice est protégée jusqu'à la fin de la fabrication, et pendant toute la vie du composant électrique.

Le défi consiste alors à graver localement l'argent, tout en le protégeant efficacement là où on confine le mode Tamm. La méthode employée, schématisée en figure 4.16, est la suivante :

- Dépôt d'argent,
- définition de pads de protection de résine par lithographie positive,
- gravure de l'argent non protégé,
- lift-off.

Plusieurs possibilités existent pour graver l'argent, comme les mélanges $NH_4OH : H_2O_2$ ou $HNO_3 : HCl : H_2O$. Dans notre cas, un mélange d'iodure de potassium KI et de diiode I_2 dans l'eau a été utilisé.¹⁰

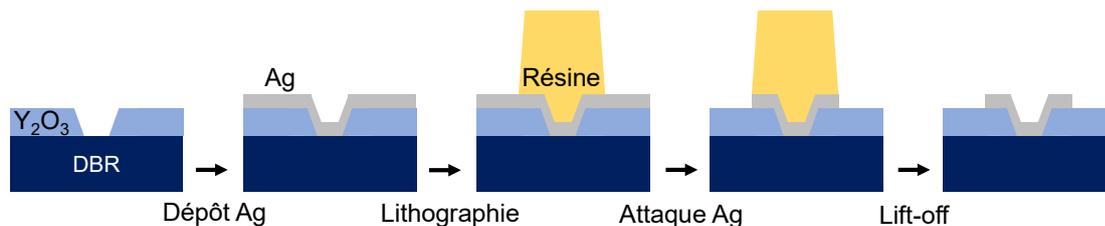


FIGURE 4.16 – Principe de la structuration de l'argent par attaque chimique

La figure 4.17 (a) montre un échantillon Tamm après un dépôt de 45 nm d'argent par pulvérisation puis la définition des pads de protection. Une solution mère est ensuite préparée à partir de 4 g de KI, 1 g de I_2 et 40 mL d'eau distillée. Cette solution attaque beaucoup trop rapidement notre fine couche d'argent, elle est diluée 20 fois pour mieux contrôler l'attaque. L'échantillon est baigné 30 s dans cette solution diluée, puis est rincé à l'eau distillée. La résine est enfin retirée.

Le résultat après lift-off est visible en figure 4.17 (b). L'argent sous le pad de résine a été convenablement protégé. En revanche, une couche très sombre a remplacé l'argent là où il n'était pas protégé. Il s'agit vraisemblablement d'iodure d'argent, qui est un composé très insoluble dans l'eau. Plusieurs nettoyages simples (eau, acétone, IPA et ultrasons) ont été essayés pour se débarrasser de cette couche, sans succès. Mais le problème est mineur, dans la mesure où cette couche est complètement isolante. Cela a été vérifié sur un échantillon test, en appliquant une tension entre deux pads d'argent séparés par de l'iodure d'argent, sur Y_2O_3 . Aucun courant ne passe d'un pad à un autre, donc la couche d'iodure d'argent n'est pas gênante. Cette méthode de structuration de l'argent est donc adaptée à la fabrication des sources Tamm électriques.

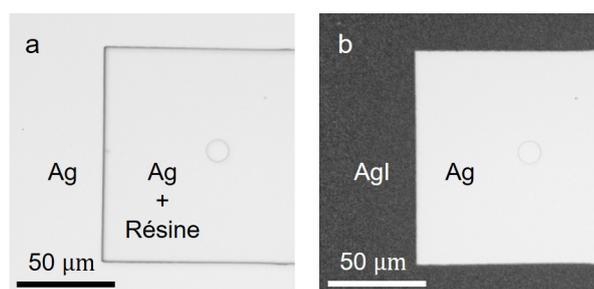


FIGURE 4.17 – (a) Pad de protection sur l'argent. (b) Pad d'argent structuré après attaque, rinçage, puis lift-off de la résine.

4.5 Procédé final

4.5.1 Structuration de l'argent et des pads de contact

La définition des pads de contact Ti/Au n'a pas été changée par rapport à la méthode décrite en section 3.5.6 (p.99). En effet, pour définir ces pads, une lithographie négative est effectuée, et les ouvertures dans la couche d' Y_2O_3 sont protégées par la résine.

En revanche, la configuration titane - or garantit une bonne adhérence sur une couche d'oxyde (SiO_2 ou Y_2O_3). Or, après la structuration de l'argent par voie chimique, l'oxyde est recouvert d'iodure d'argent solide AgI. Ce composé adhère très mal à l'oxyde. Pour cette raison, il est plus pertinent de déposer le pad Ti/Au avant l'argent. Les figures 4.18 (a) et (b) montrent respectivement le pad Ti/Au après sa structuration sur Y_2O_3 , et après le dépôt et la structuration de l'argent. Le pad Ti/Au étant couvert d'argent, et l'or également sensible à la solution KI/I₂, ce pad doit aussi être protégé par la résine lors de l'attaque de l'argent.

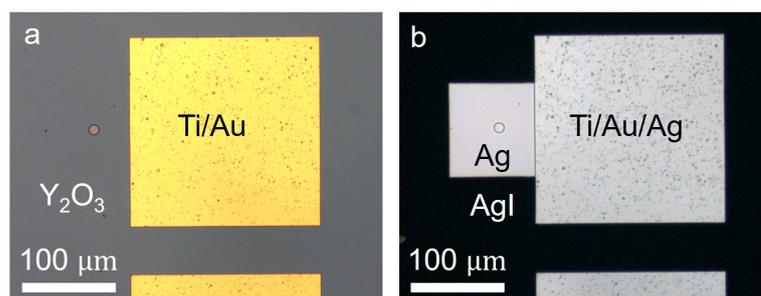


FIGURE 4.18 – (a) Pad de contact Ti/Au sur Y_2O_3 (b) Pads après structuration de l'argent. Structure finale.

4.5.2 Dégradation du métal après usage

À la fin du procédé de structuration, les pads métalliques protégés par la résine ne semblent pas avoir été altérés par la solution KI/I₂. Néanmoins, lors du test élec-

trique des diodes, une dégradation du métal a parfois été observée sur le pad d'argent et sur le pad Ti/Au, également recouvert d'argent. Une image de la dégradation se trouve en figure 4.19.

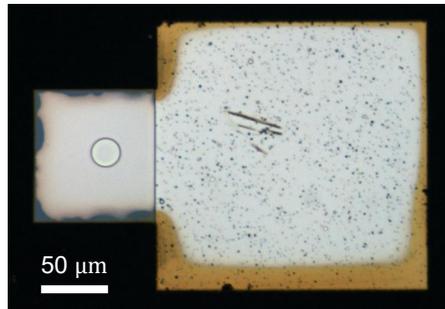


FIGURE 4.19 – Dégradation de l'argent suite à la polarisation de la diode.

Cette dégradation se traduit par un noircissement du pad d'argent et un jaunissement du pad de contact sur leurs côtés. Elle s'explique probablement par une attaque lente de l'argent et de l'or par des résidus de la solution KI/I₂. L'effet apparaissant notamment après un test électrique prolongé, la réaction chimique doit être favorisée par la polarisation de la diode.

L'échantillon présenté avait été rincé abondamment à l'eau après l'attaque, puis la résine avait été retirée par un bain classique d'acétone puis d'IPA, sans nouveau rinçage à l'eau une fois les pads métalliques découverts. Après avoir mis en évidence ce phénomène lors des premiers tests électriques, l'échantillon a de nouveau été rincé abondamment à l'eau DI. Suite à cela, plus de dégradation n'a été observée lors du test des composants. Un rinçage poussé de l'échantillon juste après l'attaque et après le lift-off de la résine semble donc critique pour assurer la longévité des composants fabriqués.

4.5.3 Résumé du procédé de fabrication

Le procédé de fabrication final est schématisé en figure 4.20. Les étapes de fabrication sont les suivantes :

- i. Définition de disques de résine par photolithographie négative.
- ii. Dépôt de 100 nm d'Y₂O₃ par PLD et lift-off de la résine.
- iii. Photolithographie négative pour la formation des pads de contact
- iv. Évaporation thermique de 10 nm de titane et 300 nm d'or, lift-off.
- v. Désoxydation du DBR par plasma micro-onde et dépôt de l'argent par pulvérisation cathodique.
- vi. Définition de pads de protection par photolithographie positive.
- vii. Attaque chimique de l'argent par la solution KI/I₂. Rinçage, lift-off, rinçage.

Comme annoncé dans la section 4.2, une caractéristique de cette séquence de microfabrication est que la surface utile du DBR, à savoir la surface non recouverte d' Y_2O_3 , plus tard recouverte d'argent, est systématiquement protégée. La protection est assurée par la résine pendant la structuration de l'isolant et du pad Ti/Au, et par l'argent une fois celui-ci déposé. Conformément aux conclusions de la section 4.4.1 (p.131), la surface utile n'est jamais en contact avec le révélateur. L'objectif de développer une fabrication tout en préservant l'intégrité du DBR est donc atteint. Il s'agit à présent de caractériser les composants obtenus, ce qui fait l'objet du prochain et dernier chapitre de ce manuscrit.

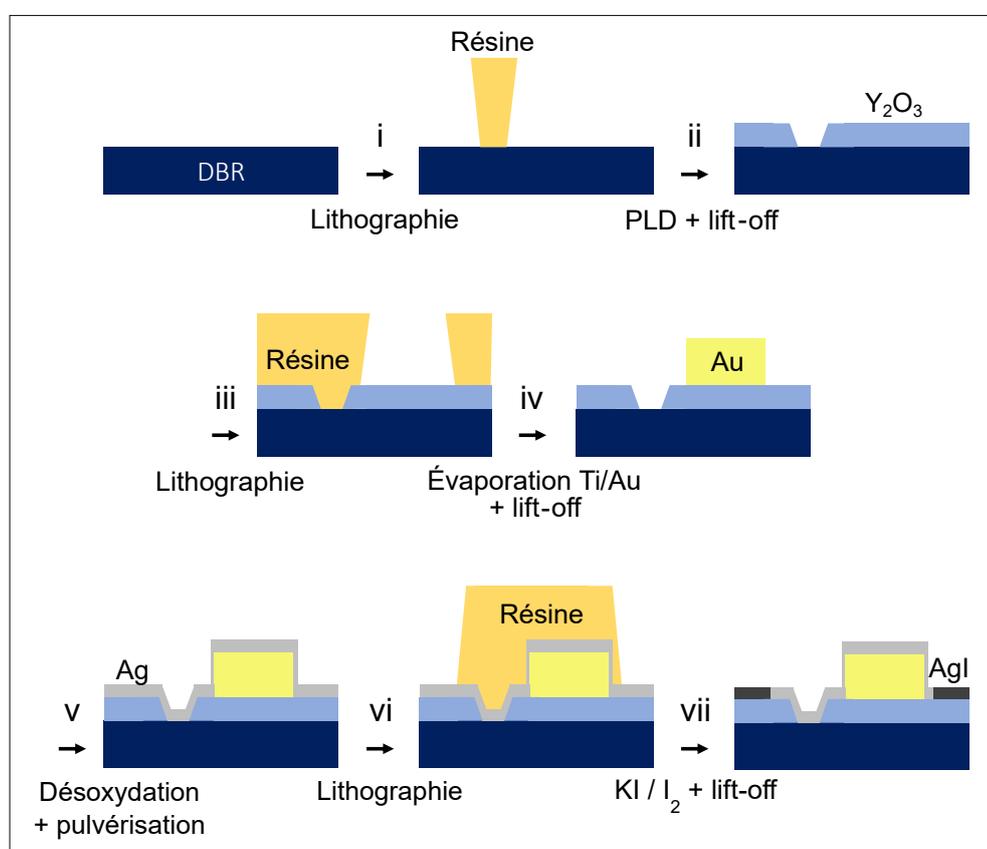


FIGURE 4.20 – Procédé de fabrication final.

4.6 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons démontré que la réalisation de sources de lumière à mode Tamm excitées électriquement nécessite d'adapter les méthodes de fabrication traditionnelles des sources à semi-conducteur. La raison physique à cette particularité est la localisation du mode Tamm au niveau de la surface de la partie semi-conductrice de la structure. De cette localisation découle une très forte sensibilité du mode à la composition et aux épaisseurs des dernières couches de l'hétérostructure. Cette sensibilité a plusieurs conséquences pratiques sur le développement d'un procédé de fabrication.

Une première conséquence est la difficulté de prévoir avec précision la position du mode Tamm avant de démarrer la micro-structuration, ce qui est problématique pour accorder le mode avec la luminescence des émetteurs. Nous avons donc adopté une méthode de cartographie de l'hétérostructure épitaxiée spécifique aux modes Tamm, avec des dépôts d'argent locaux, permettant d'évaluer les différentes résonances.

Deuxièmement, nous avons vu que cette sensibilité à la structure surfacique de l'hétérostructure impose, lors du développement du procédé de fabrication, de vérifier à chaque étape que celle-ci n'a pas d'influence sur le mode Tamm. De cette manière, nous avons mis en évidence la gravure du DBR par le révélateur utilisé pour les lithographies, ce qui avait pour conséquence de fortement décaler la résonance Tamm vers les courtes longueurs d'onde. Cela nous oblige notamment à trouver une alternative à la structuration "classique" par lift-off de l'argent déposé sur le DBR. Dans notre cas, l'alternative consiste en un dépôt d'argent sur tout l'échantillon, puis de sa structuration par une lithographie suivie d'une attaque avec une solution iodée KI/I_2 .

Finalement, cette stratégie de développement a abouti à un procédé de fabrication caractérisé par une protection permanente de la surface utile du DBR, c'est-à-dire la surface du DBR vouée à être en contact direct avec le métal. Cette protection est assurée soit par la résine photosensible, qui ne dégrade pas la surface du DBR, soit par l'argent, une fois celui-ci déposé.

Références

- ¹Merck Performance Materials GmbH, *Technical Data Sheet AZ 5214 E Photoresist*, microchemicals.com, (2016) https://www.microchemicals.com/micro/tds_az_5214e_photoresist.pdf.
- ²N.-V. Hoang et al., “Giant Enhancement of Luminescence Down-Shifting by a Doubly Resonant Rare-Earth-Doped Photonic Metastructure”, *ACS Photonics* **4**, 1705-1712 (2017).
- ³T. Fix, “Dépôt par ablation laser pulsé”, *Techniques de l’ingénieur Optique Photonique base documentaire : TIP520WEB*. 10.51257/a-v1-e4216 (2021).
- ⁴J. Dawson, “Optical Absorption and Expansion of Laser-Produced Plasmas”, *Physics of Fluids* **12**, 875 (1969).
- ⁵D. Chambonnet, “Le dépôt de films minces par ablation laser : un procédé confiné à des niches industrielles?”, *Le Journal de Physique IV* **09**, PR5-125-PR5-130 (1999).
- ⁶A. Gassenq et al., “Rare-Earth Doped Micro-Emitters Made by Lift-off Processing in Pulsed Laser Deposited Layers on Si Substrate”, *Optics Express* **29**, 7321 (2021).
- ⁷Y. Zhang et al., “Origin and Control of OFF-State Leakage Current in GaN-on-Si Vertical Diodes”, *IEEE Transactions on Electron Devices* **62**, 2155-2161 (2015).
- ⁸M. B. Tahhan, “Modeling, Fabrication, and Analysis of Vertical Conduction Gallium Nitride Fin MOSFET” (UC Santa Barbara, 2017).
- ⁹F. Horikiri et al., “The Effect of Tetramethylammonium Hydroxide Treatment on Photoelectrochemical Etched Gallium Nitride Trench Structures”, in *2019 Compound Semiconductor Week (CSW)* (mai 2019), p. 1-2.
- ¹⁰MicroChemicals, *Wet-Chemical Etching of Metals*, microchemicals.com, (2018) https://www.microchemicals.com/technical_information/wet_etching_metals_al_au_cu_cr_ni_ti_ag.pdf.

Chapitre 5

Diodes électroluminescentes à mode Tamm

L'utilisation des modes Tamm pour la réalisation de diodes électroluminescentes (LED) a déjà été proposée dans quelques publications.¹⁻³ Un article de Zhang et al. publié en 2015 propose d'utiliser un mode Tamm pour améliorer les performances colorimétriques des LED organiques (OLED) blanches émettant par la surface.¹ En l'occurrence, l'idée est d'hybrider le mode de cavité présent entre les deux électrodes d'injection avec un mode Tamm, pour obtenir deux pics d'extraction de lumière centrés sur des longueurs d'onde très différentes et obtenir une émission blanche. La structure consiste en une OLED, principalement composée de matériaux organiques et d'électrodes métalliques, sur laquelle est évaporé un miroir de Bragg en CaF/ZnSe. Mais dans ce travail, la partie "Tamm" n'est pas au cœur du processus d'émission, mais plutôt en périphérie d'une structure OLED usuelle afin de modifier ses propriétés.

L'idée d'une vraie source LED à mode Tamm a été proposée dans un article de Zheng et al. en 2019.³ Dans cette publication, les auteurs proposent d'utiliser l'effet Purcell dans les modes Tamm pour améliorer le rendement quantique interne des LED vertes à structure InGaN/GaN, et pallier le problème d'émission dans la gamme de couleurs vert-jaune ("green gap problem"). Cependant, leur travail publié est entièrement théorique, et aucune réalisation d'une LED Tamm, ni dans les systèmes InGaN/GaN ni dans d'autres systèmes semi-conducteurs n'a été démontrée pour le moment.

Ce dernier chapitre présentera les résultats obtenus avec les LED Tamm fabriquées selon la méthode à laquelle le chapitre précédent a abouti. Néanmoins, l'objet de ce chapitre n'est pas tant la présentation des LED Tamm comme de nouvelles concurrentes aux LED et LED à cavité résonantes (RCELD) existantes. Le but de ce chapitre est plutôt de démontrer la possibilité d'exciter électriquement une source de lumière Tamm dont la structure et les matériaux sont complètement compatibles avec les techniques de fabrication de la micro-électronique. Cette démonstration pourra servir d'hypothèse de départ pour l'élaboration de nouveaux composants électroniques utilisant les intérêts des modes Tamm, et développer leurs nombreuses

applications potentielles, comme celles discutées dans la section 1.1.4 (p.26) du chapitre 1.

Nous décrirons donc dans ce chapitre les propriétés des composants Tamm fabriqués par la méthode que nous avons développée. Une brève étude de l'émission des LED ainsi que de leurs propriétés électriques nous permettra de valider la méthode de fabrication. Nous étudierons ensuite en détail l'émission d'une LED de diamètre d'injection $\phi = 10 \mu\text{m}$, en analysant les propriétés spatiales, angulaires et spectrales de l'émission, ainsi que la dépendance avec l'excitation électrique. Enfin, nous montrerons la possibilité d'émettre de la lumière provenant d'un mode Tamm confiné latéralement en réduisant la taille du disque d'injection.

5.1 Excitation électrique et conservation du mode Tamm

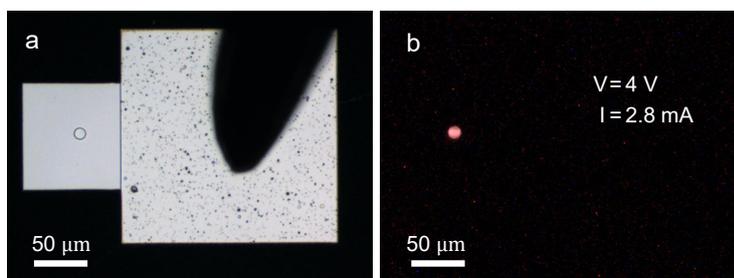


FIGURE 5.1 – LED de diamètre $10 \mu\text{m}$ (a) Image en lampe blanche (b) Émission directe à 4 V et 2.8 mA

La figure 5.1 montre une LED de diamètre $\phi = 10 \mu\text{m}$, éclairée en lumière blanche (a), et traversée par un courant de 2.8 mA (b) en appliquant une polarisation continue de 4 V entre le pad de contact et le support en cuivre sur lequel est collé l'échantillon. De l'électroluminescence est détectée, qui provient uniquement du disque d'injection. Elle est émise de manière assez homogène à l'intérieur du disque, et aucune émission parasite ne s'échappe des bords du composant, contrairement à ce qui a pu être observé précédemment (voir figure 4.11 (c) et (d), p.130). Cela suggère que l'injection est correctement réalisée à travers le disque d'injection et que l'émission des PQ est accordée avec le mode Tamm sous l'argent.

Le spectre d'émission en imagerie de Fourier est présenté en figure 5.2 (a). L'émission est presque entièrement dirigée dans un mode à dispersion parabolique, situé à $\lambda_T = 946.3 \text{ nm}$ dans la direction normale. La réflectométrie du DBR à côté de la diode montre que le mode à dispersion parabolique précédent se situe dans la bande interdite, à $\Delta = \lambda_H - \lambda_T \simeq 12.8 \text{ nm}$ de son bord haut. On en déduit qu'il correspond bien au mode Tamm. Les barres verticales noires sont dues à la réponse du système optique.

Cette dernière valeur peut être comparée avec deux mesures préliminaires du mode par dépôt d'argent avant fabrication, sur des zones proches et de part et

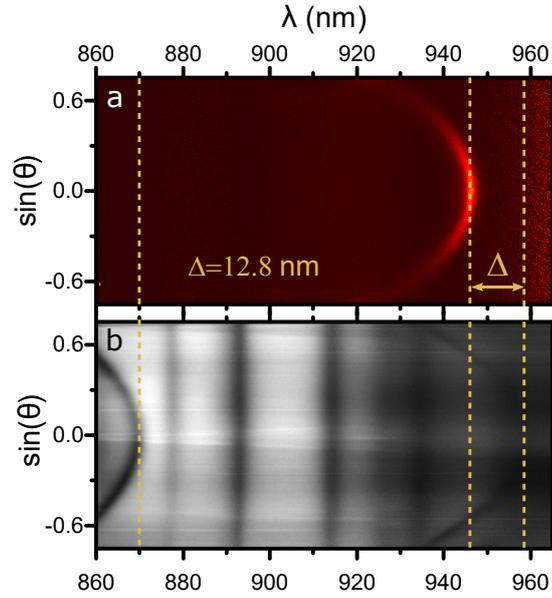


FIGURE 5.2 – (a) EL en imagerie de Fourier à 2 V et 0.43 mA (B) Réflectivité du DBR à côté de la LED.

d'autres de l'échantillon considéré. Les résultats de ces mesures sont consignés dans la table 5.1. L'écart Δ vaut 13.8 nm pour le point C et 6.2 nm pour le point B,¹ ce qui encadre bien la valeur obtenue sur notre échantillon. On peut donc conclure que le procédé de fabrication établi conserve le mode Tamm et permet de l'exciter électriquement.

Point	Point C	LED 10 μm	Point B
Bords de bande interdite λ_L , λ_H	861.4, 948.9	869.3, 959.1	874.5, 962.4
Mode Tamm λ_T	935.1	946.3	956.2
$\Delta = \lambda_H - \lambda_T$	13.8	12.8	6.2

TABLE 5.1 – Position des modes optiques pour la LED de 10 μm et deux points d'argent déposés avant la fabrication, de part et d'autres de la LED. Toutes les valeurs sont en nm.

5.2 Propriétés électriques

Pour être validé, le procédé de fabrication établi doit également garantir une injection efficace et reproductible des puits quantiques. Pour cela, les propriétés électriques des LED fabriquées ont été étudiées via leur caractéristiques I-V. La figure 5.3 montre la caractéristique I-V mesurée sur neuf LED différentes de diamètre 10 μm . Sept LED parmi les neuf présentent des courbes très proches, et seulement

1. Le point désigné B est le même que celui présenté en figure 4.2 dans le chapitre précédent, en page 121. Le point C est un autre point, éloigné d'environ 1 cm du point B.

deux s'en écartent significativement, de moins de 40%. En s'intéressant uniquement aux sept LED présentant des courbes similaires, le rapport "écart-type sur courant moyen" devient inférieur à 10% pour une injection supérieure à 2 V. Ce résultat est similaire pour les autres diamètres. Le procédé de fabrication présente donc une très bonne stabilité d'un composant à un autre, excepté pour quelques LED qui s'éloignent significativement de la moyenne. Cela implique trois choses. Premièrement, que la mesure fournit un résultat pertinent. Si le système de mesure introduit une résistance non négligeable, celle-ci est au moins constante d'une mesure à l'autre. Deuxièmement, que le courant électrique passe uniquement par les disques d'injection. S'il y avait des canaux parasites de passage du courant à travers la couche isolante d' Y_2O_3 , leur distribution serait aléatoire sur la surface de l'échantillon, ce qui résulterait en une forte dispersion des courbes I-V. Troisièmement, que les deux principales zones de contact liées à la micro-structuration sont régulières, à savoir le contact entre l'argent sur Y_2O_3 et l'argent au fond des ouvertures, ainsi que le contact entre l'argent et le DBR. Cela valide donc la reproductibilité, d'une LED à une autre, du procédé de fabrication.

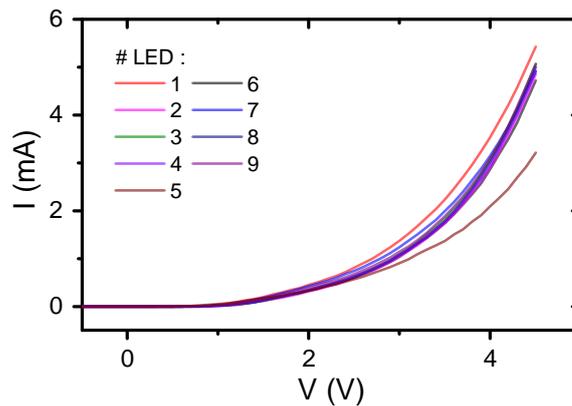


FIGURE 5.3 – Caractéristique $I(V)$ de 9 LED de diamètre $10\ \mu\text{m}$.

Les courbes moyennes courant-tension I-V et densité de courant-tension J-V pour les différents diamètres sont présentées en figures 5.4 (a) et (b). Les moyennes sont calculées à partir des caractéristiques I-V d'une série comprenant entre 7 et 9 diodes de même diamètre, en retirant comme précédemment les rares LED qui s'écartent significativement de la moyenne (4 composants sur 60 testés, soit $\simeq 7\%$). Les barres d'erreur correspondent aux écarts-type calculés sur les séries. Pour une tension donnée, le courant injecté est d'autant plus élevé que la surface d'injection est grande. Cela confirme à nouveau la régularité du contact depuis le pad de contact jusqu'à la surface du DBR.

En revanche, les densités de courant J , calculées en divisant le courant I par la surface du disque d'injection, dépendent fortement du diamètre des disques. Un résultat similaire avait été obtenu sur des précédents échantillons, fabriqués avec le premier procédé de fabrication (voir section 3.6.1, p.103). On en conclut que la conductivité électrique globale des composants n'est pas proportionnelle à la surface

d'injection. Cela est probablement dû à une jonction Schottky sur la face arrière de l'échantillon, à l'interface entre le substrat GaAs dopé n et le contact métallique à la laque d'argent, et potentiellement à la résistance série du DBR de 35 couches. Par conséquent, une partie non négligeable de la tension imposée n'est pas appliquée sur la jonction p-i-n autour des puits. Une part de la puissance électrique reçue par les composants est donc dissipée loin des puits et contribue à chauffer la structure.

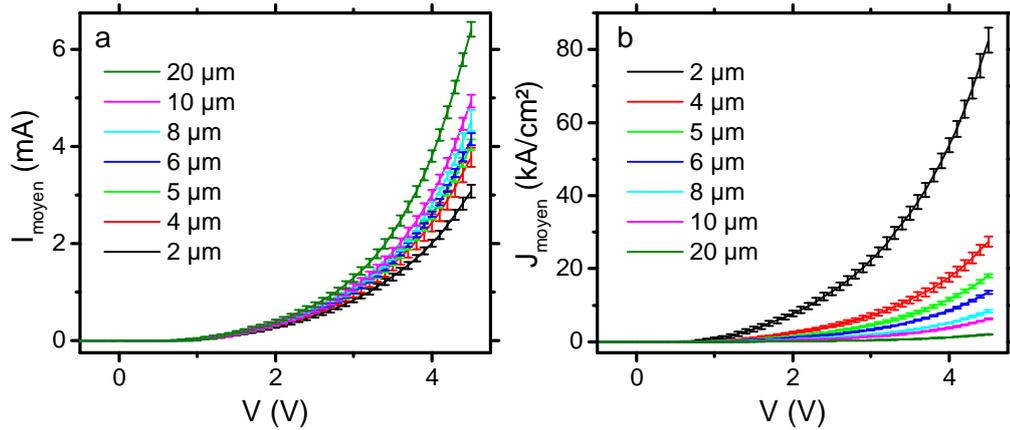


FIGURE 5.4 – Caractéristiques (a) $I(V)$ et (b) $J(V)$ moyennes en fonction du diamètre des disques d'injection. Pour les deux sous-figures, l'ordre de la légende suit la disposition des courbes.

Cette perte électrique pourrait être réduite en formant un contact ohmique sur la face arrière de l'échantillon, par exemple avec un dépôt Ni/AuGe.⁴ Cela permettrait de diminuer la tension nécessaire à l'émission de lumière, d'augmenter le rendement électrique/optique et de réduire l'échauffement et le risque d'endommager le composant. L'amélioration du contact inférieur n'a pas été une priorité du développement présenté dans cette thèse, dans la mesure où les difficultés de fabrication prépondérantes se trouvaient sur la face supérieure de la partie semi-conductrice.

En conclusion, la méthode de fabrication développée assure un contact régulier entre le pad de contact et la surface dopée p du DBR, et se révèle très reproductible d'une LED à une autre sur un même échantillon. Cette reproductibilité garantit de plus que le courant électrique ne passe qu'à travers le disque d'injection. Une partie de la puissance électrique est perdue dans le DBR dopé n et au niveau du contact inférieur, ce qui pourra être amélioré pour de prochains échantillons en formant un contact ohmique. Néanmoins, de l'électroluminescence est détectée depuis les disques d'injection, et est émise dans le mode Tamm qui n'a pas été décalé par la fabrication. On peut donc valider cette méthode pour la fabrication de sources de lumières à mode Tamm.

5.3 Émission d'une micro-LED à mode Tamm

Nous allons à présent étudier précisément les propriétés d'émission d'une LED de diamètre $\phi = 10 \mu\text{m}$. Cette taille est typiquement supérieure à l'extension d'un mode Tamm à deux dimensions, d'environ $7 \mu\text{m}$.⁵ Par conséquent, on ne s'attend pas à observer des effets du confinement latéral du mode par les bords du disque d'injection. L'étude de disques d'injection plus petits sera présentée à la fin de ce chapitre dans la section 5.4.

5.3.1 Propriétés spatiales

Les figures 5.5 (a) et (b) montrent respectivement une image du disque d'injection éclairé en lampe blanche, et l'émission de la LED soumise à une polarisation continue de 2 V et traversée par un courant de 0.43 mA. L'émission est limitée au disque d'injection, et présente une très bonne symétrie par rapport au centre du disque. Pour comparaison, la figure 5.5 (c) montre l'émission d'une LED de $40 \mu\text{m}$, sur un autre échantillon où l'émission des PQ est très désaccordée par rapport au mode Tamm. À l'intérieur du disque, l'émission est très irrégulière, avec des points très lumineux et des zones de faible intensité.² Ces inhomogénéités traduisent le fait que les émetteurs ne se couplent pas ou peu avec un mode optique. À l'opposé, l'allure de l'émission de la figure 5.5 (b) montre que l'émission est couplée à des modes optiques résonants.

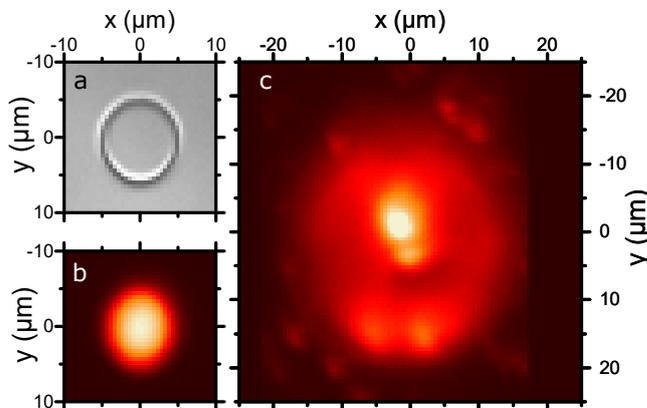


FIGURE 5.5 – (a) Disque d'injection de la LED de $10 \mu\text{m}$ (b) EL à $V = 2\text{V}$ et $I = 0.43\text{mA}$ (c) LED de $40 \mu\text{m}$ sur un autre échantillon très désaccordé.

Il est également intéressant d'analyser la distribution spatiale et spectrale de l'émission. La figure 5.6 (a) montre un spectre d'émission résolu spatialement. Cette image est obtenue par la sélection d'une coupe verticale du disque de la figure 5.5 (b), en fermant la fente d'entrée du spectromètre sur laquelle on image le disque. Le

2. Les points lumineux à l'extérieur du disque correspondent à des défauts dans la couche d' Y_2O_3 . Celle-ci avait été déposée avant de résoudre le problème de qualité des couches décrite en section 4.11.

spectre d'émission semble très homogène à l'intérieur du disque. Deux coupes horizontales de cette image sont tracées en figure 5.6 (b), qui correspondent aux spectres d'émission au centre du disque et proche du bord. Les deux spectres sont quasiment identiques, à un facteur proportionnel près. Cela signifie que le spectre d'émission est très homogène sur la surface du disque. De plus, l'émission est majoritairement comprise entre 920 et 947 nm. La figure 5.2 (a) montre que cet intervalle correspond à la plage de détection de l'émission Tamm, limitée à basse longueur d'onde par l'ouverture de l'objectif de collection, et à haute longueur d'onde par le bas de la parabole.

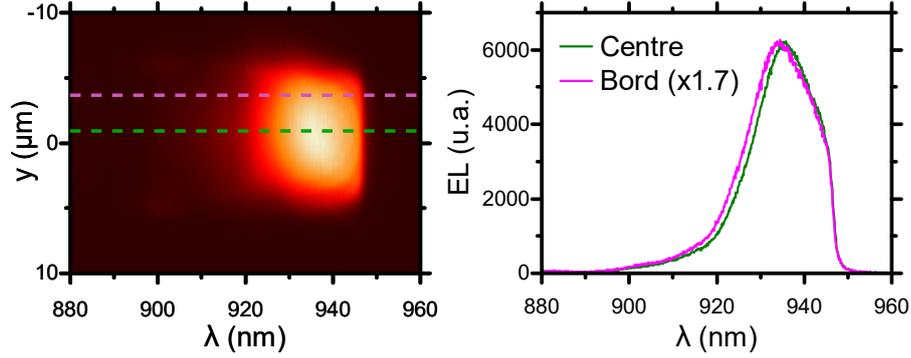


FIGURE 5.6 – (a) Spectre d'émission résolu spatialement, issu d'une coupe verticale de l'émission du disque montrée en figure 5.5 (b). $V = 2\text{ V}$ et $I = 0.43\text{ mA}$. (b) Spectres d'émission au centre et au bord du disque.

On peut donc conclure que la luminescence des puits quantiques, excités électriquement, est bien émise de la structure par le couplage aux modes Tamm, et ce de manière homogène sur toute la surface du disque de $10\ \mu\text{m}$. La structure ainsi fabriquée est donc une LED à mode de cavité résonant, ou RCLED.⁶

5.3.2 Propriétés angulaires

Un paramètre important caractérisant une source de lumière est sa directivité. La figure 5.7 (a) montre l'émission de la LED dans le plan de Fourier, pour une tension de 4.5 V et un courant de 6.1 mA . À partir d'une coupe du plan de Fourier passant par la direction normale à l'échantillon, on peut calculer, à un facteur près, l'intensité lumineuse I émise par unité d'angle solide, généralement présentée en $\text{W} \cdot \text{sr}^{-1}$, qui donne le flux élémentaire d'énergie lumineuse $d\Phi$ dans un angle solide $d\Omega$:

$$d\Phi = I(\theta, \varphi)d\Omega = I(\theta) \sin(\theta)d\theta d\varphi \quad (5.1)$$

Les coordonnées angulaires θ et φ sont définies dans le schéma de la figure 5.7 (c). θ est l'angle entre la direction considérée et l'axe z normal à la surface de l'échantillon. L'émission étant invariante par rotation autour de l'axe z , on considère que l'intensité I ne dépend pas de l'angle azimutal φ .

Dans notre cas, nous mesurons une intensité I' dans le plan de Fourier, dans lequel un point est repéré par ses coordonnées $(\sin\theta_x, \sin\theta_y)$ ou bien $(\sin\theta, \varphi)$. La

puissance $d\Phi$ émise par l'échantillon dans l'angle solide $d\Omega$ se retrouve dans une surface dS du plan de Fourier, telle que :

$$d\Phi = I'(\sin(\theta), \varphi) dS \quad (5.2)$$

où dS est donnée par

$$dS = \sin(\theta) d\varphi d(\sin(\theta)) \quad (5.3)$$

$$= \sin(\theta) d\varphi \cos(\theta) d\theta \quad (5.4)$$

D'où on déduit la relation entre l'intensité $I(\theta)$ et l'intensité I' mesurée dans le plan de Fourier :

$$I(\theta) = \cos(\theta) I'(\sin(\theta)) \quad (5.5)$$

en omettant la variable φ dont I et I' ne dépendent pas.

L'intensité $I(\theta)$ est tracée en figure 5.7 (b). Elle est ici normalisée par son maximum, et est donc présentée en sr^{-1} . La largeur à mi-hauteur de l'émission est d'environ 58° , correspondant à une ouverture numérique $\text{NA} = 0.48$.

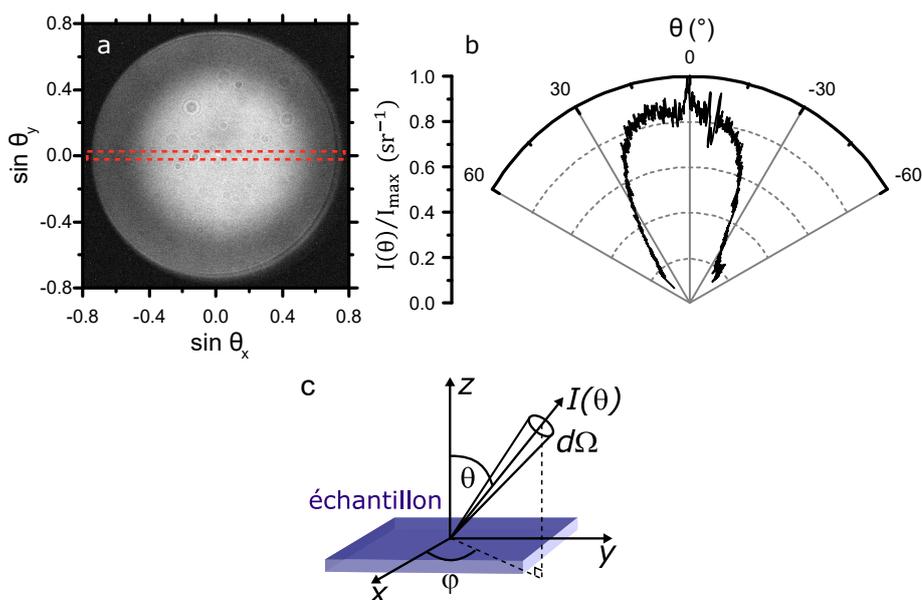


FIGURE 5.7 – (a) Émission de la LED de $10 \mu\text{m}$ dans le plan de Fourier, à 4.5 V et 6.12 mA (b) Diagramme d'émission, calculé à partir de la coupe horizontale de (a). (c) Schéma de l'échantillon et du système de coordonnées utilisé.

L'électroluminescence de la LED étant distribuée dans un continuum de modes, cette largeur mesurée correspond en fait à la somme des contributions des modes Tamm d'angle d'émission dans l'air θ et de longueur d'onde $\lambda_T(\theta)$. La largeur angulaire du mode Tamm à $\theta = 0$ peut être évaluée à partir du spectre d'émission, visualisé dans le plan de Fourier. La figure 5.8 (a) représente l'émission de la LED, soumis à $V=4.5 \text{ V}$, en imagerie de Fourier. Une coupe verticale de l'image en bas de la parabole, à $\lambda_T(\theta = 0) = 948 \text{ nm}$ permet de tracer le diagramme d'émission

du mode normal à la surface, visible en figure 5.8 (b). Celui-ci présente une largeur angulaire à mi-hauteur de 19° , soit une ouverture numérique de $NA = 0.17$. Une autre coupe à $\lambda_T(\theta \simeq 20^\circ) = 944 \text{ nm}$ donne accès au profil angulaire d'émission du mode Tamm émettant à $\theta \simeq 20^\circ$.

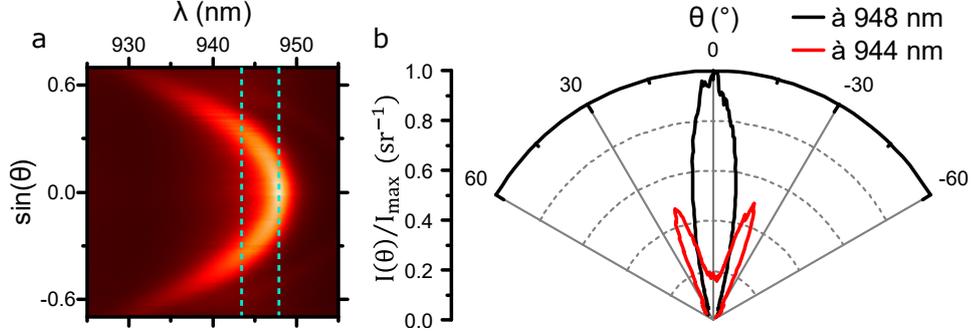


FIGURE 5.8 – (a) Spectre d'émission dans le plan de Fourier à 4.5 V (b) Diagramme de rayonnement des modes Tamm centrés en $\theta = 0^\circ$ et 20° , obtenus à partir des deux coupes à $\lambda_T = 948 \text{ nm}$ et 944 nm .

5.3.3 Influence de l'excitation

Nous allons à présent étudier l'influence de l'excitation sur la lumière émise. La figure 5.9 (a) montre les spectres d'émission à $\theta = 0$ en fonction du courant injecté. Ces spectres sont obtenus à partir d'images telles que la figure 5.8 (a), en ne sélectionnant que quelques lignes de pixels autour du milieu du plan de Fourier, pour ne conserver que l'émission proche de $\theta = 0$. L'intensité du pic d'émission augmente jusqu'aux plus fortes conditions de fonctionnement étudiées (6.5 mA, à $\simeq 4.5 \text{ V}$, ce qui correspond à une densité de courant $J = 8.2 \text{ kA} \cdot \text{cm}^{-2}$). On note un décalage du spectre vers les grandes longueurs d'onde en augmentant le courant. La figure 5.9 (b) montre l'évolution de la longueur d'onde centrale du pic λ_{pic} avec l'intensité du courant électrique, ainsi que la largeur du pic $\Delta\lambda_{pic}$. Entre 0.5 et 6.5 mA, le pic se décale d'environ 1.65 nm, et sa largeur passe de $\simeq 2 \text{ nm}$ à $\simeq 2.5 \text{ nm}$. Ce comportement a pu être observé sur certaines LED à cavité résonante, et peut être attribué à un échauffement de la structure.^{7,8}

La courbe L-I-V de la LED (L I et V désignent respectivement l'intensité de la lumière émise, l'intensité du courant électrique et la tension appliquée) est tracée en figure 5.9 (c). La courbe rouge correspondant à la lumière émise est obtenue en intégrant les spectres de la figure 5.9 (a) entre 930 et 960 nm. L'intensité de l'émission L évolue très linéairement sur une plage de courants I comprise entre $\simeq 2 \text{ mA}$ et 6 mA . Le pointillé noir sert de repère par rapport à cette évolution linéaire. Au-delà de $\simeq 6 \text{ mA}$, la courbe L passe en dessous de la droite repère, ce qui correspond à une diminution du rendement différentiel $\eta = dL/dI$.⁹ C'est le signe que l'on approche d'une saturation de l'émission. La quantité de lumière sortant de la LED dépend de l'intensité de l'excitation, du rendement de conversion électrons/photons,

et de l'efficacité d'extraction. A priori, cette dernière a peu de raison de varier avec l'excitation. Une diminution du rendement différentiel doit donc être attribuée à une dégradation du rendement de conversion électron/photon. Cela peut s'expliquer par un début de saturation des niveaux électroniques des PQ, ou bien d'un échauffement de la structure, qui diminue leur rendement quantique.¹⁰ L'excitation n'a pas été poussée plus loin afin d'éviter une dégradation du composant, qui survient à partir de 5 V.

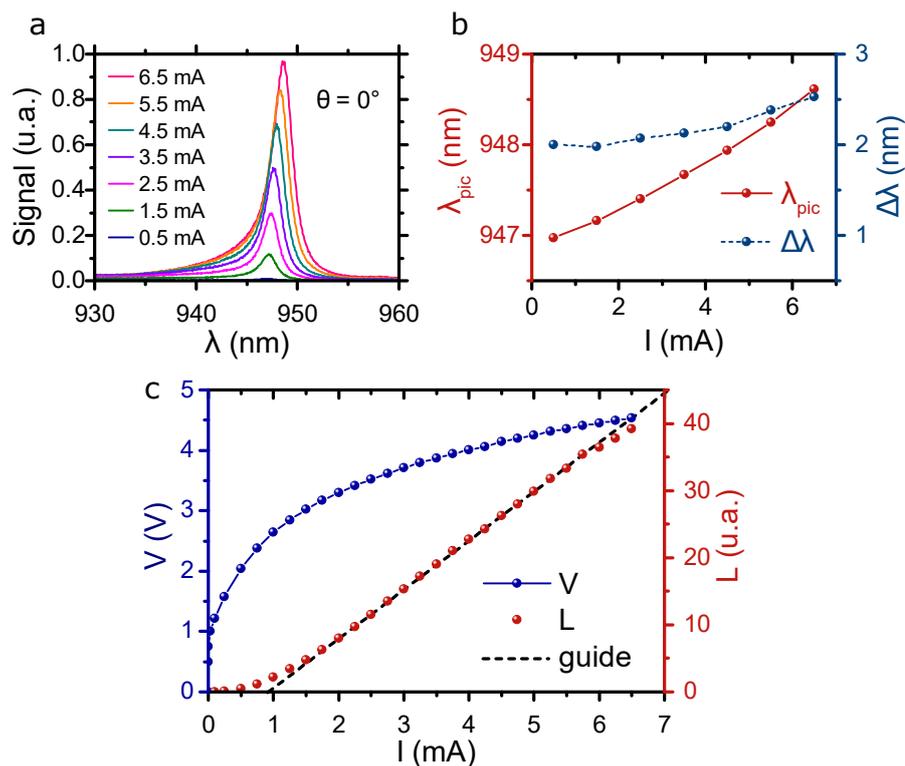


FIGURE 5.9 – (a) Spectres d'émission en sélectionnant la direction $\theta = 0$ dans le plan de Fourier. (b) Position et largeur du pic à $\theta = 0$ en fonction du courant I (c) Courbe LIV. La courbe L correspond à l'intégration des spectres précédents entre 930 et 960 nm. La droite noire en pointillée sert de guide visuel.

On peut noter que l'intensité de l'émission n'évolue pas linéairement avec le courant électrique quand celui-ci est inférieur à 2 mA. Cela pourrait traduire l'existence d'un courant de fuite entre le disque d'injection et le bord de l'échantillon, conduit par les deux couches fortement dopées p à la surface de l'hétérostructure.¹¹

5.4 LED à mode Tamm confiné

Un des intérêts des structures Tamm réside dans la possibilité de confiner latéralement le mode optique avec le disque métallique. Pour un mode Tamm situé vers 855 nm, il a été montré que le métal confine effectivement le mode optique pour des disques de diamètres situés entre $\simeq 2 \mu\text{m}$ et $\simeq 7 \mu\text{m}$.⁵ Expérimentalement, ce

confinement se traduit en imagerie de Fourier par une discrétisation de la relation de dispersion Tamm : les modes Tamm n'existent plus qu'à certains vecteurs d'onde latéraux $k_{//}$ déterminés par les dimensions du disque. Cette discrétisation n'a pas été observée dans la dispersion de la LED précédemment étudiée (figure 5.8 (a)), notamment parce que son diamètre de $10\ \mu\text{m}$ est supérieur à l'extension du mode ($\simeq 7\ \mu\text{m}$).

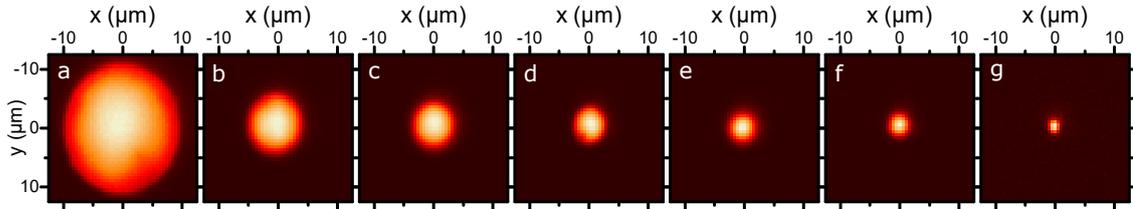


FIGURE 5.10 – Émission d'une série de LED de diamètres $20\ \mu\text{m}$, $10\ \mu\text{m}$, $8\ \mu\text{m}$, $6\ \mu\text{m}$, $5\ \mu\text{m}$, $4\ \mu\text{m}$ et $2\ \mu\text{m}$ (a-b-c-d-e-f-g) pour une polarisation de $4\ \text{V}$.

La figure 5.10 montre l'émission des LED Tamm en imagerie directe, pour des diamètres d'injection de 20 , 10 , 8 , 6 , 5 , 4 et $2\ \mu\text{m}$. Les sept LED sont soumises à une polarisation continue de $4\ \text{V}$, pour se placer dans la zone d'évolution linéaire de la courbe L-I-V (figure 5.9 (c)). Pour tous les diamètres, hormis le plus grand de $20\ \mu\text{m}$, l'émission présente une très bonne symétrie de rotation par rapport au centre du disque. Pour le diamètre de $20\ \mu\text{m}$, l'émission n'est plus tout à fait symétrique, ce qui a été observé sur d'autres LED de même diamètre.

En figure 5.11 se trouvent l'émission des LED en imagerie de Fourier, pour des diamètres de 6 , 5 , 4 et $2\ \mu\text{m}$. Pour $\phi = 4\ \mu\text{m}$ (c), le confinement des modes Tamm est démontré par la discrétisation de la relation de dispersion. Le mode fondamental, situé à $945.4\ \text{nm}$, présente une ouverture angulaire de 21° , similaire à la largeur mesurée sur le mode non confiné en figure 5.8. La discrétisation des modes confinés est à peine discernable pour $\phi = 5\ \mu\text{m}$ (b), et n'est plus du tout visible pour $\phi = 6\ \mu\text{m}$ (a). Ces dimensions sont pourtant inférieures à l'extension spatiale du mode ($\simeq 7\ \mu\text{m}$). Le fait que la discrétisation ne soit pas visible s'explique probablement par les pertes trop élevées du mode. En effet, si la largeur spectrale du mode Tamm

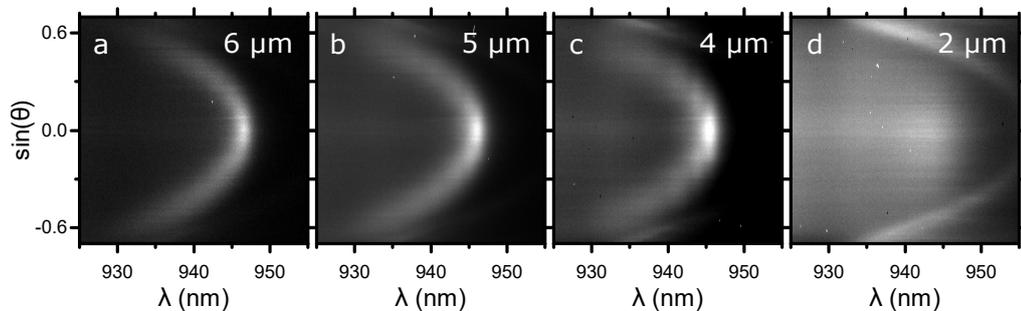


FIGURE 5.11 – Émission dans le plan de Fourier de LED de diamètres (a) $6\ \mu\text{m}$, (b) $5\ \mu\text{m}$, (c) $4\ \mu\text{m}$ et (d) $2\ \mu\text{m}$.

est supérieure ou proche de l'écart entre les modes confinés, la somme de ces derniers est semblable à une parabole continue en imagerie de Fourier. Le confinement serait sans doute visible pour des diamètres supérieurs à $4\ \mu\text{m}$ en réduisant les pertes du modes, par exemple en augmentant l'épaisseur de métal.

Pour $\phi = 2\ \mu\text{m}$, le mode Tamm n'est plus discernable. Une partie de la lumière est émise de manière non dispersive, et une autre partie est émise à travers le mode de Bloch de bord de bande interdite. Il a été montré que le facteur de qualité du plasmon Tamm diminue avec la taille des disques.⁵ Ici, pour un diamètre de $2\ \mu\text{m}$, les pertes sont telles que le mode Tamm semble ne plus exister.

5.5 Conclusion du chapitre

Nous avons présenté dans ce chapitre les résultats de caractérisation des premières sources LED à mode Tamm résonant. Tout d'abord, il a été vérifié que le procédé de fabrication développé dans le chapitre précédent n'altère pas la position du plasmon Tamm, dont la position a été mesurée de façon préliminaire sur un dépôt non structuré et après la micro-structuration. L'étude des propriétés électriques des composants ainsi fabriqués montre une très bonne reproductibilité d'un composant à l'autre, ce qui témoigne d'une injection stable qui ne s'effectue qu'à travers les ouvertures définies dans l' Y_2O_3 . Cependant, l'étude de la caractéristique courant-tension en fonction du diamètre d'injection montre qu'une partie de la tension nécessaire au fonctionnement de la diode est perdue ailleurs qu'aux bornes de la jonction p-i-n, probablement sur la face arrière, à cause d'un contact Schottky. Ce problème pourra être résolu assez facilement en déposant un contact ohmique sur la face arrière des prochains échantillons.

En ce qui concerne l'émission, nous avons montré que celle-ci s'effectue de manière très homogène sur la surface des disques d'injection pour des diamètres compris entre 10 et $2\ \mu\text{m}$. Pour notre diamètre maximal de $20\ \mu\text{m}$, des inhomogénéités spatiales de l'émission commencent à apparaître. L'imagerie de l'électroluminescence résolue en angle a montré que cette émission de la structure s'effectue très majoritairement à travers l'excitation du plasmon Tamm. Pour un diamètre d'injection de $10\ \mu\text{m}$, l'intensité de l'émission évolue assez linéairement avec le courant traversant la LED jusqu'à un courant d'environ $6\ \text{mA}$, ce qui correspond à une densité de courant au niveau des puits de $J = 7.6\ \text{kA} \cdot \text{cm}^{-2}$. Pour une injection plus forte, l'émission présente des signes de saturation. Ces résultats constituent à notre connaissance la première réalisation d'une LED résonante à mode Tamm (Tamm Resonant-Cavity Light-Emitting-Diode ou Tamm RCLED en anglais).

Enfin, l'étude des LED de plus petit diamètre a mis en évidence le confinement latéral du mode Tamm pour un diamètre du disque d'injection $\phi = 4\ \mu\text{m}$. Le confinement pour des diamètres légèrement plus grand est indiscernable, probablement à cause d'un facteur de qualité trop faible qui ne permet pas de résoudre la discrétisation des modes. L'observation d'un confinement latéral pour $\phi = 4\ \mu\text{m}$ est néanmoins une bonne nouvelle, car cela signifie que le couplage entre les puits et le mode pourra être amélioré par effet Purcell, moyennant un accord plus fin entre le

mode Tamm et l'émission des puits. Cela est encourageant pour pousser le développement des sources Tamm à injection électrique vers un contrôle du mode par la structuration du métal ou vers une diode laser Tamm.

Références

- ¹X.-L. Zhang et al., “Hybrid Tamm Plasmon-Polariton/Microcavity Modes for White Top-Emitting Organic Light-Emitting Devices”, *Optica* **2**, 579-584 (2015).
- ²M. Fusella, N. J. Thompson et V. M. Menon, “Purcell Enhancement via Tamm Plasmon Stack in Oled Structures”, brev. amér. 20200295307A1 (Universal Display Corp, 17 sept. 2020).
- ³Y.-d. Zheng et al., “Purcell Effect and Light Extraction of Tamm-plasmon-cavity Green Light-Emitting Diodes”, *Optics Express* **27**, 30852-30863 (2019).
- ⁴A. Baca et al., “A Survey of Ohmic Contacts to III-V Compound Semiconductors”, *Thin Solid Films* **308–309**, 599-606 (1997).
- ⁵C. Symonds et al., “Confined Tamm Plasmon Lasers”, *Nano Letters* **13**, 3179-3184 (2013).
- ⁶E. F. Schubert et al., “Resonant Cavity Light-emitting Diode”, *Applied Physics Letters* **60**, 921-923 (1992).
- ⁷J. Li et al., “Effect of the Cladding Layer Cavity on the Efficiency of 650 Nm Resonant Cavity Light Emitting Diodes”, *Optics and Photonics Journal* **03**, 284 (2013).
- ⁸F. A. Al-Saymari, “Design, Growth and Characterisation of Resonant Cavity Light Emitting Diodes (RCLEDs) for Mid-infrared Applications”, Thèse de doctorat (Lancaster University, 2020).
- ⁹D. Delbeke et al., “High-Efficiency Semiconductor Resonant-Cavity Light-Emitting Diodes : A Review”, *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* **8**, 189-206 (2002).
- ¹⁰R. G. Baets et al., “Resonant-Cavity Light-Emitting Diodes : A Review”, in *Light-Emitting Diodes: Research, Manufacturing, and Applications VII*, t. 4996 (3 juill. 2003), p. 74-86.
- ¹¹E. Schubert et al., “Temperature and Modulation Characteristics of Resonant-Cavity Light-Emitting Diodes”, *Journal of Lightwave Technology* **14**, 1721-1729 (1996).

Conclusion générale

Conclusion

Les plasmons Tamm, ou modes Tamm optiques sont des modes de surface apparaissant à l'interface entre un miroir de Bragg (DBR) et une couche métallique. Nous avons vu dans le premier chapitre que la possibilité de contrôler ce mode optique par la surface constitue un avantage clé, qui permet d'envisager son utilisation pour créer des sources de lumières originales, comme des sources intégrées à polarisation linéaire, circulaire ou radiale, des micro-lasers confinés ou des sources à plasmons de surface. À ces perspectives s'ajoute la possibilité d'injecter les porteurs de charges par la même partie métallique qui crée le plasmon Tamm au contact du DBR, ce qui offre potentiellement une importante diminution de la complexité et du coût de fabrication de ces sources ainsi qu'une forte aptitude à l'intégration.

Pour pousser les structures Tamm vers un mode de fonctionnement compatible avec une utilisation applicative, nous avons d'abord cherché à obtenir une émission en régime laser à température ambiante. La stratégie utilisée a consisté à réduire les pertes optiques dans le métal, en insérant une fine couche de bas indice entre le métal et le DBR tout en conservant la condition de phase déterminant les propriétés du mode Tamm, et notamment son confinement en surface. Cette amélioration de la structure, combinée à un épaissement du métal pour diminuer les pertes radiatives, a permis une forte augmentation du facteur de qualité par rapport à une structure Tamm classique ainsi que la démonstration d'un effet laser du plasmon Tamm à température ambiante.

La suite de ce doctorat s'est concentrée sur l'injection électrique des sources Tamm, autre condition de fonctionnement essentielle à une éventuelle utilisation applicative. Plus spécifiquement, notre objectif a été de développer un procédé de fabrication permettant l'émission de lumière à travers un mode Tamm, par excitation électrique de puits quantiques d'InGaAs dans un DBR en AlGaAs/AlAs. Le premier procédé de fabrication qui a été présenté dans le chapitre 3 s'inspirait de techniques usuelles de microfabrication. Nous avons montré que si ce premier procédé permettait l'injection électrique des puits quantiques, deux étapes classiques de fabrication (la gravure d'un oxyde au BOE et le développement d'une résine photosensible) détérioraient et gravaient la surface du DBR sur plusieurs dizaines de nanomètres. Les conséquences en sont un décalage spectral du mode Tamm, au détriment de l'accord avec le milieu émetteur, et la dégradation de ses propriétés optiques suite à la modification de la condition de phase déterminée par la composition

finale du DBR.

Cette très forte sensibilité du mode Tamm à la composition précise des dernières couches du DBR nous a donc conduit à modifier notre approche et à développer une méthode de développement spécifique aux modes Tamm. Cette méthode est essentiellement basée sur une détermination de la longueur d'onde du mode avant la microfabrication, grâce à un dépôt d'argent local sur le DBR, puis sur la vérification, à chaque étape de fabrication testée, que le mode Tamm n'est pas affecté. En appliquant cette méthode de développement, nous avons élaboré un deuxième procédé de fabrication neutre pour le mode Tamm. Ce procédé se caractérise finalement par une protection permanente de la surface utile du DBR, c'est-à-dire sa surface destinée au contact avec le métal, qui forme le plasmon Tamm et permet l'injection des porteurs de charge.

De cette manière, nous avons fabriqué les premières LED à cavité résonante (RCLED) fondées sur l'émission dans un mode plasmon Tamm. Ces RCLED à mode Tamm ont été caractérisées dans le dernier chapitre de cette thèse. Nous avons notamment observé une émission très homogène, spatialement et spectralement depuis les disques d'injection micrométriques, et vérifié que cette émission provient presque exclusivement du plasmon Tamm. Des modes Tamm confinés latéralement ont été mis en évidence pour un disque d'injection de $4\ \mu\text{m}$. Si l'effet laser n'a pas été obtenu avec l'échantillon fabriqué, ces résultats valident la proposition initiale, consistant à utiliser le même élément métallique pour créer le mode optique et assurer l'injection électrique.

La méthode de fabrication que nous avons développée pourra donc apporter l'excitation électrique aux nombreuses preuves de principes établies en pompage optique avec les modes Tamm. On peut de plus noter que le procédé de fabrication établi repose finalement sur des étapes de microfabrication assez simples, et non spécifiques aux matériaux avec lesquels nous avons travaillé pendant ce doctorat, à savoir les alliages d'AlAs/GaAs. On peut donc tout à fait imaginer transposer cette méthode à d'autres matériaux pour aller vers d'autres domaines de longueurs d'onde, où l'utilisation des modes Tamm a déjà été démontrée : dans le visible avec des structures comportant des nitrures,^{1,2} des nanocristaux colloïdaux^{3,4} ou des matériaux organiques,^{5,6} dans les longueurs d'onde télécom^{7,8} ou dans l'ultraviolet.⁹ De plus, cette méthode de fabrication reposant sur une protection permanente de la surface du semi-conducteur pourrait servir à d'autres types de structures, plasmoniques par exemple, où la composition de surface est déterminante pour les propriétés du mode optique.

Perspectives

Plusieurs voies sont envisagées pour poursuivre le travail de l'équipe MNP sur la thématique des sources à plasmons Tamm.

Un but à court terme consiste à obtenir un effet laser en injection électrique, ce qui revient à réaliser une diode laser Tamm. Pour aboutir rapidement à une preuve de principe, la piste la plus prometteuse serait d'appliquer tel quel le procédé de fabrication développé à un échantillon fonctionnant à température cryogénique. En

effet, la relative facilité d'obtention du régime laser en pompage optique à basse température est encourageante quant à l'obtention du même effet avec une injection électrique, qui est une méthode d'excitation bien plus adaptée aux structures Tamm.

Une fois cette démonstration de principe effectuée, il s'agira d'arriver à concilier l'excitation électrique avec le fonctionnement à température ambiante. Plusieurs pistes sont à notre disposition pour améliorer la structure et obtenir cet effet. D'une part, on pourra former un contact ohmique sur la face arrière de nos échantillons, ce qui permettra d'abaisser la tension de travail et de limiter l'échauffement des composants. Une autre piste consisterait à travailler la question du nombre de puits quantiques présents dans la structure. Il est possible qu'avec seulement six puits, les réserves de gain disponibles soient trop faibles pour compenser les pertes du plasmon Tamm et permettre l'effet laser. Enfin, on peut imaginer réduire les pertes du mode à l'aide de l'architecture super-Tamm, qu'il faudrait toutefois adapter pour la combiner avec une injection électrique.

Dans un deuxième temps, un autre objectif sera de démontrer, toujours en excitation électrique, le contrôle du mode par la structuration du métal. On pourra donc s'essayer à réaliser des sources, laser ou LED, à polarisation linéaire, circulaire ou à des états plus complexes comme des polarisations radiales ou azimutales. La perspective d'un générateur de plasmons de surface en utilisant l'excitation électrique d'un plasmon Tamm présente également un intérêt et un potentiel applicatif.

Enfin, le double rôle du métal consistant à localiser le mode optique et y apporter le courant électrique pourra être mis à profit pour créer des dispositifs à plus grande échelle, comportant un nombre plus ou moins élevé de sources Tamm élémentaires. On peut par exemple imaginer le développement de tableaux de lasers adressables comprenant un très grand nombre de sources Tamm. Des expériences préliminaires en pompage optique, non publiées, ont mis en évidence la cohérence de l'émission entre deux sources Tamm circulaires espacées de quelques centaines de nanomètres. Si cette cohérence peut être maintenue à l'échelle d'un plus grand nombre de sources élémentaires, elle pourrait être couplée au contrôle électrique indépendant de ces dernières. L'ajout de ce degré de liberté supplémentaire pourrait par exemple permettre un contrôle tout électrique en temps réel de la ou des directions d'émission du dispositif total, ce qui trouverait sûrement des applications, en imagerie par exemple. On voit donc que l'apport de l'injection électrique des sources Tamm n'est pas seulement une preuve de leur capacité à fonctionner hors d'un laboratoire : c'est aussi la possibilité d'utiliser les atouts des plasmons Tamm pour créer de nouveaux dispositifs photoniques.

Références

- ¹Y.-d. Zheng et al., “Purcell Effect and Light Extraction of Tamm-plasmon-cavity Green Light-Emitting Diodes”, *Optics Express* **27**, 30852-30863 (2019).
- ²G. Lheureux et al., “Tamm Plasmons in Metal/Nanoporous GaN Distributed Bragg Reflector Cavities for Active and Passive Optoelectronics”, *Optics Express* **28**, 17934-17943 (2020).
- ³F. Feng et al., “Confined Visible Optical Tamm States”, *Journal of Electronic Materials* **45**, 2307-2310 (2016).
- ⁴F. Feng et al., “Active Control of Radiation Beaming from Tamm Nanostructures by Optical Microscopy”, *New Journal of Physics* **20**, 033020 (2018).
- ⁵R. Brückner et al., “Lasing of Tamm States in Highly Efficient Organic Devices Based on Small-Molecule Organic Semiconductors”, *Faraday Discussions* **174**, 183-201 (2014).
- ⁶X.-L. Zhang et al., “Hybrid Tamm Plasmon-Polariton/Microcavity Modes for White Top-Emitting Organic Light-Emitting Devices”, *Optica* **2**, 579-584 (2015).
- ⁷M. Parker et al., “Tamm Plasmons for Efficient Interaction of Telecom Wavelength Photons and Quantum Dots”, *IET Optoelectronics* **12**, 11-14 (2018).
- ⁸M. Parker et al., “Telecommunication Wavelength Confined Tamm Plasmon Structures Containing InAs/GaAs Quantum Dot Emitters at Room Temperature”, *Physical Review B* **100**, 165306 (2019).
- ⁹W.-H. Xu et al., “Tamm Plasmon-Polariton Ultraviolet Lasers”, *Advanced Photonics Research* **3**, 2100120 (2021).