

**Croissance et spectroscopie de boîtes quantiques
diluées d'InAs/InP(001) pour des applications
nanophotoniques à 1,55 μm**

par

Emmanuel DUPUY

Thèse en cotutelle présentée
en vue de l'obtention du grade de docteur ès sciences (Ph.D.)

**FACULTÉ DES SCIENCES
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE**

ET

**ÉCOLE CENTRALE DE LYON
INSTITUT DES NANOTECHNOLOGIES DE LYON**

Ecully, France, juin 2010



Library and Archives
Canada

Published Heritage
Branch

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Direction du
Patrimoine de l'édition

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file *Votre référence*
ISBN: 978-0-494-62826-3
Our file *Notre référence*
ISBN: 978-0-494-62826-3

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

Le 22 décembre 2009

*le jury a accepté la thèse de Monsieur Emmanuel Dupuy
dans sa version finale.*

Membres du jury

Professeur Denis Morris
Directeur de recherche
Département de physique

Professeur Dominique Drouin
Codirecteur de recherche
Département de génie électrique et informatique

Docteur Michel Gendry
Codirecteur de recherche
INL-ECL-Ecully

Professeur Jean-Daniel Ganière
Rapporteur
LOQ-EPFL-Lausanne-Suisse

Professeur Nicolas Bertru
Rapporteur
FOTON-INSA Rennes

Docteure Catherine Bru-Chevallier
Présidente rapporteur
INL-INSA-Lyon

Docteur Jean Massies
Évaluateur externe
CRHEA-Valbonnes

Remerciements

Je me dois de commencer par remercier mes directeurs de thèse : Michel Gendry à Lyon, Denis Morris et Dominique Drouin à Sherbrooke, qui m'ont accueilli chaleureusement dans leurs équipes et encadré pendant ces cinq années de cotutelle de thèse. J'ai aimé travailler avec eux et apprécié notamment leur grande gentillesse et la liberté qu'ils m'ont donnée dans mes recherches. Je tiens à leur exprimer ma sincère reconnaissance pour leur patience, disponibilité, soutien et bienveillance pendant les moments difficiles.

Je souhaite ensuite exprimer toute ma gratitude aux membres du jury qui ont gentiment accepté d'évaluer ce travail de thèse. Je remercie Catherine Bru-Chevallier de m'avoir fait l'honneur de présider le jury. Je voudrais bien sûr remercier Nicolas Bertru et Jean-Daniel Ganière d'avoir jugé mon travail de thèse en qualité de rapporteurs. Je remercie également Jean Massies d'avoir examiné attentivement ce manuscrit. Je voudrais aussi remercier spécialement Denis Morris pour ma bourse de thèse canadienne ainsi que les organismes de soutien financier à la mobilité internationale: le Ministère des affaires étrangères français, le Ministère des relations internationales québécois, la région Rhône-Alpes pour leur programme « Explora Doc » et enfin l'INL.

J'ai également une pensée pour tous ceux qui m'ont aidé et conseillé à travers les démarches administratives et péripéties occasionnées par les premières cotutelles de thèse Lyon-Sherbrooke. Un gros merci à Lise Charbonneau de la Faculté des Sciences, Francine Viel et toute l'équipe du service aux étudiants internationaux de l'Université de Sherbrooke. Merci aussi à Lino, l'autre étudiant en cotutelle Lyon-Sherbrooke, qui m'a donné de bons « tuyaux ». Je n'oublie pas non plus les secrétaires Nicole Durand et Judith Camden pour leur action efficace. Enfin, Adel Rahmani et Christian Séassal pour leur soutien quant à faire avancer la cause et le bien-être des doctorants.

En plus de la cotutelle, ce travail de thèse a fait l'objet de nombreuses collaborations qui en ont grandement amélioré la qualité. Un grand merci à Gilles Patriarche du Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN) à Marcoussis pour les images TEM, sa rapidité d'action et son analyse hors pair ; à Genghzaio Xu et Yves Robach au 4^{ème} pour la formation, l'expertise et la qualité des rapports AFM; enfin, à Nicolas Chauvin, Raïssa Ray et Catherine Bru-Chevallier de l'INSA Lyon pour les premiers spectres de μ -PL et la PL à basse température de mes boîtes quantiques. Je tiens à remercier aussi Guillaume Saint-Girons et Adrien Michon du LPN avec qui j'ai eu la chance d'échanger sur la croissance des boîtes.

Je tiens à saluer globalement tous ceux avec qui j'ai travaillé à Lyon et à Sherbrooke. Un grand merci à l'équipe des épitaxieurs de l'INL: Jean-Baptiste Goure, Claude Botella et Philippe Regreny, sans qui ma thèse n'aurait pas été ce qu'elle est. Ma reconnaissance va également à Michel Garigues qui a répondu à mes nombreuses questions sur sa « manip » de PL. J'adresse aussi un grand merci à Nicolas Pauc et Dominique Drouin pour m'avoir formé à la microscopie électronique à balayage et à la CL à Sherbrooke. Nicolas, j'ai apprécié énormément ton investissement, ta compétence scientifique ainsi que ta compagnie. J'associe évidemment à ces remerciements toute l'équipe des salles blanches du CRN2 dont Jean Beerens, Pierre Lafrance, Guillaume Bertrand, Mélanie Cloutier, Etienne Grondin et Abdelatif Jaouad pour leur aide et savoir-faire.

Même si aucun des résultats concernant la dynamique des porteurs dans mes échantillons de boîtes quantiques n'est apparent dans ce manuscrit, j'ai quand même travaillé longuement sur ce sujet au département de physique à Sherbrooke. Je voudrais ainsi remercier chaleureusement Jean-François Allard, Denis Morris, Bassem Salem et Stéphane Savard qui ont été de précieux guides et compagnons dans mon apprentissage des techniques de spectroscopie femtoseconde. Merci pour leur aide, disponibilité et bonne humeur. Bien sûr, un gros merci à toute l'équipe technique du département de physique et plus particulièrement Stéphane Mélançon, Michael Lacerte, Gabriel Laliberté, Marcel Zakorzerny, Daniel Auger et Patrick Vachon pour leur compétence et aide précieuse.

Je ne peux oublier tous les doctorants, stagiaires, collègues et amis qui ont fait mon quotidien. Tout d'abord à Lyon, mes collègues du rez-de-chaussée : Loïc mon coloc, Mario, Moïra, Artur, Clément, Sébastien, Rémi et Claude. Les collègues du 4^{ème} : Gabriel, David, Nicolas. Je n'oublie rien de ces bons moments passés à jouer à « Medal », des parties de foot du vendredi midi, des pauses café du matin et de la bonne ambiance dans l'équipe. Je n'oublie pas non plus les collègues de photoniques : Jonathan, collègue de bars et de ski, ceux de l'équipe des cristaux photoniques : Fred, Salim, Badis, Lydie, et enfin ceux des organiques: Anne-Laure et Karim.

À Sherbrooke, je commencerai bien évidemment par le clan rapproché : Jacques, Nicolas, Sébastien, Aurélie, Jean-Philippe, Dominic, Olivier et David. J'ai passé en votre compagnie des moments exceptionnels au département comme en dehors (surtout), qui ont contribué à me faire aimer encore plus le Québec. Vous avez su aussi m'écouter et me soutenir de manière remarquable dans les moments les plus sombres. M'héberger aussi ! Je vous en saurais toujours gré. Mille mercis !! Comment pourrais-je aussi oublier mes partenaires de bureau ? En premier lieu, l'indétrônable Dany, étudiant honoraire du département, mon collègue de placotage, de débats animés et ma référence SWING. *Ben quin ! Mets-en !* Je n'oublie pas non plus Yann, collègue des premières heures expatrié depuis en génie et Fred, ma stagiaire... du premier séjour. Mais aussi la relève, les *p'tits pits* : Jihène, Adama, Guillaume et Sophie avec qui j'ai pris beaucoup de plaisir à discuter. Un grand merci à tous les étudiants et professeurs du département qui ont fait que l'ambiance ait toujours été agréable. Je pense entre autres à Jonathan L., Jonathan V., Behnaz, Francis, Kevin, Alexandre L., Alexandre P., Jérôme, Maxime, Jean-Charles, Marc-Antoine, Yannick, Sabeur, Marc, Philippe B.. Mais aussi aux expérimentés post-docs : Marcus, Yohan, Hamideh, Peyman et au groupe de théoriciens du rez-de-chaussée: Dominique, Giovanni, Patrick, Shila, Louis-François. Mes collègues du CRN2 en génie électrique ne sont pas en reste. Je pense à Romain pour ces fameuses rencontres « post-travail » à la Taverne Alexandre, Arnaud pour les bons souvenirs à Montréal, et Lino, ma référence « cotutelle ». Mais aussi à Julie V., Asma, Matthieu, sa femme Julie, Rémy, Maïté, Radek, Laurent. Evidemment, les collègues de mes premiers 5 à 8 mémorables : Olivier, Cédric. Et ... tellement d'autres encore !

Evidemment, je ne peux pas omettre de remercier la Famille Louchet chez qui j'ai encombré longuement le garage de mes affaires durant ces multiples déménagements entre Lyon et Sherbrooke. Je n'oublie pas non plus Vince qui m'a si souvent dépanné et hébergé sur la presqu'île! Je tiens à leur exprimer ma sincère reconnaissance pour leur accueil et gentillesse.

Enfin, mes ultimes remerciements vont à ma famille, toujours présente quand il le fallait. Vous avez fait preuve d'un soutien moral sans faille et vos encouragements constants m'ont été d'un grand secours. Je sais ce que je vous dois. À vous tous, un grand Merci !

A mes parents

Table des matières

Résumé	iv
Liste des figures	v
Liste des tableaux	xiii
Introduction	1
1 Introduction aux boîtes quantiques semi-conductrices auto-assemblées	6
1.1 Définition et propriétés des boîtes quantiques	6
1.1.1 Effet de la dimensionnalité	6
1.1.2 Confinement des porteurs	9
1.1.3 Largeurs homogène et inhomogène des boîtes quantiques	10
1.2 Fabrication de boîtes quantiques	11
1.2.1 Aperçu de quelques méthodes	11
1.2.2 Principe de formation des boîtes par auto-assemblage	13
1.2.3 Modèle énergétique de formation	14
1.3 Intérêts pour des applications nanophotoniques	17
1.3.1 Dispositifs à base de boîtes quantiques uniques	18
1.3.2 Electrodynamique quantique en cavité avec des boîtes quantiques uniques	18
1.3.3 Source de photons uniques	22
1.3.4 Sources de paires de photons intriqués	25
1.4 Le système InAs/InP	26
1.4.1 Intérêts et défis	26
1.4.2 Approches d'isolement des boîtes quantiques uniques	27
1.4.3 Revue de la croissance des boîtes quantiques d'InAs/InP(001)	29
1.5 Conclusion	32

2 Méthodes et techniques expérimentales	34
2.1 Croissance des boîtes quantiques auto-assemblées	34
2.1.1 Epitaxie par jets moléculaires	34
2.1.2 Diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante	36
2.1.3 Procédures et paramètres expérimentaux	42
2.2 Caractérisation morphologique des îlots	44
2.2.1 Microscopie à force atomique	44
2.2.2 Microscopie électronique en transmission	49
2.3 Caractérisation optique d'un ensemble de boîtes quantiques	52
2.3.1 Photoluminescence continue	52
2.4 Caractérisations optiques de boîtes quantiques uniques	53
2.4.1 Micro-Photoluminescence	53
2.4.2 Cathodoluminescence	56
3 Croissance de boîtes quantiques diluées d'InAs/InP(001) par MBE	65
3.1 Introduction	65
3.2 Influence des conditions de croissance	66
3.2.1 Epaisseur critique de la transition 2D/3D	66
3.2.2 Forme des îlots	71
3.2.3 Bilan	75
3.3 Influence des reconstructions de surface	75
3.3.1 Reconstructions de surface d'InAs	76
3.3.2 Diagramme de phases des reconstructions de surface d'InAs contraint sur InP(001)	77
3.3.3 Les bâtonnets avec la reconstruction (2×4)	80
3.3.4 Les boîtes avec la reconstruction (2×1)	81
3.3.5 Interprétations sur l'origine des formes	83
3.4 Transition bâtonnets-boîtes lors de procédés post-croissance	87
3.4.1 Introduction	87
3.4.2 Transition bâtonnets-boîtes par refroidissement sous arsenic - Voie A	88
3.4.3 Transition bâtonnets-boîtes par recuit sous arsenic à T_C - Voie B	91
3.4.4 Discussions et conclusions sur la transition bâtonnets-boîtes	95
3.5 Contrôle de la densité	96
3.5.1 Voie A : Refroidissement sous Arsenic	96

3.5.2	Voie B : Recuit à température de croissance	98
3.5.3	Voie C : Croissance directe de boîtes.....	100
3.5.4	Discussion.....	101
3.6	Encapsulation des boîtes quantiques d'InAs/InP(001)	102
3.6.1	Contexte de l'étude.....	102
3.6.2	Procédure d'encapsulation « simple-cap »	102
3.6.3	Procédure d'encapsulation « double-cap »	105
3.7	Conclusion.....	107
4	Propriétés de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001): Structure	
	électronique et transport	110
4.1	Structure électronique de boîtes quantiques uniques.....	111
4.1.1	Echantillon et spectres de μ PL.....	111
4.1.2	Influence de la puissance d'excitation.....	113
4.1.3	Influence de la taille et de la forme des boîtes sur la structure électronique ...	115
4.1.4	Bilan	117
4.2	Propriétés de transport autour de boîtes quantiques uniques	118
4.2.1	Contexte de l'étude.....	118
4.2.2	La Cathodoluminescence à basse tension d'accélération.....	119
4.2.3	Cartographie de boîtes quantiques uniques	120
4.2.4	Détermination de la longueur de diffusion des porteurs avant capture par une boîte quantique unique.....	126
4.2.5	Influence de la densité d'excitation.....	129
4.2.6	Influence de la température.....	131
4.2.7	Influence du dopage	135
4.2.8	Bilan	138
	Conclusion et perspectives	141
	Références	145
	Publications et communications orales	166

Croissance et spectroscopie de boîtes quantiques diluées InAs/InP(001) pour des applications nanophotoniques à 1,55 μm

Résumé

Ce travail porte sur la croissance épitaxiale et la caractérisation optique de boîtes quantiques d'InAs/InP(001) en faible densité en vue de la réalisation de nouveaux composants nanophotoniques émettant à 1,55 μm . Les propriétés structurales et optiques des îlots ont été corrélés pour différents paramètres de croissance d'un système d'épitaxie par jet moléculaire à sources solides. Nos résultats soulignent l'influence des reconstructions de surface d'InAs sur la forme des îlots. Des boîtes, plutôt que des bâtonnets allongés généralement observés, peuvent être directement formées dans des conditions de croissance adéquates. Une transition de forme de bâtonnets vers des boîtes est également démontrée par des traitements post-croissance sous arsenic. Les faibles densités de boîtes sont obtenues pour des faibles épaisseurs d'InAs déposées. Leur émission est facilement contrôlée à 1,55 μm par une procédure d'encapsulation spécifique appelé « double cap ». Quelques propriétés des boîtes individuelles d'InAs/InP sont ensuite évaluées. Les études de micro-photoluminescence révèlent des pics d'émission très fins et distincts autour de 1,55 μm confirmant les propriétés « quasi-atomiques » de ces boîtes uniques. Enfin, nous proposons pour la première fois une méthode à haute résolution spatiale qui permet d'étudier le transport de charges autour d'une boîte unique grâce à une technique de cathodoluminescence à basse tension d'accélération. Une mesure directe de la longueur de diffusion des porteurs avant capture dans une boîte a été obtenue. Ces résultats ouvrent de nouvelles perspectives quant à l'intégration de ces boîtes uniques dans des microcavités optiques pour la réalisation de sources de lumières quantiques à 1,55 μm .

Mots Clés

Boîtes quantiques, InAs/InP, MBE, reconstructions de surface, μPL , CL

Growth and spectroscopy of single InAs/InP(001) quantum dots for nanophotonic applications at 1.55 μm

Abstract

This thesis focus on the epitaxial growth and optical characterization of diluted InAs/InP(001) quantum dots for the realisation of new nanophotonic devices emitting at 1.55 μm . The structural and optical properties of the quantum islands are correlated to different growth parameters of a solid source molecular beam epitaxy system. Our results highlight the influence of InAs surface reconstructions on the island shape. Dots rather than elongated dashes usually observed can be directly formed by adequate growth conditions. Dash to dot shape transition is also demonstrated by post-growth treatments. Low dot densities are obtained for small InAs deposited thickness. Their emission wavelength is easily tuned to 1.55 μm using the “double cap” procedure for the growth of the InP capping layer. Optical properties of such single InAs/InP quantum dots are then evaluated. Micro-photoluminescence studies reveal sharp and well separated emission lines near 1.55 μm from single dots confirming their atom-like properties. Last, we propose for the first time a high spatial resolution method to study the carrier transport in the vicinity of a single quantum dot using a low-voltage cathodoluminescence technique. A direct measurement of the carrier diffusion length before capture into one dot has been obtained. These results open the way to the integration of these single dots into optical micro-cavities for the realisation of quantum light sources at 1.55 μm .

Key Words

Quantum dots, InAs/InP, MBE, surface reconstructions, μPL , CL

Liste des figures

- Figure 1.1. Evolution de la densité d'états $\rho(E)$ et de la structure de bande $E(k)$ en fonction de la dimensionnalité du matériau. (a) un semiconducteur massif (3D), (b) un puits quantique (2D), (c) un fil quantique (1D) et (d) une boîte quantique (0D).
.....8
- Figure 1.2. Diagramme de bande schématique d'une boîte quantique semi-conductrice de bande interdite directe E_g^2 enterrée dans une matrice de plus grand bande interdite E_g^1 . Les valeurs indiquées sont pour : la largeur du puits (L), la séparation entre la bande de valence et de conduction des deux matériaux (ΔE_C et ΔE_V), les niveaux d'énergie pour les électrons et les trous (E_e et E_h) dans la boîte quantique, l'énergie de confinement pour les électrons et les trous ($\Delta E_{conf,e}$ et $\Delta E_{conf,h}$), la fréquence de transition optique du niveau fondamental (ν_0).
.....9
- Figure 1.3. Spectres de photoluminescence d'une boîte quantique unique à différentes températures : (a) 8 K et (b) 250 K. (c) Evolution de la largeur à mi-hauteur des raies d'émission en fonction de la température. D'après [Matsuda 01] 10
- Figure 1.4. Spectres de photoluminescence à basses températures réalisés sur un nombre variable de boîtes quantiques jusqu'à une boîte unique. L'influence de la dispersion en taille des boîtes sur la largeur du spectre obtenu est mise en évidence. D'après [Caroff 05d]..... 11
- Figure 1.5. Quelques techniques de fabrication de boîtes quantiques semi-conductrices. . 12
- Figure 1.6. Principe de croissance d'îlots quantiques 3D par le mode de croissance Stranski-Krastanov. E_V et E_S désigne l'énergie de volume et l'énergie de surface respectivement..... 13
- Figure 1.7. Evolution qualitative de l'énergie de formation d'un îlot 3D ΔE à partir d'une couche 2D en fonction du volume déposée. La barrière énergétique de nucléation d'un îlot 3D est franchie pour un certain volume critique. Adapté d'après [Tersoff 94]..... 15
- Figure 1.8. Représentation schématique de l'évolution de l'énergie de formation d'un îlot ΔE en fonction de son volume pour deux formes différentes. Le diagramme montre l'existence d'une plus grande énergie de nucléation nécessaire à la formation des îlots de hauteur élevée (dôme). Adapté d'après [Caroff 05d]. .. 17
- Figure 1.9. Schéma représentant un système d'électrodynamique quantique en cavité. La boîte quantique symbolisée par un système à deux niveaux d'énergie (en vert) interagit avec le photon dans le mode optique résonnant de la cavité symbolisée par les deux miroirs en bleu. Le point en bleu foncé est un électron occupant un des deux niveaux d'énergie. Le régime de couplage fort est atteint lorsque le taux d'interaction boîte-photon (g) est plus grand que le taux de dissipation due aux pertes de photons par la cavité (κ) et par l'émission de la boîte dans

- d'autres modes au taux γ . Autrement dit, lorsque $g \gg \kappa, \gamma$. Inversement, le couplage faible se produit lorsque $g \ll \kappa, \gamma$ 19
- Figure 1.10. Exaltation de l'émission spontanée par l'effet Purcell. Le couplage faible à un mode de cavité augmente le taux d'émission spontanée par l'accroissement local de la densité de mode (b), comparée à leur densité dans le vide (a). 21
- Figure 1.11. Principe du protocole employé pour générer des photons uniques avec une boîte. (a) des paires électron-trou sont créées dans la barrière entourant la boîte par une excitation optique ou électrique pulsée. Ils sont rapidement capturés par la boîte et relaxent vers les niveaux d'énergie disponibles. (b) La recombinaison séquentielle des porteurs se fait à des énergies différentes en fonction du nombre de paires résiduelles dans la boîte. Un filtrage spectral de la raie d'émission X_n permet de sélectionner un photon unique. 23
- Figure 1.12. Images MEB de cavités semi-conductrices. (a)-(b) micropiliers, (c) micro-disque, (d)-(f) cristaux photoniques planaires. D'après [Shields 07]. 24
- Figure 1.13. Cascade radiative du bi-exciton permettant la création d'états intriqués si le dédoublement de la structure fine du biexciton est nul : $\delta \approx 0$ 25
- Figure 1.14. Images AFM (a) d'un réseau de nanotrous de 80–100 nm de diamètre et de 4–5 nm de profondeur sur une couche d'InP(001) (b) d'îlots d'InAs localisés au-dessus des trous après la croissance de 3 nm d'InP et de 0,8 MC d'InAs. D'après [Turala 09]. 28
- Figure 1.15. Localisation d'une BOÎTE pour par lithographie optique in-stu en champ lointain [Dousse 08]. 29
- Figure 1.16. Différentes formes de nanostructures d'InAs sur InP(001) : (a) fils [Gonzalez 00], (b) bâtonnets [Gendry 04], (c) boîtes [Frechengues 99a], (d) anneaux [Raz 03]. 30
- Figure 2.1. Diagramme schématique du réacteur d'épitaxie Riber 2300 en coupe transversal. Le système des pompes à vide est situé en dessous. 36
- Figure 2.2. Schéma du dispositif RHEED installé dans l'enceinte MBE (vue du dessous en perspective). 37
- Figure 2.3. Figures représentant l'intersection de la sphère d'Ewald avec le réseau réciproque d'une surface idéale (gauche) et d'une surface réelle (droite). Les conditions de Laue sont satisfaites si l'extrémité du vecteur $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}' - \mathbf{k} = \mathbf{G}_{hk}$ intercepte une tige du réseau réciproque. D'après [Bauer 92]. 38
- Figure 2.4. Diffraction en fonction de la morphologie : (a) lignes de diffraction dans le cas d'une couche plane (2D) : exemple d'une reconstruction de surface (2×4), (b) taches de diffraction caractéristiques d'une surface rugueuse (3D). Lors de la formation d'îlots 3D, l'apparition de nouveaux plans cristallins donne aux taches la forme de chevrons 'V' 39

Figure 2.5.	Mesure de l'intensité d'une fenêtre placée à l'endroit de l'apparition d'une tache de Bragg. Détermination de l'épaisseur critique H_{3D} de la transition 2D / 3D du mode de croissance. D'après [Gendry 95].	40
Figure 2.6.	Interprétation des oscillations RHEED - Evolution de l'intensité de la tache spéculaire en fonction du taux de recouvrement θ (en MC). D'après [Neave 83].	41
Figure 2.7.	Paramètres de contrôle lors de la croissance d'une couche d'InAs en MBE.	42
Figure 2.8.	Schéma de principe d'un microscope à force atomique.	45
Figure 2.9.	(a) Images AFM de différentes tailles d'un échantillon d'îlots non capés. Le balayage de la pointe AFM est réalisé suivant $\langle 100 \rangle$ c'est-à-dire à 45° de la direction de clivage $[110]$ de l'échantillon. (b) Analyse de la densité, de la hauteur et du diamètre par un algorithme de détection automatique de grains sous le logiciel Gwyddion et (c) par une méthode « manuelle » pour un échantillon à forte densité.	47
Figure 2.10.	Images AFM de boîtes descendues jusqu'à température ambiante : (a) sous 4×10^{-6} torr de P_2 , 30 s après le début de la descente sous As_2 ; (b) sous As_2 . Les conditions de croissance des boîtes sont: 2 MC/530°C/8×10 ⁻⁶ torr /0,2 MC/s suivi de 10s de recuit à 530°C.	49
Figure 2.11.	Schéma de principe du microscope électronique en transmission. Chaque faisceau diffracté par l'échantillon est focalisé en un point dans le plan focal image de l'objectif et forme un motif de diffraction caractéristique. Un diaphragme d'ouverture variable permet de sélectionner les faisceaux qui interféreront pour former l'image (d'après [Shchukin 04]).	50
Figure 2.12.	Schéma illustrant le principe de la photoluminescence.	52
Figure 2.13.	Deux techniques d'isolation spatiale de boîtes (a) par la gravure d'un mesa et (b) par une ouverture submicronique dans un masque métallique. L'excitation du laser est en rouge et la luminescence des boîtes isolées spatialement est représentée en magenta. L'émission des boîtes en dehors de l'ouverture (en noire) est bloquée par le masque.	54
Figure 2.14.	Spectres de μ PL d'un échantillon de boîtes à forte densité à travers des ouvertures variables dans un masque métallique [Gammon 98]. Le spectre d'une boîte individuelle est isolé pour une ouverture submicronique.	54
Figure 2.15.	Schéma du banc de Micro-Photoluminescence, d'après [Chauvin 06b].	55
Figure 2.16.	Représentation schématique des différents types d'électrons et rayonnements liés à l'interaction d'un faisceau d'électrons avec un solide. D'après [Lahkak 03].	57
Figure 2.17.	Schéma du dispositif de CL et de quelques types d'analyses possibles.	59
Figure 2.18.	Trajectoires de 200 électrons primaires calculées par simulations Monte-Carlo dans un substrat d'InP pour différentes énergies d'excitation. En rouge, sont	

- représentés les électrons primaires retrodiffusés et en bleu les électrons primaires absorbés dans la matrice..... 60
- Figure 2.19. (a) Vue bidimensionnelle des courbes d'isoénergie des électrons primaires définissant la forme du volume d'interaction dans InP pour 1 keV; (b) Extension spatiale du volume d'interaction après la perte de 95% de l'énergie cinétique des électrons primaires (contour cyan (a)). A 1 keV, un volume aussi petit que $(11 \times 8 \times 8 \text{ nm}^3)$ est obtenu dans l'InP. 61
- Figure 2.20. Densité de porteurs en excès normalisée en fonction de la distance pour les cas à 1D, 2D et 3D. La source située à l'origine est ponctuelle et la longueur de diffusion est fixée à 1 μm 62
- Figure 3.1. (a) Image AFM et (b) spectres de PL typiques de bâtonnets quantiques d'InAs sur InP(001) [Monat 03]. 66
- Figure 3.2. Principe de la mesure de l'épaisseur critique H_{3D} . Evolution en fonction du temps, de l'intensité d'une fenêtre placée à l'endroit d'une tache de Bragg du diagramme RHEED selon [110] dans le cas d'une transition 2D/3D du mode de croissance..... 67
- Figure 3.3. Epaisseur critique H_{3D} en fonction de la température de croissance T_c , avec $P_{As} = 2 \times 10^{-6}$ torr et $V_c = 0,2$ MC/s. 68
- Figure 3.4. Epaisseur critique H_{3D} en fonction de la pression d'arsenic (As_2) pendant la croissance, pour $T_c = 510^\circ\text{C}$ et $V_c = 0,2$ MC/s. 69
- Figure 3.5. Images AFM des îlots d'InAs formés dans les conditions de croissance repérées par les lettres A ($T_c = 480^\circ\text{C} / 6$ MC), B ($T_c = 510^\circ\text{C} / 4$ MC) et C ($T_c = 530^\circ\text{C} / 2$ MC). 72
- Figure 3.6. Diagrammes RHEED suivant les azimuths [110] et $[1\bar{1}0]$ pendant la croissance de 4 MC d'InAs sur InP pour deux conditions de croissance: (a) $510^\circ\text{C} / 2 \times 10^{-6}$ torr / 0,2 MC/s conduisant à la formation de bâtonnets et (b) $530^\circ\text{C} / 8 \times 10^{-6}$ torr / 0,2 MC/s conduisant à la formation de boîtes. Les reconstructions de surface de la surface d'InP exposée au flux d'arsenic avant le dépôt d'InAs et les épaisseurs critiques H_{3D} de la transition 2D/3D du mode de croissance sont indiquées en rouge..... 73
- Figure 3.7. Vues planes et de profil de la reconstruction $\beta_2(2 \times 4)$ sur InAs(001) montrant l'alternance des rangées des paires de dimères As et des tranchées des dimères manquants. Les cercles de couleur noir et gris représentent les atomes d'As et d'In, respectivement. La cellule unité de surface est indiquée par la région surlignée en gris foncé. D'après [Ohtake 08]. 76
- Figure 3.8. Vues planes et de profil des reconstructions : (a) $\alpha(2 \times 4)$ et (b) $\gamma(2 \times 4)$ sur InAs(001). D'après [Ohtake 08]. 77
- Figure 3.9. Diagramme de phase des reconstructions de surface d'une couche d'InAs épitaxiée sur InP(001) en fonction de la température du substrat et de la pression d'arsenic. 78

- Figure 3.10. Identification des reconstructions de surface d'InAs sur les diagrammes RHEED. Les raies d'ordre entier et fractionnaire sont indiquées ainsi que le taux de couverture d'arsenic en surface pour quelques reconstructions. 79
- Figure 3.11. Images TEM de bâtonnets d'InAs recouverts d'une couche d'InP (a) en vue plane champ clair et (b) en coupe suivant [110] en champ foncé [Gendry 04]. 80
- Figure 3.12. Représentation schématique des bâtonnets quantiques d'InAs/InP(001) déduite de l'analyse des images TEM en coupe transverse. Les dimensions caractéristiques et l'orientation des facettes sont indiquées. 80
- Figure 3.13. Image TEM en vue plane et en champ clair des îlots formés avec une reconstruction (2×1). L'échantillon est orienté en axe de zone [001]. 81
- Figure 3.14. (a) Vue agrandie d'un îlot de forme hexagonale dans le plan (001). Coupes transverses montrant des profils en forme : (b) de dôme suivant [1 $\bar{1}$ 0] avec des facettes {111} et (c) de pyramide suivant [110] avec des facettes {113}. 82
- Figure 3.15. Images TEM (a) en vue plane et (b-c) en coupe transverse selon [1 $\bar{1}$ 0] d'îlots fabriqués selon la voie C et cappés par de l'InP à environ 520°C. L'épaisseur d'InAs déposée est égale à 2 MC. 83
- Figure 3.16. Modèle du mécanisme de relaxation de la déformation induite par la reconstruction $\beta_2(2\times 4)$ de l'InAs, proposé par Krzyzewski et Jones [Krzyzewski 08]. Les flèches indiquent la direction du déplacement des atomes afin de relaxer l'énergie de contrainte. 84
- Figure 3.17. Compatibilité d'une facette (114)A à marches avec le motif d'une reconstruction $\beta(2\times 4)$. Coupes dans le plan : (a) (1 $\bar{1}$ 0) et (b) (001). Les atomes d'arsenic peuvent former trois dimères sur la terrasse (001), tandis que les atomes d'indium sur la double marche correspondent exactement à un dimère d'arsenic manquant par cellule unité. D'après [Ponchet 95b]. 85
- Figure 3.18. Énergie de formation d'une boîte quantique ΔE_{eq} et d'un bâtonnet quantique ΔE_{Qs} en fonction du rapport des flux d'éléments V/III (As/In) [Saint-Girons 06b]. 86
- Figure 3.19. Images AFM (1 μm × 1 μm) d'îlots montrant l'évolution morphologique des bâtonnets crus à 520°C (a) au cours de la descente en température (-30°C/min) sous flux d'arsenic. La commutation As/P pendant la descente en température permet de geler la morphologie de surface à environ (b) 460°C, (c) 430°C, (d) 400°C. 88
- Figure 3.20. Image TEM en vue plane d'îlots pour lesquels la coalescence a été stoppée à 430°C par encapsulation par une couche d'InP : (a) vue plane et (b) coupe transverse suivant [110]. L'épaisseur d'InAs déposé était de 1,5 MC. 89
- Figure 3.21. Images TEM d'îlots formés par refroidissement sous arsenic à 400°C : (a) vue plane (îlots non cappés) et (b) en coupe transverse suivant (îlots cappés par 10 nm d'InP). L'épaisseur d'InAs déposé était de 1,4 MC. 89

Figure 3.22.	Echantillon A : Diagrammes RHEED suivant $[1\bar{1}0]$ (a) des bâtonnets ($E_{\text{InAs}} = 1,6$ MC) après 10 s de recuit à 520°C puis (b-d) pendant la descente en température sous une forte pression d' As_2 : (b) $T = 460^{\circ}\text{C}$, (c) $T = 430^{\circ}\text{C}$, (d) $T = 400^{\circ}\text{C}$	90
Figure 3.23.	Echantillon B : Diagrammes suivant $[1\bar{1}0]$ (a) des bâtonnets ($E_{\text{InAs}} = 4$ MC) après 10 s de recuit puis (b-f) pendant la descente en température sous une forte pression d' As_2	90
Figure 3.24.	Images AFM et diagrammes RHEED suivant l'azimut $[1\bar{1}0]$ montrant l'évolution morphologique des fils en fonction du temps de recuit (a) 5 s (b) 1 min (c) 2 min (d) 4 min. Les conditions de croissance des fils sont 4 MC / 510°C / As_2 : 2×10^{-6} torr / 0,2 MC/s. Le recuit est réalisé à 510°C	92
Figure 3.25.	Images TEM de boîtes fabriquées selon la voie B avec un recuit de 4 minutes et encapsulées dans l'InP. (a) en champ clair en axe de zone $[001]$ au centre, (b) en champ sombre sur la tache sur la tache 220. Ces boîtes ont une forme pyramidale à base carrée orientée suivant $\langle 100 \rangle$. (c) zoom sur une boîte en vue plane (d) coupe transverse suivant $[110]$	93
Figure 3.26.	Images AFM et diagrammes RHEED après 4 min de recuit sous As_2 à 2×10^{-6} torr montrant l'effet de la température de recuit (a-c) sur l'évolution en forme des bâtonnets.....	94
Figure 3.27.	Densité et images AFM en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée pour des boîtes fabriquées selon la voie A.....	97
Figure 3.28.	Images TEM en vue plane des boîtes fabriquées par la voie A. L'épaisseur d'InAs déposée est égale à : (a) 1,4 MC, (b) 1,6 MC et (c) 3 MC. La pression d'arsenic lors du refroidissement est de $6-8 \times 10^{-6}$ torr.....	98
Figure 3.29.	Images AFM montrant l'évolution de la densité des boîtes en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée, pour des boîtes fabriquées selon la voie B après 4 min de recuit.....	98
Figure 3.30.	Evolution de la densité des boîtes fabriquées selon la voie B en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée.....	99
Figure 3.31.	Images AFM montrant l'évolution de la densité des bâtonnets en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée après 2 minutes de « recuit ».....	99
Figure 3.32.	Images AFM ($500 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$) montrant l'évolution des boîtes fabriquées selon la voie C en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée : 1,2 MC, 2 MC, 3 MC et 4 MC.....	100
Figure 3.33.	Evolution de la densité des boîtes fabriquées selon la voie C en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée.....	100
Figure 3.34.	Images TEM en coupe transverse suivant $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ montrant les dimensions typiques de boîtes issues de la « voie C » avant (a)-(b) et après (c)-(d) l'encapsulation par une couche d'InP « simple-cap ».....	103

- Figure 3.35. Spectres de PL à 300 K des boîtes de type «voie C » avec une encapsulation d'InP « simple-cap » de 40 nm. Les épaisseur d'InAs déposées sont : 0,8 MC, 1,2 MC, 2 MC et 4 MC..... 103
- Figure 3.36. Spectres de PL à 300 K des boîtes de type (a) « voie A » et (b) « voie B » avec une encapsulation d'InP « simple-cap » 104
- Figure 3.37. Images TEM en coupe transverse d'une structure à boîtes de type « voie A » avec une procédure d'encapsulation « simple-cap ». L'épaisseur d'InAs déposée est de 1,5 MC..... 104
- Figure 3.38. Etapes successives de l'encapsulation des boîtes d'InAs/InP par la méthode du « double-cap ». D'après [Paranthoen 01]. 105
- Figure 3.39. Spectres de PL à 300 K des boîtes formées selon la « voie C » avec une encapsulation d'InP « double-cap » en fonction de l'épaisseur du premier cap d'InP comparé à une encapsulation simple cap (SC). 106
- Figure 3.40. Spectres de PL à 300 K des boîtes formées selon la « voie B » avec une encapsulation d'InP soit « simple-cap », soit « double-cap » pour des structures à 1 plan de boîtes et des structures empilées à 7 et 20 plans de boîtes. La densité de boîtes est modifiée avec l'épaisseur d'InAs déposée entre 0,8 et 6 MC. La longueur d'onde d'émission visée est 1,55 μm et l'épaisseur du premier cap est d'environ 1,7 nm..... 107
- Figure 3.41. Diagramme de « phases » montrant les différentes formes d'îlots généralement obtenues en fonction des différents procédés (croissance directe ou « post-croissance ») utilisés et des reconstructions de surface associées de l'InAs. . 108
- Figure 4.1. (a) Image AFM de boîtes diluées non cappées. (b) Image TEM en coupe transverse suivant $[1\bar{1}0]$ montrant une boîte caractéristique de l'échantillon étudié. Cette image révèle aussi la présence d'une couche de mouillage. (c) Spectre de macroPL d'un ensemble de boîtes (en noir) dont la distribution correspond à des fluctuations de monocouches de la hauteur (f7-f11). Le pic de la couche de mouillage (CM) à 1140 meV n'est pas montré. En dessous, les spectres de μPL de trois boîtes uniques acquis à travers une ouverture submicronique. 112
- Figure 4.2. (a) Spectres de $\mu\text{-PL}$ à 8K d'une boîte unique en fonction de la puissance d'excitation. L'émission de l'exciton (X) apparaît d'abord à 838,2 meV suivie de celle du biexciton (2X) à 834,2 meV..... 113
- Figure 4.3. Emissions de l'état fondamental (s-shell) et du premier état excité (p-shell) séparées de 90 meV. Les pics 3X et 4X correspondent à la recombinaison du 3^{ème} et 4^{ème} exciton neutre séparés de 5,9 meV..... 114
- Figure 4.4. A gauche, schéma de la structure préparée par MBE. Au centre, image AFM des boîtes non capées en faible densité. A droite, images TEM en vue plane et coupe transverse des boîtes obtenues par ce procédé..... 121
- Figure 4.5. Cartographie de CL d'un échantillon de boîtes d'InAs/InP(001) en faible densité obtenue à 1 kV et 300 K en mode panchromatique avec un filtre passe

- haut coupant à 1,1 μm . L'intensité de luminescence sur l'image correspond aux boîtes émettant entre 1,1 et 1,65 μm tel que mentionné par le spectre de CL en insert. 122
- Figure 4.6. (a) Images CL de la couche de mouillage (CM) à 980 nm (fentes 20/40 μm), et de toutes les boîtes détectables en mode panchromatique + filtre, obtenues à 5K. (b) Ces mêmes images colorisées en bleu et rouge respectivement avec un contraste rehaussé afin de mieux distinguer les zones luminescentes. (c) Superposition des images de la CM et des boîtes montrant des anti-corrélations spatiales..... 124
- Figure 4.7. Représentation schématique de la mesure de longueur de diffusion des porteurs par une boîte unique. 126
- Figure 4.8. (a) Image CL d'une boîte unique en mode panchromatique à 1 keV, 3 nA, 300K. La zone balayée fait environ 1,6 \times 1,2 μm^2 . (b) Profil d'intensité suivant [100] lissé par la fonction en 1/csch(R/L_d) qui permet d'extraire L_d. 127
- Figure 4.9. Longueur de diffusion en fonction du taux de génération et du courant sonde à 1 kV et 300 K. Une mesure a été faite à 3kV et 0,42 nA. Les barres d'erreurs correspondent à la déviation standard à la moyenne. 130
- Figure 4.10. Longueurs de diffusion des porteurs L_d avant capture par les boîtes en fonction de la température. Le graphique donne la valeur moyenne sur plusieurs mesures de boîtes ainsi que la déviation standard représenté par les barres d'erreurs. 132
- Figure 4.11. Spectres de CL de la couche de mouillage (a) et des boîtes (b) du même échantillon en fonction de la température. (c) Dépendance en température de l'intensité intégrée normalisée de la CM et des boîtes. (d) Evolution en température de type Arrhenius de l'intensité des boîtes et de la CM..... 134
- Figure 4.12. Schéma de la structure à boîte dopée aux électrons préparée par MBE..... 135
- Figure 4.13. Image CL de boîtes d'InAs/InP en faible densité sur un échantillon dopé aux électrons (Si : N_A+N_D = 1 \times 10¹⁹ cm⁻³) obtenue à 1 kV et 293 K en mode panchromatique. Les taches sont étirées suivant la direction [1 $\bar{1}$ 0] indiquant une anisotropie de diffusion. En insert, le spectre de CL associé où l'émission de la couche de mouillage (CM) est bloquée par un filtre passe haut coupant à 1,1 μm 136
- Figure 4.14. Image de CL sur une boîte isolée (à gauche) et profils associés suivant [1 $\bar{1}$ 0] et [110] (à droite). Les longueurs de diffusion sont évaluées suivant les directions [110] et [1 $\bar{1}$ 0]..... 137
- Figure 4.15. Images RHEED suivant [1 $\bar{1}$ 0] et [110] de la surface d'InAs après 4 min de recuit sous As à 510°C. Les taches lumineuse indiquent clairement la formation de boîtes. 138

Liste des tableaux

- Tableau 2.1 Séquences typiques des caches pour la croissance d'un échantillon de boîtes d'InAs (a) non capé pour observations par AFM et (b) capé par une couche d'InP pour la PL. Légende : AC : Arrêt de Croissance ; SW : « switch » : commutation des caches éléments V ; DT : Descente en Température ; TA : Température Ambiante. L'arrêt de croissance et la descente en température se fait sous atmosphère d'éléments V..... 44
- Tableau 4.1 Comparatif des énergies d'exciton (E_X), de liaison du biexciton (ΔE_{X-2X}) et de séparation entre le 1^{er} niveau excité et le niveau fondamental (ΔE_{S-P}) pour différents îlots d'InAs crus sur substrat d'InP(001) planaire ou nanostructuré. (* : tailles mesurées par AFM; <...> : moyenne ; n.r = non renseigné)..... 116

Introduction

Les boîtes quantiques semi-conductrices sont des nanostructures cristallines qui ont attiré un immense intérêt ces deux dernières décennies en raison de leurs propriétés physiques remarquables et de leurs applications potentielles en micro et optoélectronique. Dans de telles structures, les porteurs de charges (électrons et trous) sont confinés dans les trois directions de l'espace et leurs niveaux d'énergie sont discrets, ce qui leur vaut parfois l'appellation d'« atomes artificiels » en phase solide. Concrètement, ce sont de petites inclusions d'un matériau semi-conducteur de petite bande interdite piégées dans une matrice d'un semi-conducteur de bande interdite plus large. Des effets de quantification de l'énergie des états électroniques apparaissent lorsque la taille de ces structures est plus faible que la longueur d'onde de de Broglie associée au mouvement de l'électron dans le matériau, soit quelques dizaines de nanomètres. La quantification dans les trois dimensions de l'espace aboutit à la discrétisation de la densité d'états d'énergie et à l'apparition de propriétés singulières.

Parmi les techniques de fabrication, la croissance des boîtes quantiques par auto-assemblage selon le mode de croissance Stranski-Krastanov s'est révélée être bien adaptée en regard de la grande qualité structurale et optique des structures obtenues. Ce mode est basé sur la croissance d'un matériau fortement désaccordé ($\Delta a/a > 2\%$) par rapport à un substrat hôte. La formation de boîtes quantiques résulte de la relaxation élastique de la contrainte accumulée lors du dépôt de ce matériau. Le contrôle précis des paramètres de croissance permet d'ajuster, dans une certaine mesure, la densité, la composition, la forme et les dimensions des boîtes quantiques, et ce pour plusieurs systèmes de semi-conducteurs (InAs/GaAs, Ge/Si, InAs/InP, etc...). Cette méthode présente en plus l'avantage d'être compatible avec les procédés fabrications industriels et de pouvoir les intégrer facilement dans des structures plus complexes à vocation électronique ou photonique.

Les propriétés « quasi atomiques » de ces boîtes quantiques auto-assemblées ont tout d'abord été exploitées dans des composants optoélectroniques utilisés dans le domaine des télécommunications optiques (lasers, modulateurs, amplificateurs, photodétecteurs). La motivation principale portait sur l'amélioration des performances des composants à base de puits quantiques. Des fortes densités de boîtes, un très bon contrôle des dimensions et de la

dispersion en taille sont nécessaires pour ce type d'applications. Dès 1990, les premiers travaux portant sur la croissance des boîtes quantiques d'InAs/GaAs ont montré la difficulté à contrôler précisément leurs caractéristiques structurales et optiques. Néanmoins, des progrès significatifs ont été réalisés depuis une dizaine d'années. A titre d'exemple, les diodes lasers à boîtes quantiques d'InAs/GaAs peuvent désormais surpasser celles à base de puits quantiques en regard du courant de seuil d'émission laser, de l'insensibilité à la température et de la vitesse de modulation du gain. La commercialisation de ces dispositifs a même dernièrement été entreprise^{1,2,3}.

Plus récemment, les avancées dans le domaine de la cryptographie quantique et de l'informatique quantique ont aussi suscité l'intérêt des recherches sur l'emploi d'une seule boîte quantique comme matériau actif dans des sources de lumière dites non classiques. En effet, une boîte quantique à la propriété d'émettre spontanément des photons un par un de même énergie lorsqu'elle se désexcite. Intégrée adéquatement dans une microcavité photonique (résonateur dont les dimensions sont de l'ordre de la longueur d'onde), elle peut générer de manière efficace des photons uniques ou des paires de photons intriqués à la demande. Ce type de dispositifs quantiques encore expérimentales pourrait constituer une des briques nécessaires à la mise en place de nouveaux systèmes de communication et d'information quantique. Ils font donc l'objet d'intenses recherches actuellement.

Dans cette perspective, le but poursuivi par de nombreuses équipes de recherche internationales est la réalisation de sources solides, compactes, intégrables, efficaces, pompée électriquement et capables de générer des photons uniques ou intriqués émettant aux longueurs d'onde des télécommunications optiques. Plusieurs démonstrations de dispositifs ont été réalisées avec des boîtes quantiques d'InAs/GaAs, système référence. Cependant, la longueur d'onde d'émission de ces boîtes quantiques est limitée actuellement à 1,3 μm , alors que la gamme de longueur d'onde des télécommunications optiques à longue distance est située autour de 1,55 μm (minimum d'atténuation des fibres optiques). Les boîtes quantiques

¹ <http://www.qdlaser.com>

² <http://www.innolume.com>

³ <http://www.v-i-systems.com>

d'InAs/InP permettent d'atteindre facilement cette longueur d'onde, c'est pourquoi elles suscitent un important travail de développement.

Dans le groupe « Hétéroépitaxie et Nanostructures » de l'Institut des Nanotechnologies de Lyon (INL), des efforts importants ont été consacrés à la croissance auto-assemblée d'îlots quantiques d'InAs sur InP(001) dans un réacteur d'épitaxie à jets moléculaires à sources solides. La caractéristique principale de ce système est que le mode de croissance Stranski-Krastanov conduit à une forte densité d'îlots très anisotropes en forme : les fils ou bâtonnets quantiques, allongés suivant la direction cristallographique $[1\bar{1}0]$. Les projets de recherche menés jusqu'à maintenant à l'INL se sont principalement concentrés sur l'optimisation de la croissance de bâtonnets quantiques pour viser des applications requérant de forte densité et une faible dispersion en taille : photodétecteurs infrarouges intrabandes et micro-sources lasers à bas seuil. Cependant, durant ces travaux, il est apparu que des îlots plus isotropes et en plus faible densité pouvaient être obtenus par coalescence de bâtonnets pendant leur refroidissement sous pression d'arsenic. Cette observation a été à l'origine de ce travail de thèse pour produire des boîtes quantiques d'InAs en faible densité sur InP(001).

L'objectif de mon travail de thèse a donc consisté tout d'abord à maîtriser la forme des îlots, à réduire la densité à quelques boîtes par μm^2 et à contrôler leur émission autour de 1,55 μm . Une compréhension des mécanismes de croissance gouvernant la formation des îlots était nécessaire. Une étude systématique en fonction des conditions de croissance a donc été entreprise. Elle a permis de dégager des conditions de croissance pour produire des boîtes quantiques en faible densité. Dans un second temps, quelques propriétés optiques de boîtes quantiques uniques ont été évaluées par microphotoluminescence et par cathodoluminescence afin de s'assurer de la qualité des structures obtenues.

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres.

Le premier chapitre vise à donner une introduction aux boîtes quantiques auto-assemblées. L'accent est mis sur la spécificité de leurs propriétés et l'intérêt de les utiliser dans des applications nanophotoniques. Le principe de fonctionnement d'une source de photons uniques et d'une source de paires de photons intriqués sera notamment détaillé. L'intérêt des boîtes quantiques d'InAs/InP sera ensuite évoqué dans cette perspective applicative tout en soulignant les nombreux défis technologiques à relever. Enfin, une brève revue de la croissance dans ce système sera présentée.

Une description succincte des techniques de croissance et de caractérisation utilisées dans cette étude est présentée au chapitre 2. Une attention particulière est consacrée à la cathodoluminescence à basse tension d'accélération, technique à balayage de sonde plus méconnue mais qui offre pourtant une haute résolution spatiale et permet une caractérisation de boîtes quantiques individuelles.

Les résultats expérimentaux concernant la croissance d'îlots quantiques d'InAs/InP(001) sont exposés au chapitre 3. Nous montrerons en particulier l'importance des énergies de surface, via les reconstructions de surface, dans ce système faiblement contraint pour contrôler la forme des nanostructures. Les procédures pour aboutir à de faibles densités de boîtes et à leur émission autour de 1,55 μm seront ensuite décrites.

Enfin, le chapitre 4 présentera quelques propriétés de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001) évaluées à l'aide de deux techniques de caractérisation optique à haute résolution spatiale. Une première partie est consacrée à l'étude spectroscopique de boîtes uniques par micro-photoluminescence à basse température. La seconde partie traitera du transport de porteurs de charge autour de boîtes uniques par cathodoluminescence. Nous proposons une méthode originale permettant de mesurer directement la longueur de diffusion des porteurs dans la couche de mouillage aux alentours d'une boîte quantique unique à partir de cartographies d'intensité de cathodoluminescence.

Ce travail de thèse a été effectué conjointement à l'Institut des Nanotechnologie de Lyon sur le site de l'École Centrale de Lyon (France) et à l'Université de Sherbrooke au Québec (Canada).

Chapitre 1

Introduction aux boîtes quantiques semi-conductrices auto-assemblées

Equation Chapter (Next) Section 1 Nous présentons dans ce chapitre une introduction aux boîtes quantiques semi-conductrices auto-assemblées. Dans un premier temps, une description sommaire des propriétés physiques, de la méthode de fabrication par auto-assemblage et de l'intérêt des boîtes quantiques pour quelques applications nanophotoniques est exposée. Une attention particulière est notamment consacrée aux sources de lumière non classiques basées sur l'émission d'une boîte quantique insérée dans un microrésonateur optique. Dans un second temps, une synthèse des résultats concernant le système InAs/InP est faite en justifiant les avantages mais également les difficultés inhérentes à la croissance de boîtes dans ce système.

1.1 Définition et propriétés des boîtes quantiques

1.1.1 Effet de la dimensionnalité

Dans un cristal semi-conducteur massif, les porteurs de charge sont libres de se déplacer suivant les trois dimensions de l'espace. Les fonctions d'onde des porteurs sont étendues sur tout le volume du matériau et leurs énergies se répartissent selon des bandes. Lorsque les dimensions du matériau sont plus petites que la longueur d'onde de de Broglie associée à

l'électron, on note un changement drastique des propriétés électroniques et optiques du matériau lié à l'apparition d'effets quantiques. Cette longueur d'onde λ_B est donnée par

$$\lambda_B = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{2m_{\text{eff}}E}} \quad (1.1)$$

avec m_{eff} la masse effective de l'électron dans le matériau semi-conducteur, E l'énergie de l'électron et h la constante de Planck. Pour que la quantification soit observable, cette énergie E doit être supérieure à l'énergie thermique $k_B T$ (~ 26 meV à température ambiante). La longueur d'onde associée est appelée longueur d'onde de de Broglie thermique et donnée par la relation [Bimberg 99] :

$$\lambda_{\text{th}} = \frac{h}{\sqrt{3m_{\text{eff}}k_B T}} \quad (1.2)$$

Ainsi, les effets quantiques apparaissent à des dimensions inférieures à 41 nm à 300 K pour un cristal massif d'arséniure d'indium (InAs) par exemple.

La Figure 1.1 résume l'effet de la dimensionnalité du matériau sur la structure de bande d'énergie permise et sur la densité d'états contenus dans ces bandes électroniques. Pour un matériau massif (3D), la densité d'états en énergie prend la forme suivante dans l'approximation de bandes paraboliques :

$$\rho_{3D}(E) \propto \sqrt{E - E_g} \quad (1.3)$$

Lorsque les porteurs sont confinés dans une direction de l'espace (z par exemple) sur une dimension inférieure à leur longueur d'onde de de Broglie, les niveaux d'énergie de cette structure 2D appelée puits quantique, sont discrétisés suivant cette direction. Ce confinement quantique conduit à une modification de la densité d'états qui prend une forme « en marches d'escalier » et s'exprime comme

$$\rho_{2D}(E) \propto \sum_{n_z} \Theta [E - (E_g + E_{n_z})] \quad (1.4)$$

où Θ est la fonction de Heavyside et E_{n_z} est l'énergie des niveaux discrétisés n suivant z .

Dans le cas d'un matériau 1D appelé fil quantique, le confinement est réalisé dans deux directions de l'espace (y et z par exemple). De la même manière que dans le puits quantique, il existe une discrétisation de l'énergie suivant ces deux directions et la densité d'états s'écrit sous la forme

$$\rho_{1D}(E) \propto \sum_{n_y, n_z} \frac{1}{\sqrt{E - (E_g + E_{n_y} + E_{n_z})}} \quad (1.5)$$

Enfin, pour un confinement des charges dans les trois directions de l'espace (0D), la densité d'états prend la forme de pics de Dirac. Elle devient totalement discrète et s'exprime par

$$\rho_{0D}(E) \propto \sum_{n_x, n_y, n_z} \delta[E - (E_g + E_{n_x} + E_{n_y} + E_{n_z})] \quad (1.6)$$

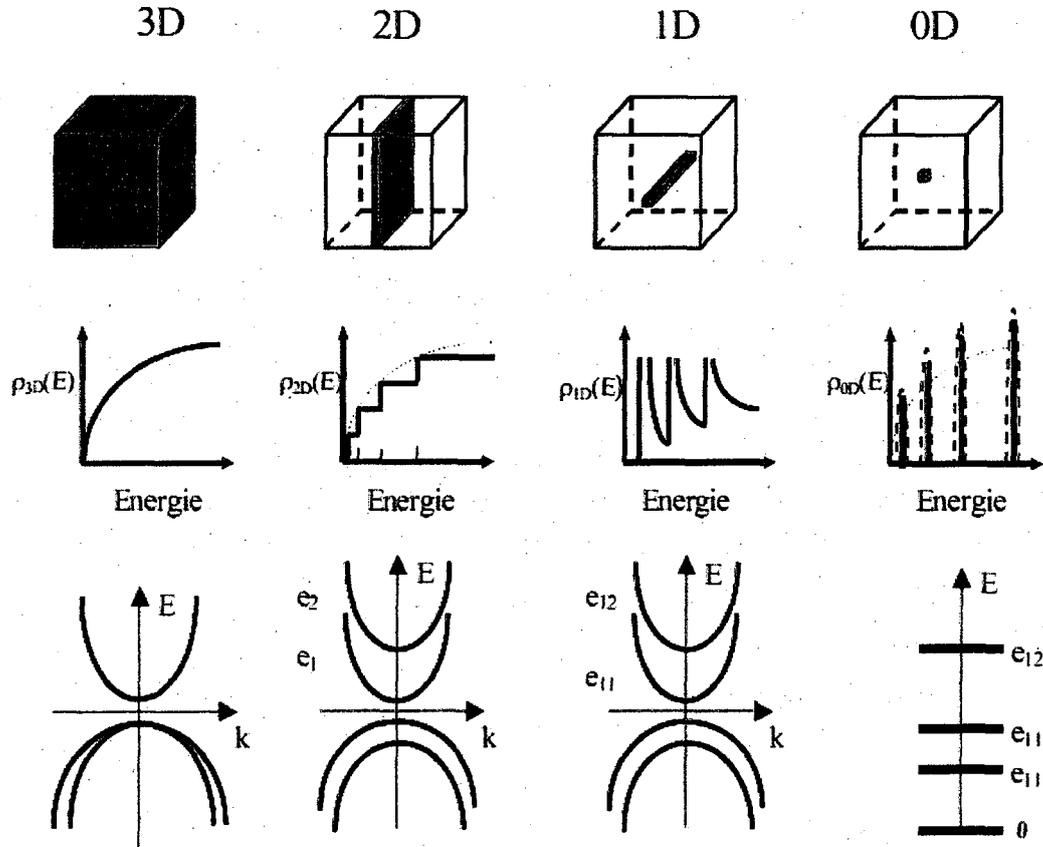


Figure 1.1. Evolution de la densité d'états $\rho(E)$ et de la structure de bande $E(k)$ en fonction de la dimensionnalité du matériau. (a) un semiconducteur massif (3D), (b) un puits quantique (2D), (c) un fil quantique (1D) et (d) une boîte quantique (0D).

Ces structures tridimensionnelles de tailles nanométriques donnent naissance à un spectre en énergie discret et sont appelés boîtes quantiques (BQs) ou points quantiques. On leur donne aussi le nom d'« atomes artificiels » à cause de la discrétisation de leurs états d'énergie électronique équivalente à celle d'un atome [Ashoori 96, Alferov 98]. Une des principales qualités des boîtes quantiques par rapport aux atomes réside dans la possibilité de contrôler la structure des niveaux d'énergie par le contrôle de leurs dimensions. On peut ainsi facilement contrôler l'énergie d'émission des transitions, ce qui en fait des émetteurs intéressants pour des applications optoélectroniques d'autant plus que la discrétisation des états permettrait d'améliorer les performances de ces dispositifs. Une forte augmentation de la force

d'oscillateur et de l'énergie de liaison de l'exciton est notamment attendue [Arakawa 82]. Mais au-delà de la simple analogie, les boîtes quantiques sont des nanostructures composées de quelques milliers d'atomes avec des propriétés et un comportement distincts notamment à travers le couplage avec leur environnement cristallin. Cette description de « quasi-atome » a donc ses limites.

1.1.2 Confinement des porteurs

Pour obtenir des boîtes quantiques, il faut donc confiner les porteurs dans les trois directions de l'espace. Le principe consiste à piéger de petites inclusions d'un matériau semi-conducteur de petite bande interdite dans une matrice de bande interdite plus large [Petroff 01]. Les états électroniques de bande de conduction (respectivement de bande de valence) sont situés à plus basse (respectivement plus haute) énergie que le continuum d'états du matériau semi-conducteur matrice (voir Figure 1.2). A cause de cette configuration de bande particulière, une boîte quantique est un puits de potentiel à la fois pour les électrons et les trous. Les niveaux d'énergie confinés dans les boîtes dépendent évidemment du choix du matériau semi-conducteur, de la géométrie et de la taille de la boîte mais aussi du matériau environnant qui joue sur la hauteur de barrière de potentiel. Pour des applications

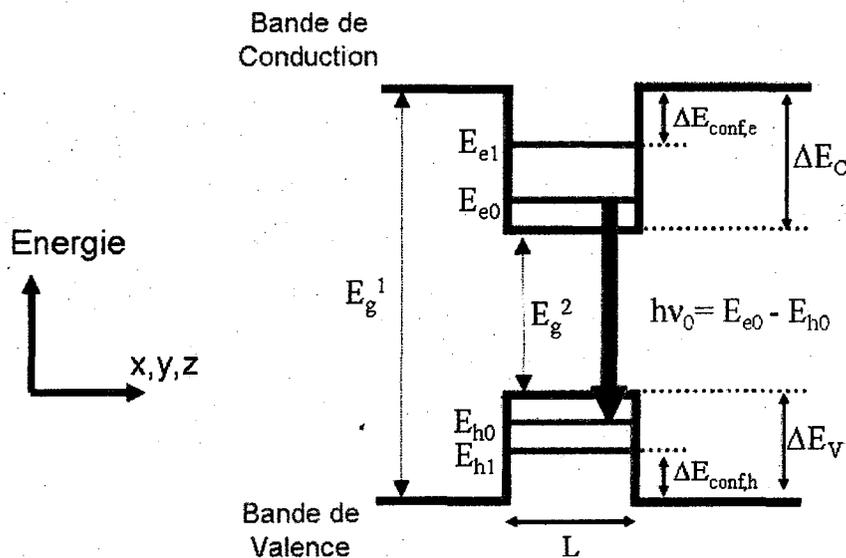


Figure 1.2. Diagramme de bande schématisé d'une boîte quantique semi-conductrice de bande interdite directe E_g^2 enterrée dans une matrice de plus grand bande interdite E_g^1 . Les valeurs indiquées sont pour : la largeur du puits (L), la séparation entre la bande de valence et de conduction des deux matériaux (ΔE_C et ΔE_V), les niveaux d'énergie pour les électrons et les trous (E_e et E_h) dans la boîte quantique, l'énergie de confinement pour les électrons et les trous ($\Delta E_{conf,e}$ et $\Delta E_{conf,h}$), la fréquence de transition optique du niveau fondamental (ν_0).

optoélectroniques, le choix du système de matériaux se fera par exemple pour privilégier une émission lumineuse des boîtes aux longueurs d'ondes des télécommunications optiques (1,3 μm et 1,55 μm), dans le domaine du visible (0,4 μm à 0,8 μm), ou encore dans le domaine du moyen infrarouge (2 à 5 μm).

1.1.3 Largeurs homogène et inhomogène des boîtes quantiques

Les boîtes quantiques ayant un spectre discret d'énergie, la largeur de raie d'une transition optique est faible. La durée de vie radiative des porteurs τ donne une limite inférieure pour la largeur de la raie d'émission Γ dite homogène, qui est donnée selon la relation d'incertitude d'Heisenberg par $\Gamma \approx \hbar/\tau$. Sachant que le temps radiatif typique dans une boîte quantique semi-conductrice est l'ordre de $\tau \sim 1$ ns, la largeur homogène devrait être très faible, $\Gamma \sim 1$ μeV . Des études de spectroscopie optique de boîtes uniques isolées par des étapes technologiques ont confirmé la structure quasi-atomique des boîtes [Marzin 94, Grundmann 95, Matsuda 01]. Un profil lorentzien et des largeurs de raies homogènes de quelques μeV ont en effet été obtenues à basse température (Figure 1.3(a)). En supposant que ces largeurs de raie sont homogènes, leur valeur est faiblement perturbée par la dispersion de paires électron-trou avec les phonons acoustiques et optiques ou par des impuretés. Par contre, celle-ci augmente avec la température et avec la densité de porteurs jusqu'à atteindre quelques dizaines de meV à température ambiante (Figure 1.3(b) et (c)).

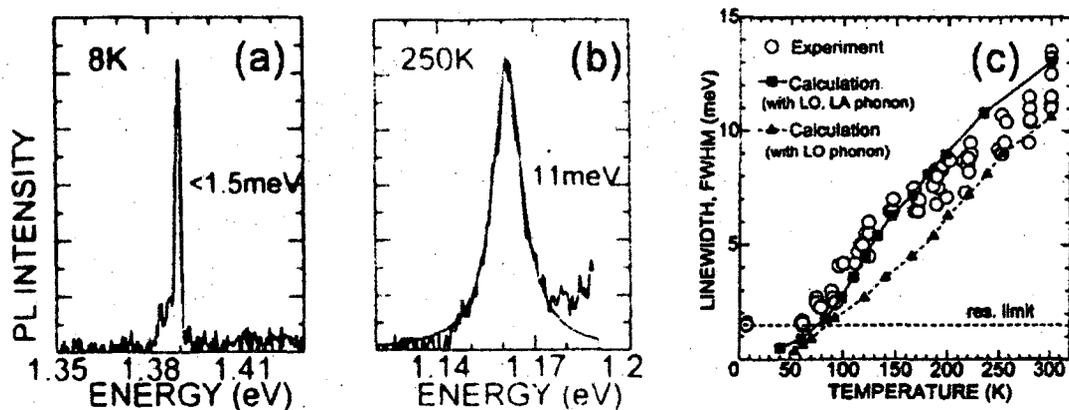


Figure 1.3. Spectres de photoluminescence d'une boîte quantique unique à différentes températures : (a) 8 K et (b) 250 K. (c) Evolution de la largeur à mi-hauteur des raies d'émission en fonction de la température. D'après [Matsuda 01]

Ce comportement en température est encore gouverné par le couplage des porteurs avec les modes de vibration du réseau cristallin environnant mais aussi par les effets d'interactions

coulombiennes entre les porteurs dans les boîtes [Besombes 01, Kammerer 02]. Cet élargissement homogène important à haute température restreint donc le concept d'atome artificiel pour les boîtes quantiques.

Généralement, un grand nombre de boîtes quantiques est sondé et leur dispersion en taille conduit à un élargissement important des pics d'émission ou d'absorption. Cet élargissement a cette fois un profil gaussien et est qualifié d'inhomogène. Il dépend du nombre de boîtes, de leurs formes, de leurs dispersions et de la technique de fabrication. Une illustration expérimentale de l'élargissement inhomogène est présentée par des pics de photoluminescence d'un ensemble de boîte sur la Figure 1.4. La largeur à mi-hauteur du pic à basse température est de l'ordre de quelques dizaines de meV pour un ensemble de boîtes auto-assemblées comparée à quelques μeV pour une seule boîte.

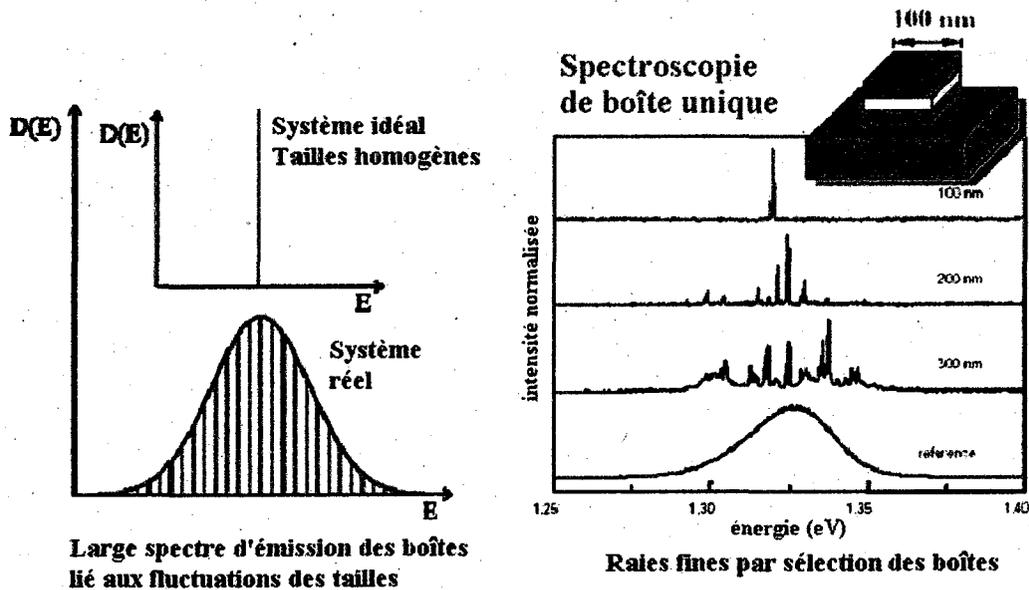


Figure 1.4. Spectres de photoluminescence à basses températures réalisés sur un nombre variable de boîtes quantiques jusqu'à une boîte unique. L'influence de la dispersion en taille des boîtes sur la largeur du spectre obtenu est mise en évidence. D'après [Caroff 05d].

1.2 Fabrication de boîtes quantiques

1.2.1 Aperçu de quelques méthodes

Différentes méthodes de fabrication existent pour réaliser des boîtes quantiques. La Figure 1.5 présente quelques techniques de fabrication de telles nanostructures semi-conductrices. La première méthode étudiée au début des années quatre-vingt, a été la

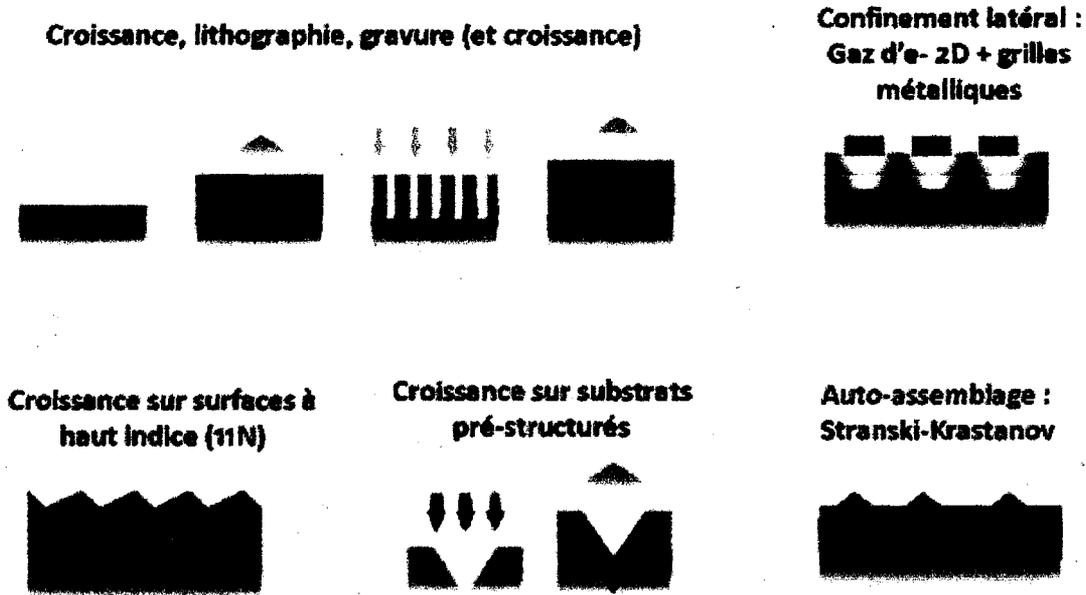


Figure 1.5. Quelques techniques de fabrication de boîtes quantiques semi-conductrices.

fabrication de boîtes par lithographie et gravure de puits quantique. Cette méthode présentait toutefois plusieurs inconvénients: il était difficile d'atteindre de faibles dimensions latérales (< 20 nm) et leur surface souffrait de nombreux défauts nuisibles pour les propriétés optiques. De plus, ce procédé était lourd à mettre en place, peu reproductible et onéreux. D'autres techniques alternatives ont vu le jour comme le confinement latéral électrostatique d'un puits quantique par des grilles métalliques en surface, la croissance de boîtes sur des surfaces de hauts indices ou sur des substrats pré-structurés.

Aujourd'hui, la fabrication des boîtes quantiques semi-conductrices se fait essentiellement par croissance auto-assemblée selon le mode de croissance Stranski-Krastanov (SK) dans des réacteurs d'épitaxie par jets moléculaires (EJM ou MBE pour Molecular Beam Epitaxy) ou de dépôts chimiques en phase vapeur d'organométalliques (MOCVD). Elle consiste à utiliser un mode de croissance de couches monocristallines contraintes par une différence de paramètre de maille avec le substrat, qui conduit spontanément à la formation d'îlots tridimensionnels dits « îlots quantiques ». C'est une méthode directe de fabrication de nanostructures quantiques, compatible avec les techniques d'intégration de la micro-électronique. Ce mode de croissance épitaxiale a été observé pour la

première fois sur des puits contraints d'InAs/GaAs dans un réacteur MBE en 1985 [Goldstein 85]. Son principe est détaillé dans la section suivante.

1.2.2 Principe de formation des boîtes par auto-assemblage

Le principe de formation des boîtes quantiques auto-assemblées repose sur le mode de croissance SK de couches contraintes tel que schématisé sur la Figure 1.6. Cette méthode consiste à déposer un matériau présentant un paramètre de maille (a_c) plus grand que celui du substrat cristallin (a_s). Dans ce cas, le matériau épitaxié est en compression dans le plan de croissance et est soumis à une contrainte σ .

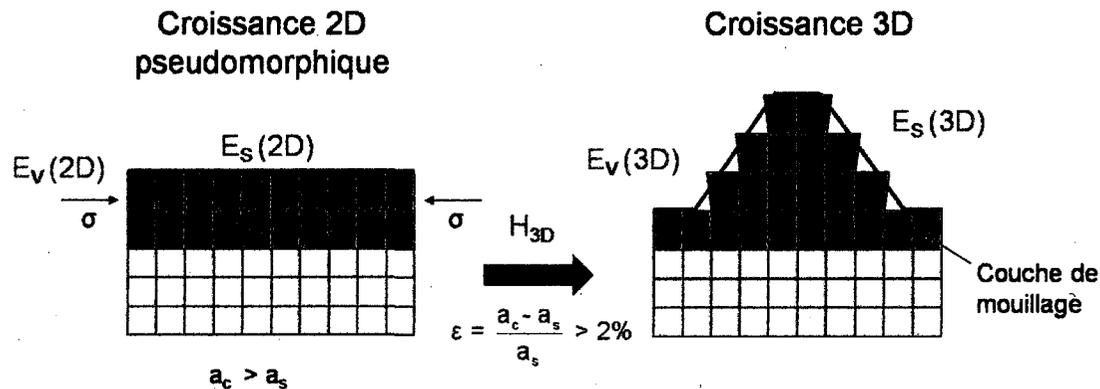


Figure 1.6. Principe de croissance d'îlots quantiques 3D par le mode de croissance Stranski-Krastanov. E_v et E_s désigne l'énergie de volume et l'énergie de surface respectivement.

Dans les premiers stades du dépôt, la croissance des premières monocouches se fait de façon pseudomorphique c'est-à-dire en s'adaptant au paramètre de maille du substrat. La couche croît de manière bidimensionnelle (2D). L'énergie élastique accumulée augmente linéairement avec l'épaisseur déposée. Elle s'écrit par unité de surface d'après les lois de l'élasticité linéaire comme $E_{el} = \lambda \cdot \epsilon^2 \cdot h$, où ϵ est le désaccord de maille de paramètre de maille entre le matériau et le substrat, λ est un coefficient élastique dépendant du matériau et h est l'épaisseur de la couche déposée. Au-delà d'une épaisseur critique (H_{3D}), l'énergie accumulée va se relaxer. Deux mécanismes sont alors possibles: soit un mécanisme de relaxation plastique intervient par la formation de dislocations dans la couche 2D, soit une relaxation élastique s'effectue avec la formation spontanée d'îlots tridimensionnels (3D) de tailles nanométriques. Dans ce dernier cas, obtenu pour des conditions de croissance propices, ces nanostructures sont exemptes de défauts structuraux : elles forment des îlots quantiques

cohérents. Il faut noter aussi la présence d'une couche 2D résiduelle appelée couche de mouillage après leur formation. Si la croissance des îlots se poursuit, une relaxation plastique apparaît, au-delà d'un volume critique, créant des dislocations au bord des îlots. Ces îlots quantiques sont alors incohérents. Une fois les îlots formés, ils sont recouvertes d'une couche d'encapsulation de sorte qu'ils soient enterrés dans un matériau de bande interdite plus large afin de former des boîtes quantiques. Plusieurs systèmes de matériaux contraints existent et ont été exploités pour la formation de boîtes [Stangl 04]. Par exemple, le système de référence InAs/GaAs(001) présente un désaccord de 6,7 %. Il s'agit du système semi-conducteur III-V le plus étudié tant au niveau de la croissance que de la modélisation. Le système InAs/InP ($\epsilon \sim 3,2\%$) moins étudié fait l'objet de notre étude.

Pour utiliser ces boîtes dans des applications optoélectroniques, il est nécessaire de contrôler leur taille, leur dispersion en taille, leur densité et éventuellement leur localisation spatiale. Cela nécessite donc de maîtriser les différents paramètres de la croissance. La taille et la forme des îlots ainsi que leur densité dépendent, entre autres, de la quantité de matière déposée, du désaccord de paramètre de maille entre le substrat et le matériau épitaxié, de la température du substrat, de la vitesse de croissance et de la pression d'éléments V.

1.2.3 Modèle énergétique de formation

La formation d'îlots par le mode de croissance SK peut être expliquée en terme énergétique. En effet, la transition 2D/3D du mode de croissance résulte d'une compétition entre la diminution de l'énergie élastique résultant de la relaxation partielle de la contrainte permise par les facettes libres des îlots et de l'augmentation de l'énergie de surface résultant de la création de ces facettes. Elle intervient lorsque le gain en énergie élastique devient supérieur au coût en énergie de surface de la couche.

Le bilan énergétique de la couche contrainte permet de déduire, à volume de matière constant, la forme et la taille d'un îlot à l'équilibre. Cette configuration optimale est atteinte lorsque l'énergie totale du système est minimale. Le gain en énergie totale du système ΔE due à la formation d'un îlot c'est-à-dire la différence d'énergie entre un îlot (état final) et une couche 2D contrainte (état initial), peut s'écrire simplement sous la forme :

$$\Delta E = \Delta E_{\text{él.}} + \Delta E_{\text{surf.}} \quad (1.7)$$

où $\Delta E_{\text{él.}}$ est le gain en énergie élastique lié à la relaxation partielle de la contrainte ($\Delta E_{\text{él.}} = E_{\text{él.}}^{3D} - E_{\text{él.}}^{2D} < 0$) et $\Delta E_{\text{surf.}}$ est le coût en énergie de surface dû à la formation des

facettes ($\Delta E_{\text{surf.}} = E_{\text{surf.}}^{3D} - E_{\text{surf.}}^{2D} > 0$). Tersoff et coll. ont montré que ces deux termes peuvent s'exprimer en fonction du volume et des surfaces de l'îlot [Tersoff 93, Tersoff 94]. Le calcul des deux contributions nécessite de connaître la géométrie de la boîte. Dans son calcul, Tersoff considère des boîtes en forme de pyramide tronquée, de hauteur h , et de dimension latérale s , possédant des facettes faisant un angle θ avec la surface (voir insert Figure 1.7). L'épaisseur de la couche de mouillage et la contrainte induite dans le substrat ne sont pas prises en compte dans son modèle. Il obtient une expression analytique de l'énergie de formation d'un îlot en fonction de son volume V :

$$\Delta E(V) = 4\Gamma V^{2/3} \tan^{1/3} \theta - 6AV \tan \theta \quad (1.8)$$

Le premier terme est associé à l'augmentation d'énergie de surface pour former les facettes de la pyramide, où Γ est relié à la différence des densités d'énergie surfacique par $\Gamma = \gamma_f \csc \theta - \gamma \cot \theta$, avec γ et γ_f , les densités d'énergie de surface respectivement de la surface 2D et des facettes de l'îlot. Le deuxième terme correspond à la variation de l'énergie élastique, dans lequel $A = \sigma_0^2(1-\nu)/(2\pi\mu)$ est un paramètre dépendant du matériau avec σ_0 la contrainte dans le plan de la couche, ν le coefficient de Poisson et μ le module de cisaillement du matériau.

La Figure 1.7 illustre qualitativement la variation d'énergie totale en fonction du volume de l'îlot. En dessous d'un volume critique V_c , l'énergie du système augmente avec le volume jusqu'à une énergie maximum notée E_{nucl} . Dans cette zone, le gain en énergie élastique est trop faible pour compenser le coût en énergie pour développer des facettes. La couche reste alors bidimensionnelle. A V_c , ΔE passe par un maximum qui définit une barrière énergétique

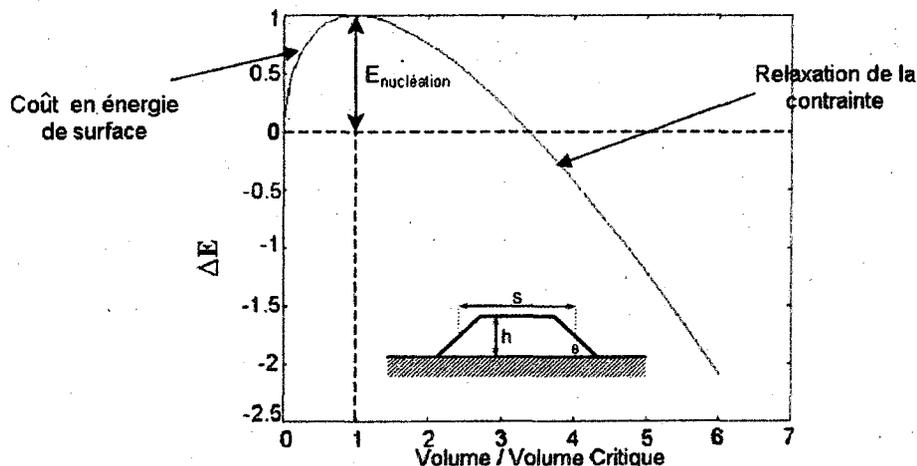


Figure 1.7. Evolution qualitative de l'énergie de formation d'un îlot 3D ΔE à partir d'une couche 2D en fonction du volume déposée. La barrière énergétique de nucléation d'un îlot 3D est franchie pour un certain volume critique. Adapté d'après [Tersoff 94].

de nucléation E_{nucl} : c'est la transition 2D/3D. Puis, ΔE décroît continuellement avec l'augmentation du volume. La relaxation de la contrainte se fait de manière plus efficace par une configuration 3D. Ces résultats concernent la formation d'un îlot pyramidal mais un comportement similaire pour d'autres géométries d'îlots est aussi obtenu [Duport 97, Moll 98, Michon 06b].

On peut montrer d'après l'eq. (1.8) que le volume critique V_c et la barrière énergétique de nucléation E_{nucl} sont reliés au désaccord paramétrique ε et à la constante Γ . Des lois d'échelles peuvent être définies à partir de ces deux paramètres telles que :

$$V_c \propto \Gamma^3 / \varepsilon^6 \quad (1.9)$$

$$E_{\text{nucl}} \propto \Gamma^3 / \varepsilon^4 \quad (1.10)$$

On voit que l'énergie de nucléation est proportionnelle au cube de la constante Γ et est inversement proportionnelle à la puissance quatrième du désaccord paramétrique ε . La barrière de nucléation sera donc d'autant plus facile à franchir que le désaccord de maille est grand et/ou le surcoût en énergie de surface à créer des facettes est faible.

Le volume critique suit également la même tendance avec Γ et ε . Pour illustration, si on prend l'exemple d'îlots d'InAs formés sur InP(001) ou sur GaAs(001), le désaccord de maille qui est environ deux fois plus faible sur InP conduit à un volume critique de nucléation 64 (2^6) fois plus important (pour Γ constant). Par conséquent, à condition de dépôt identique, un plus faible taux de nucléation est prévu pour le système InAs/InP. De plus, le volume critique étant directement dépendant du coût en énergie de surface lié à la formation des facettes, il peut être modifié en changeant l'orientation du substrat. L'équipe de l'INSA de Rennes a par exemple utilisé des substrats de hauts indices d'InP(113)B pour obtenir plus facilement des îlots d'InAs isotropes en grande densité en comparaison avec un substrat InP(001) [Frechengues 99b, Caroff 05d]. La plus forte densité d'énergie de surface de InP(113)B permet de diminuer le coût en énergie de surface à la formation des îlots et conduit donc à une réduction importante de l'énergie de nucléation et du volume critique de l'îlot.

L'intérêt de ce modèle énergétique est qu'il permet de comprendre simplement la forme des îlots à l'équilibre. Il permet aussi d'expliquer des transitions de forme entre différents types d'îlots sur des critères de stabilité énergétique [Tersoff 93, Saint-Girons 06b, Kratzer 09]. Tersoff et coll. ont par exemple expliqué l'évolution d'îlots plats de faibles dimensions (huttes) vers des îlots de grand volume (dôme) dans le système Ge/Si faiblement contraint (Figure 1.8). A partir de leur calcul d'énergie de formation d'îlots, ils ont montré

que la formation d'îlots plats de faible hauteur est favorisée à faible volume et celle des dômes de plus grandes hauteurs à plus grand volume. Ce résultat provient du fait qu'à faible volume, le terme ΔE_{surf} est dominant et que les formes présentant un faible coût en énergie de surface (îlots plats avec des facettes peu élevées c'est à dire de hauts indices) sont favorisées. A fort volume, le terme ΔE_{el} devient prépondérant et les formes permettant une relaxation maximale (forte hauteur) sont favorisées. La transition de forme intervient lorsque l'îlot grossissant trouve une configuration énergétique plus favorable et donc plus stable.

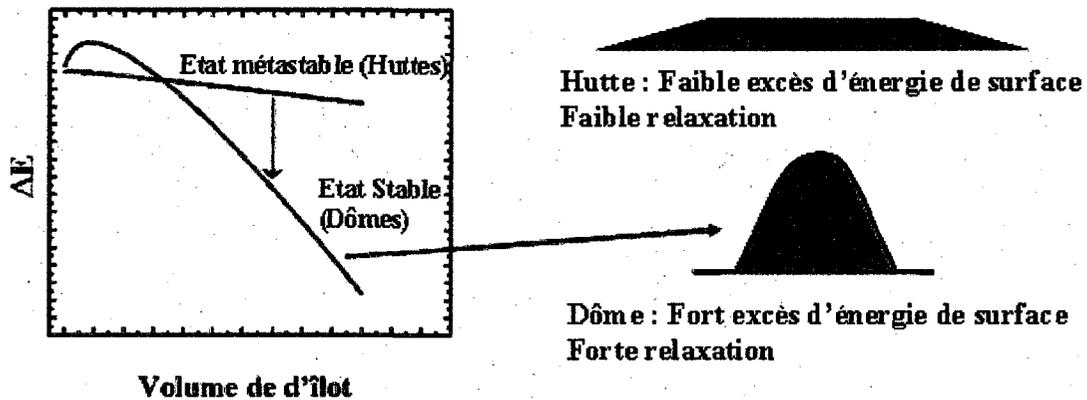


Figure 1.8. Représentation schématique de l'évolution de l'énergie de formation d'un îlot ΔE en fonction de son volume pour deux formes différentes. Le diagramme montre l'existence d'une plus grande énergie de nucléation nécessaire à la formation des îlots de hauteur élevée (dôme). Adapté d'après [Caroff 05d].

Les différents exemples précédents montrent que la morphologie des îlots est fortement liée aux énergies de surface qui dépendent de l'orientation cristalline des surfaces et de leurs reconstructions. Nous verrons au chapitre 3 que les reconstructions de surface jouent effectivement un rôle déterminant sur la forme et l'évolution morphologique des îlots d'InAs/InP(001).

1.3 Intérêts pour des applications nanophotoniques

L'intérêt porté aux boîtes auto-assemblées au cours de ces vingt dernières années tient également à leurs nombreuses perspectives d'applications. Leurs propriétés électroniques et optiques exceptionnelles ainsi que leur facilité d'intégration permettent d'envisager leur utilisation comme zone active dans de nombreux dispositifs optoélectroniques en remplacement des puits quantiques 2D actuellement utilisés. Une amélioration des performances est attendue pour la plupart des composants, principalement dans le domaine

des télécommunications optiques, tels que les diodes lasers, amplificateurs optiques, absorbants saturables et photodétecteurs. L'intégration des boîtes quantiques dans des structures telles que des diodes électroluminescentes, des cellules photovoltaïques et des mémoires suscitent également un intérêt sur le plan technologique [Warburton 02, Mowbray 05]. Les propriétés spécifiques des boîtes quantiques (niveaux discrets, raies fines d'émission et une haute efficacité radiative proche de 100%) permettent également d'envisager la conception de composants optoélectroniques novateurs basés sur une seule boîte quantique, telles que des sources de photons uniques [Skolnick 04]. Une revue détaillée présentant l'intérêt des boîtes pour chaque dispositif serait vaine et hors du cadre de cette étude. La description faite dans cette section se limitera à quelques applications à boîtes quantiques uniques.

1.3.1 Dispositifs à base de boîtes quantiques uniques

La possibilité d'insérer des boîtes quantiques dans des microcavités optiques semi-conductrices de haute qualité ont récemment suscité beaucoup d'intérêts. Un nouveau champ d'étude a émergé et est actuellement en pleine effervescence : l'électrodynamique quantique en cavité avec des boîtes quantiques uniques. Les phénomènes fondamentaux d'optique quantique déjà observés avec des atomes en cavité – comme l'intrication, la décohérence ou la frontière quantique-classique [Haroche 98] – peuvent maintenant être étudiés dans des dispositifs à l'état solide. Sur le plan applicatif, de nouveaux dispositifs exploitant ces phénomènes quantiques de cavité sont envisagés tels que des sources de photons uniques pour la cryptographie quantique, des sources de paires de photons intriqués pour le calcul et le traitement en information quantique [Michler 03] ou encore des nanolasers « sans seuil » pour les systèmes de télécommunication ultrarapide [Altug 06]. Nous présentons tout d'abord les principes de base de l'électrodynamique quantique en cavité en se limitant à l'étude du couplage fort et faible entre un émetteur et une cavité. Puis le principe des sources de photons uniques et de paires de photons intriqués sera abordé.

1.3.2 Electrodynamic quantique en cavité avec des boîtes quantiques uniques

L'insertion d'un émetteur en cavité permet de modifier le couplage de l'émetteur au champ électromagnétique. Il s'agit d'une modification en profondeur de ses propriétés

d'émission. En ce qui concerne l'émission spontanée, deux régimes différents peuvent se présenter, dit de couplage faible et de couplage fort.

La Figure 1.9 représente le schéma d'un système d'électrodynamique quantique en cavité. Il est composé d'un système à deux niveaux d'énergie inséré dans une cavité optique. Une boîte quantique unique insérée dans une microcavité optique de haut facteur de qualité permet d'étudier les effets d'électrodynamique quantique en cavité en milieu solide.

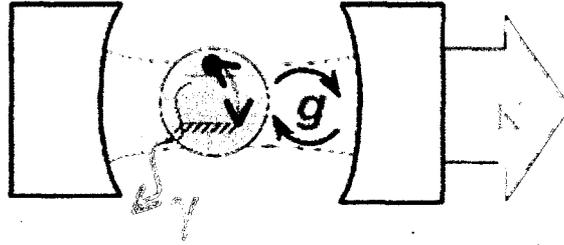


Figure 1.9. Schéma représentant un système d'électrodynamique quantique en cavité. La boîte quantique symbolisée par un système à deux niveaux d'énergie (en vert) interagit avec le photon dans le mode optique résonnant de la cavité symbolisée par les deux miroirs en bleu. Le point en bleu foncé est un électron occupant un des deux niveaux d'énergie. Le régime de couplage fort est atteint lorsque le taux d'interaction boîte-photon (g) est plus grand que le taux de dissipation due aux pertes de photons par la cavité (κ) et par l'émission de la boîte dans d'autres modes au taux γ . Autrement dit, lorsque $g \gg \kappa, \gamma$. Inversement, le couplage faible se produit lorsque $g \ll \kappa, \gamma$.

Couplage fort

Idéalement, le régime de couplage fort est obtenu lorsqu'un émetteur unique, initialement dans un état excité, est couplé de façon résonnante et exclusive avec un mode électromagnétique propre d'une microcavité sans perte [Gerard 03]. L'émission de lumière devient alors un processus réversible conduisant à la formation d'états quantiques mixtes d'exciton et de photon, appelés polaritons de microcavité, et séparés spectralement par le dédoublement de Rabi. Dans ce régime non-perturbatif, l'émetteur et le mode de la cavité échangent de l'énergie de façon réversible. Un photon peut être absorbé puis réémis par l'émetteur et ainsi de suite avant de pouvoir s'échapper de la cavité. Des oscillations de Rabi entre les états de l'émetteur et le mode de cavité s'établissent à la pulsation Ω ,

$$\Omega = \sqrt{\frac{\omega_c d^2}{2\epsilon_0 \hbar n^2 V}} \quad (1.11)$$

où ω_c est la pulsation du mode de cavité et V le volume effectif du mode, d est le dipôle de l'émetteur et n l'indice du milieu. Ces oscillations sont amorties si des phénomènes de décohérence affectent l'évolution de ce système couplé, ce qui est le cas pour des boîtes dans une cavité réelle. D'une part, le temps de vie du photon peut être limité par les pertes de la cavité. D'autre part, l'oscillation de Rabi est amortie quand la désexcitation de l'émetteur dans d'autres modes devient importante. Les oscillations de Rabi disparaissent alors pour laisser la place à un déclin exponentiel. Ce régime correspond au couplage faible. L'observation expérimentale de ce régime non perturbatif a été récemment observée avec des boîtes quantiques uniques d'InAs/GaAs insérées dans des microcavités résonnantes à base de micropiliers [Reithmaier 04] et de cristaux photoniques [Yoshie 04].

Couplage faible et effet Purcell

Le régime de couplage faible s'instaure lorsque l'émetteur est couplé à un continuum de modes et non pas à un mode unique. C'est le cas lorsque les pertes de la cavité induisent un sur-amortissement de l'oscillation de Rabi. Il se traduit par l'irréversibilité du phénomène d'émission spontanée. Un photon qui est émis dans le mode de cavité va directement se coupler à un continuum de modes à l'extérieur de la cavité. Dans ce régime de couplage faible, l'effet de la cavité est modifié par inhibition ou exaltation du taux d'émission spontanée. C'est l'effet Purcell. L'effet Purcell désigne la capacité d'une microcavité à modifier le taux d'émission spontanée d'un émetteur placé en son sein, par le biais d'interactions renforcées entre émetteur et photons (Figure 1.10). L'émission spontanée n'est pas une propriété intrinsèque de l'émetteur mais résulte donc de l'interaction entre le dipôle et le champ électromagnétique du vide. Le taux de transition radiative γ d'un émetteur dans un état initial excité vers un état final énergétique plus faible, dépend de la densité d'états photoniques accessibles, $\rho(\omega)$ à la fréquence de transition ω_e . En régime de couplage faible, où l'excitation atomique est perdue de façon irréversible dans le champ, ce taux est exprimé par la règle d'or de Fermi [Gerard 03],

$$\gamma = \frac{1}{\tau_c} \propto \rho(\omega_e) |\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_e)|^2 \quad (1.12)$$

avec \mathbf{d} le dipôle associé à l'émetteur et $\mathbf{E}(\mathbf{r}_e)$ le champ électrique du vide à la position \mathbf{r}_e de l'émetteur. Ainsi, en modifiant $\rho(\omega_e)$, l'émission spontanée peut être renforcée ou au contraire inhibée. Un moyen de faire varier $\rho(\omega_e)$ consiste à utiliser une cavité optique qui réduit le nombre de modes permis, mais augmente la densité d'états locale dans les modes résonants.

L'émission spontanée dans (respectivement en dehors de) la résonance de cavité est alors amplifiée (inhibée).

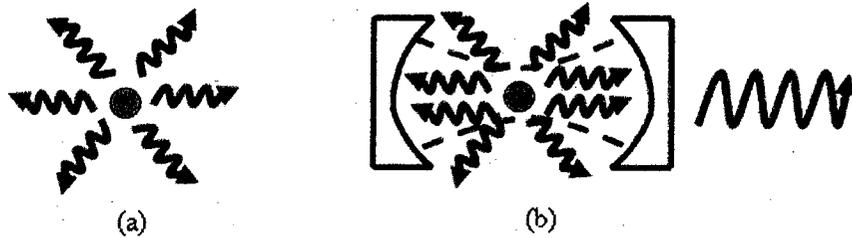


Figure 1.10. Exaltation de l'émission spontanée par l'effet Purcell. Le couplage faible à un mode de cavité augmente le taux d'émission spontanée par l'accroissement local de la densité de mode (b), comparée à leur densité dans le vide (a).

L'effet Purcell fournit une estimation du « potentiel maximum » de la microcavité à renforcer le taux d'émission spontanée d'un émetteur idéal dans le mode de cavité. Précisons cette idéalité :

- Accord spectral entre l'énergie de transition de l'émetteur et le mode de cavité
- Largeur de la raie d'émission négligeable (émission quasi-monochromatique) par rapport à la largeur du mode
- Accord spatial entre la localisation de l'émetteur et la position du ventre de champ électrique (localisation du dipôle sur un ventre du champ électrique stationnaire)
- Accord entre l'orientation du dipôle émetteur et la polarisation du champ E que ressent l'émetteur (alignement dipôle / champ électrique).

Le taux d'émission spontanée γ ($\gamma = 1/\tau_c$) de l'émetteur dans le mode de cavité est augmenté d'un facteur F_p , appelé facteur de Purcell par rapport au taux d'émission spontanée dans le vide γ_0 ($\gamma_0 = 1/\tau$). Dans ces conditions, F_p s'expriment simplement [Gerard 03] par :

$$F_p = \frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{3\lambda^3 Q}{4\pi^2 V} \quad (1.13)$$

avec Q le facteur de qualité du mode, λ la longueur d'onde de la transition optique dans la cavité et V le volume effectif du mode. Le facteur de Purcell est donc un facteur de mérite de la cavité seule, qui indique quelle est l'exaltation maximale du taux d'émission spontanée qu'elle peut prodiguer, sous réserve qu'un émetteur idéal soit employé.

On voit dès lors, que l'on peut exploiter l'effet Purcell pour améliorer les propriétés d'émission (taux d'émission spontanée, collection) de notre source à photons uniques à base

d'une boîte quantique. La faible largeur de la raie d'émission de la boîte quantique combinée à un mode résonnant d'une microcavité de bonne qualité permet de bénéficier pleinement de cet effet. Il convient donc d'apporter une attention toute particulière à la fabrication et au design des microcavités.

1.3.3 Source de photons uniques

Une source de photons uniques est un composant capable d'émettre à la demande des impulsions lumineuses contenant un seul et unique photon. La principale motivation pour leur développement est leur application potentielle à la distribution de clés quantiques pour la sécurisation quasi-absolue des transmissions par fibres optiques. Ce qu'on appelle la cryptographie quantique. L'idée consiste, en appliquant les principes de la physique quantique à la cryptographie, à créer un canal de communication au sein duquel toute interception de la clef par une personne tierce sera détectée. Plusieurs protocoles de cryptographie quantique existent et utilisent soit la polarisation, la phase, ou la fréquence d'un photon unique pour coder l'information. On peut citer le protocole de cryptographie le plus « simple » et le plus connu : BB84, défini par Bennett et Brassard en 1984, qui utilise le codage en polarisation des photons uniques [Gisin 02]. Dans un tel échange, les bits (les unités d'information, les "0" et les "1") sont représentés par des photons polarisés selon des angles différents. Une clef s'apparente donc à une suite de photons polarisés, de façons diverses, et qui sera inévitablement altérée si un intrus tente d'intercepter la communication. Actuellement, les sources utilisées pour réaliser les expériences sont des lasers fortement atténués en intensité mais ils sont inefficaces car la majorité des impulsions ne contiennent pas de photons ou alors en contiennent plus d'un, réduisant fortement le débit et la sécurité de la transmission. Une source de photons uniques efficace et fiable constituée d'une boîte quantique unique pourrait être la solution.

La génération de photons uniques repose sur l'émission spontanée d'un système à deux niveaux. Le principe d'une source de photons uniques utilisant une boîte quantique a été proposé par J. M. Gérard et B. Gayral en 1999 [Gerard 99]. Son fonctionnement est illustré à la Figure 1.11. Une boîte isolée est excitée via le pompage optique ou électrique impulsionnel du matériau environnant. Plusieurs paires électron-trou sont créées dans la barrière puis rapidement capturées avant de relaxer leur énergie via des transitions intra-boîte. Ces porteurs se recombinent ensuite en une cascade radiative, menant à l'émission de plusieurs photons d'énergie spécifique X_n pour chaque impulsion de pompage. Tous les photons émis de la

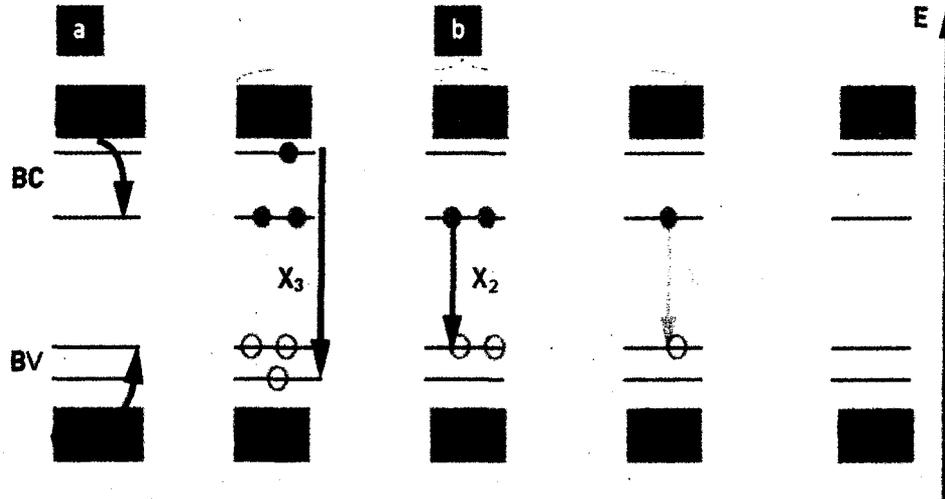


Figure 1.11. Principe du protocole employé pour générer des photons uniques avec une boîte. (a) des paires électron-trou sont créées dans la barrière entourant la boîte par une excitation optique ou électrique pulsée. Ils sont rapidement capturés par la boîte et relaxent vers les niveaux d'énergie disponibles. (b) La recombinaison séquentielle des porteurs se fait à des énergies différentes en fonction du nombre de paires résiduelles dans la boîte. Un filtrage spectral de la raie d'émission X_n permet de sélectionner un photon unique.

boîte quantique auront des énergies différentes à cause du fort confinement et des interactions coulombiennes entre les porteurs. En ne sélectionnant qu'une seule raie par filtrage spectral, typiquement la raie excitonique X , une impulsion contenant un seul photon est préparée pour chaque cycle de pompage. La fréquence de répétition de la source est limitée par le temps de vie de la transition sélectionnée.

L'émission de photons uniques utilisant ce principe a été démontrée par des mesures de corrélations de photons tout d'abord avec des boîtes quantiques d'InAs/GaAs [Michler 00, Santori 02] et plus récemment sur InAs/InP à $1,3 \mu\text{m}$ [Takemoto 04b] et à $1,55 \mu\text{m}$ [Miyazawa 05].

Cependant, l'émission spontanée d'une boîte est en général isotrope et difficile à extraire. Seulement une faible fraction des photons émis par la boîte est collectée puis détectée. De plus, leur utilisation effective dans ce type de source requiert que les photons uniques soient collectés efficacement et préparés dans un état donné, c'est-à-dire avec une direction de propagation, un mode spatial et une polarisation bien spécifique en vue d'un couplage avec une fibre optique en sortie. La solution au problème a été trouvée et consiste à les placer judicieusement dans des microcavités optiques semi-conductrices de petits volumes ($V \sim \lambda^3$) et à exploiter les effets quantiques de cavité sur l'émetteur, notamment l'effet Purcell (décrit

au paragraphe précédent). Le couplage boîte/cavité a pour effet de collecter et de rediriger les photons dans une seule direction et un seul mode électromagnétique. Il présente aussi l'avantage important d'exalter le taux d'émission spontanée par effet Purcell. L'intervalle de temps entre deux impulsions de photon unique peut être réduit ainsi de manière significative. Différents types de cavité existent et font l'objet d'intenses recherches. La Figure 1.12 présente un panel de cavités optiques semi-conductrices candidates dont des micropiliers, des microdisques et des cristaux photoniques à deux dimensions.

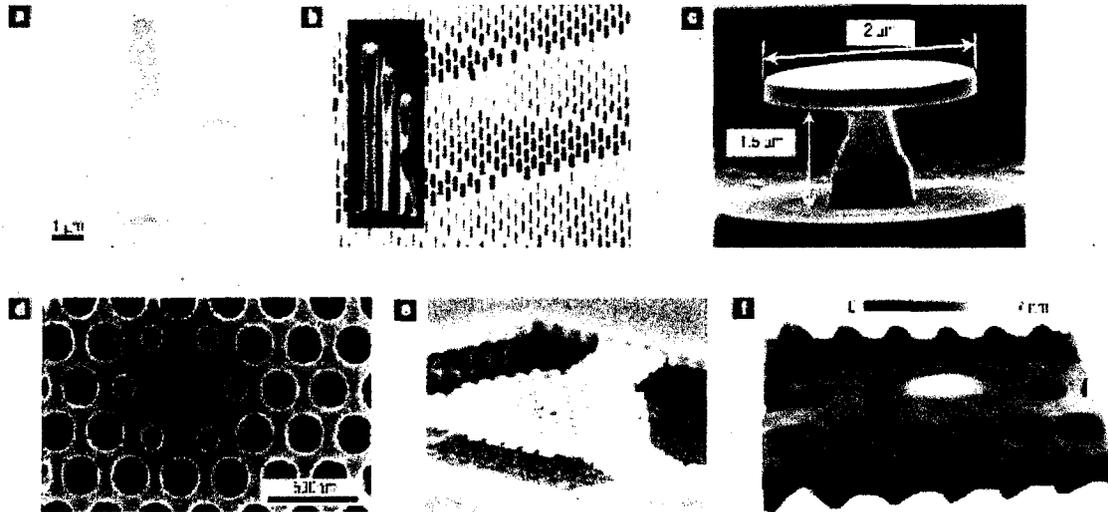


Figure 1.12. Images MEB de cavités semi-conductrices. (a)-(b) micropiliers, (c) microdisque, (d)-(f) cristaux photoniques planaires. D'après [Shields 07].

Chacune des cavités présente des avantages et inconvénients qui doivent être pris en compte en fonction de l'application visée. L'approche la plus performante à ce jour pour une source de photons uniques repose sur l'insertion de la boîte dans un micropilier. Plusieurs démonstrations ont été réalisées sur substrat de GaAs par pompage optique [Solomon 01, Morreau 02] puis électrique [Yuan 02, Strauf 07]. Mais aucune approche ne comble encore les besoins d'un réseau quantique en termes de longueur d'onde d'émission, de taux de répétition et de pureté des états quantiques générés. Le but poursuivi par de nombreuses équipes de recherche internationales est la réalisation de sources solides, compactes, intégrables, efficaces, pompées électriquement, capables de générer des photons uniques émettant aux longueurs d'onde des télécoms et préparées dans une direction de propagation, un mode spatial et une polarisation bien spécifique. Ceci constituera une étape importante de la mise en place des technologies nécessaires à la construction de dispositifs de communication et de traitement de l'information quantique.

1.3.4 Sources de paires de photons intriqués

Le concept de source de photons uniques a été étendu à la réalisation de source émettant deux photons intriqués c'est-à-dire deux photons qui ne forment qu'un seul et même état quantique. Ce type de source présente actuellement un vif intérêt dans la communauté à cause de leurs applications potentielles pour le calcul quantique [Knill 01] et les protocoles de cryptographie quantique [Ekert 91]. Récemment, Benson et col. ont proposé d'utiliser l'émission séquentielle du biexciton puis de l'exciton d'une boîte quantique pour générer des paires de photons intriqués sur leur état de polarisation [Benson 00]. Pour réaliser une telle source, il faut que les photons soient indistinguables. Cependant, les premières mesures de paires de photons à partir du système exciton-biexciton ont abouti seulement à l'observation de corrélations classiques [Stevenson 02, Santori 02]. Ce résultat a été attribué à la levée de dégénérescence de spin causée par une asymétrie de confinement dans les boîtes quantiques. Cela a abouti au dédoublement énergétique des raies excitoniques et biexcitoniques, encore appelé dédoublement de la structure fine du biexciton (FFS noté δ). Les deux raies sont espacées de quelques dizaines voire centaines de μeV et polarisées linéairement selon les deux axes principaux de symétries Π_x et Π_y (Figure 1.13). Les deux photons peuvent désormais être distingués en fonction du chemin de la recombinaison ce qui interdit l'intrication.

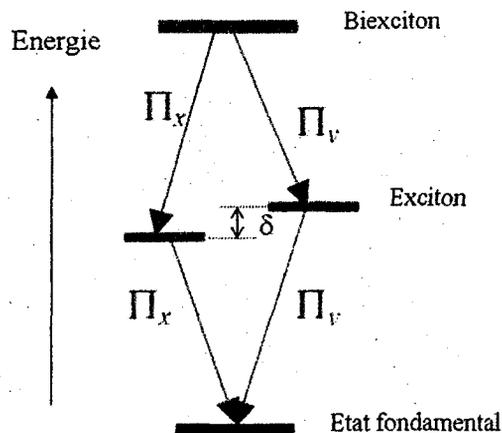


Figure 1.13. Cascade radiative du bi-exciton permettant la création d'états intriqués si le dédoublement de la structure fine du biexciton est nul : $\delta \approx 0$.

Pour résoudre ce problème, il faut que l'écart énergétique entre les deux pics soit nul ou inférieur à la largeur de raie homogène c'est-à-dire de l'ordre de quelques μeV à basse

température [Greilich 06]. Quelques approches ont été imaginées afin de contrôler et minimiser cet écart énergétique. La première consiste à compenser l'asymétrie dans la boîte en appliquant un champ électrique latérale externe [Kowalik 05] ou un champ magnétique [Stevenson 06]. Les autres jouent sur la modification des conditions de croissance notamment par un recuit des boîtes [Young 05, Langbein 04, Tartakovskii 04]. En sélectionnant des boîtes d'InAs/GaAs émettant autour de $0,89 \mu\text{m}$ ($1,4 \text{ eV}$), énergie pour laquelle le dédoublement des pics est quasi nul, l'intrication de deux photons par cette méthode a été observée récemment [Stevenson 06, Young 06]. Comme précédemment, les boîtes uniques ont été placées dans une microcavité pour accélérer les recombinaisons radiatives et obtenir une meilleure efficacité d'extraction des photons. Ce phénomène n'a toujours pas été observé à $1,55 \mu\text{m}$ mais fait l'objet d'intense étude.

1.4 Le système InAs/InP

1.4.1 Intérêts et défis

Le principal intérêt du système InAs/InP est la possibilité de faire croître des boîtes quantiques qui émettent dans la gamme des longueurs d'onde des télécommunications par fibre optique. Il permet notamment d'atteindre facilement une émission à $1,55 \mu\text{m}$, longueur d'onde présentant le minimum de pertes optiques dans les transmissions par fibres optiques modernes tandis que le système In(Ga)As/GaAs semble limité à $1,3 \mu\text{m}^2$. Il représente ainsi un grand intérêt pour les systèmes de télécommunications à longue distance. La raison invoquée est le plus faible désaccord de maille entre l'InAs et l'InP qui permet la croissance de nanostructures plus larges et moins contraintes que dans le système InAs/GaAs.

De plus, d'après de récents calculs théoriques de leurs états électroniques, les boîtes quantiques d'InAs/InP semblent être particulièrement bien adaptées à la génération de photons intriqués [He 08, Singh 09]. Le dédoublement énergétique des raies excitoniques et biexcitoniques (FSS) intrinsèque des boîtes quantiques d'InAs/InP est d'un ordre de grandeur plus faible que pour celles d'InAs/GaAs et comparable à la largeur homogène de l'exciton

² L'utilisation d'une couche d'encapsulation d'InGaAs ou d'InGaAsN permet désormais d'atteindre $1,55 \mu\text{m}$.

(quelques μeV). Par conséquent, ces boîtes offrent la possibilité d'émettre des photons intriqués pour les communications quantiques à longue distance.

Pour réaliser ce type de dispositif, il est nécessaire d'insérer une boîte quantique unique dans une microcavité optique de haute qualité et de coupler un photon résonant avec un mode optique de la cavité. L'accomplissement d'un tel projet nécessite de maîtriser divers points clés qui sont notamment :

- La croissance contrôlée de boîtes isotropes d'InAs/InP isolées spatialement
- L'obtention de raies très fines de boîtes uniques émettant autour de $1,55 \mu\text{m}$
- La fabrication de microcavités de faible volume et fort facteur de qualité
- La mise au point d'une technique déterministe de couplage spatial et spectral entre une boîte et la microcavité

1.4.2 Approches d'isolement des boîtes quantiques uniques

Généralement, la fabrication de boîtes quantiques uniques est réalisée suivant deux approches. Tout d'abord, une voie allant vers un contrôle spatial du site de nucléation de chaque boîte à l'aide d'un substrat d'InP pré-structuré à l'échelle nanoscopique. L'intérêt est de pouvoir par la suite positionner de façon déterministe une boîte quantique unique au milieu de la microcavité et ainsi coupler latéralement et précisément le mode de résonance de la microcavité à la raie d'émission de la boîte. La localisation spatiale des boîtes se fait typiquement sur des réseaux de mésas (plots) ou de trous. Par exemple, à l'INL, différentes techniques de nanostructuration de surface ont fait l'objet d'études. Tout d'abord, par faisceaux d'ions focalisés [Kapsa 03], puis avec une pointe d'AFM [Tranvouez 05] et enfin récemment par lithographie électronique et gravure d'un substrat d'InP(001) [Turala 07]. Cette dernière étude a montré la possibilité de localiser des îlots d'InAs sur un réseau de trous de 100 nm de diamètre et émettant autour de $1,5 \mu\text{m}$ à température ambiante (Figure 1.14). Malgré tous ces efforts, aucune signature de boîte quantique unique n'a pour l'instant été obtenu indiquant la difficulté de la tâche. Cette voie reste cependant la plus prometteuse pour la fabrication en grands nombres de dispositifs compatibles avec un développement industriel. Plusieurs groupes de recherche internationaux se sont en effet lancés dans cette thématique sur substrat InP [Poole 09, Benoit 06, Wang 09]. Le groupe du NRC à Ottawa (Canada) a montré des résultats très encourageants quant au contrôle de la localisation de boîtes uniques

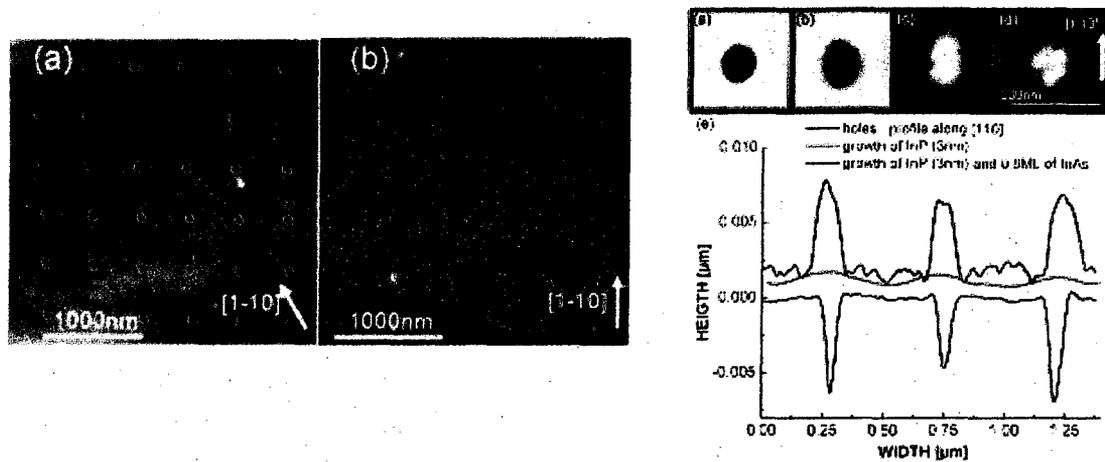


Figure 1.14. Images AFM (a) d'un réseau de nanotrous de 80–100 nm de diamètre et de 4-5 nm de profondeur sur une couche d'InP(001) (b) d'îlots d'InAs localisés au-dessus des trous après la croissance de 3 nm d'InP et de 0,8 MC d'InAs. D'après[Turala 09].

d'InAs/InP, de l'énergie de l'exciton à 1,55 μm , de l'injection des porteurs par pompage électrique et enfin du couplage du système boîte-cavité [Dalacu 09].

L'autre voie, plus classique est de réduire la densité de boîtes auto-assemblées par le contrôle des conditions de croissance afin d'isoler un seul émetteur. Elle permet de produire des boîtes quantiques d'une grande qualité structurale et optique. De plus, la fabrication de la microcavité autour de la boîte isolée qui autrefois était aléatoire, est désormais contrôlée grâce à des techniques de repérage et de marquage atteignant des résolutions spatiales de 10–50 nm [Badolato 05, Lee.06, Dousse 08, Thon 09]. La Figure 1.15 présente le schéma de principe de l'une d'elles par lithographie optique in-situ à basse température. La boîte unique est tout d'abord repérée, sur un échantillon de faible densité recouvert en surface d'une couche photosensible, par cartographie spatiale de μPL avec un premier laser (rouge). La lithographie optique est réalisée in-situ à travers le même objectif avec le second laser (vert) pour laquelle la résine est sensible. L'avantage de ce type de technique est qu'elle permet la sélection des boîtes uniques avec les propriétés désirées comme l'énergie d'émission et le temps de vie. Les régimes de couplage faible [Dousse 08] et fort [Dousse 09, Thon 09] du système boîte-cavité ont récemment été démontrés avec des boîtes d'InAs/GaAs. Ces résultats prouvent l'efficacité de ces techniques et par conséquent l'intérêt pour cette voie de croissance. C'est celle que nous avons utilisé dans notre travail.

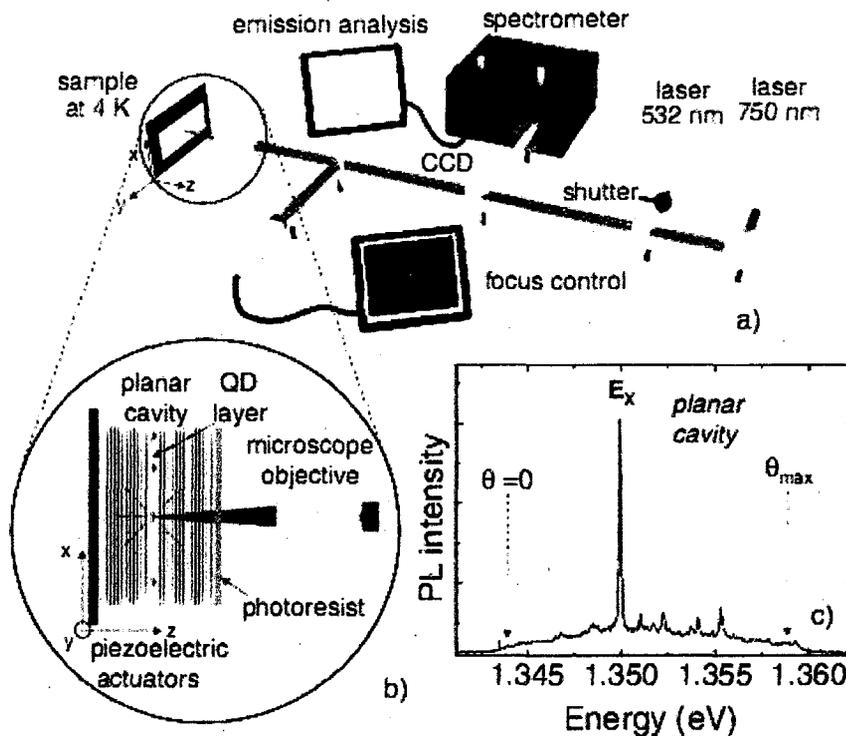


Figure 1.15. Localisation d'une BOÎTE pour par lithographie optique in-stu en champ lointain [Dousse 08].

Cependant, la difficulté ici est que le dépôt d'InAs sur d'InP(001) conduit généralement à une forte densité d'îlots et une grande variété de formes. Le chapitre 3 sera consacré aux mécanismes de croissance et aux conditions d'élaboration de faibles densités de boîtes quantiques isotropes. Nous proposons ci-dessous un état des lieux de la croissance des îlots quantiques d'InAs sur InP(001).

1.4.3 Revue de la croissance des boîtes quantiques d'InAs/InP(001)

Les avantages cités précédemment pour le système InAs/InP sont néanmoins contrebalancés par une fabrication de boîtes quantiques plus délicate. Le système InAs/InP se caractérise par un plus faible désaccord de maille (3,2%) que le système de référence InAs/GaAs (6,7%) et par la présence d'échanges entre les éléments As et P à l'interface. Ces caractéristiques conduisent à des résultats très différents entre les deux systèmes.

La croissance d'InAs sur InP(001) ne conduit pas toujours à une transition 2D/3D lors de la croissance et un recuit sous arsenic est quelque fois nécessaire pour observer cette transition. De plus, contrairement au système InAs/GaAs, la fabrication d'îlots isotropes n'est

pas toujours observée. Une grande variété de formes : plateaux, anneaux, fils, bâtonnets, boîtes, est en effet reportée (Figure 1.16). Cette disparité de formes semble être liée à une grande influence des conditions de croissance et des techniques de croissance.

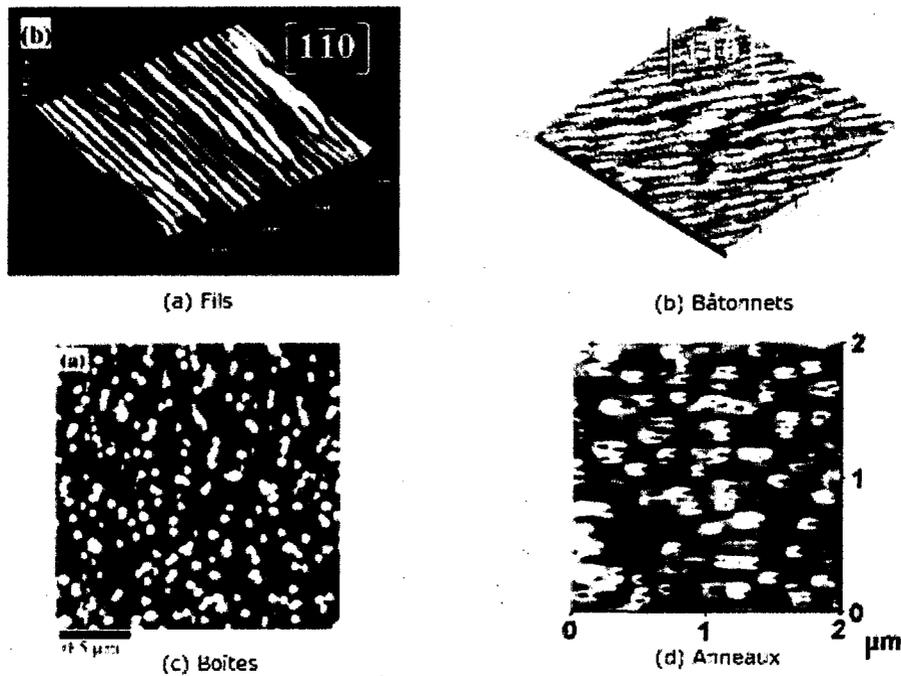


Figure 1.16. Différentes formes de nanostructures d'InAs sur InP(001) : (a) fils [Gonzalez 00], (b) bâtonnets [Gendry 04], (c) boîtes [Frechengues 99a], (d) anneaux [Raz 03].

Par exemple, dans des conditions standard en MBE, la formation de nanostructures allongées selon la direction cristallographique $[1\bar{1}0]$ est très souvent observée [Gonzalez 00, Schwertberger 03, Gendry 04, Parry 05]. Ces nanostructures sont appelées fils quantiques ou bâtonnets quantiques (« quantum dashes ») suivant le rapport de forme longueur sur largeur plus ou moins prononcé. Leurs dimensions sont typiquement de 20-30 nm de large et jusqu'à plusieurs centaines de nanomètres de long pour les fils. Elles varient en fonction des conditions de pression d'arsenic, de température de croissance, de temps de recuit et de la quantité d'InAs déposée [Sauerwald 05, Parry 06]. Les observations en RHEED et en TEM montrent que ces nanostructures sont formées de facettes $\{114\}$ parallèles à la direction $[1\bar{1}0]$ [Gutiérrez 01a, Gendry 04]. Des îlots 3D de forme plus isotrope sont aussi observés après un recuit sous une pression arsenic relativement forte [Ponchet 95c, Frechengues 97, Zhuang 00]. Ces boîtes sont en faible densité, de l'ordre de 10^9 cm^{-2} , avec des dimensions importantes et assez dispersées en taille, typiquement de 25 à 65 nm de diamètre et de 3 à 9 nm de hauteur.

Par contre, la croissance par MOCVD mène directement à la formation de boîtes d'InAs sur InP(001) [Marchand 97, Taskinen 97, Carlsson 98, Michon 05]. Les conditions utilisées en MOCVD proche de l'équilibre thermodynamique (plus hautes températures de croissance et forts rapports d'éléments V/III) sont avancées pour expliquer cette formation privilégiée. En épitaxie par jets chimiques (CBE), la situation est relativement similaire à celle en MBE. Des recuits sous pression d'éléments V sont aussi nécessaires pour former des boîtes [Gutiérrez 01a, Poole 01].

Plusieurs hypothèses sont évoquées pour expliquer l'allongement de ces îlots. Une origine cinétique a tout d'abord été avancée du fait d'une anisotropie de diffusion des adatoms en surface dans des conditions de reconstruction (2×4) généralement observées avant leur croissance [Poole 01]. La diffusion des adatoms étant privilégiée suivant $[1\bar{1}0]$ à cause de la symétrie de la (2×4). Une origine thermodynamique est aussi évoquée à cause des différences d'énergies de surface pour des facettes orientées suivant les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ [Ohlsson 01]. Enfin, cet allongement est également expliqué comme étant induit par une relaxation anisotrope de la déformation selon les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ [Garcia 01]. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre 3.

Les difficultés rencontrées pour former des boîtes par MBE sur des surfaces InP(001) ont été contournées par différentes stratégies. Tout d'abord, en changeant l'orientation cristalline du substrat. L'influence des substrats d'InP de hauts indices, de type (11n) a par exemple été étudiée [Notzel 95, Li 99, Sun 00]. De nombreux travaux ont montré que la croissance d'InAs sur InP(113)B permet d'obtenir une très grande densité de boîtes ($1,3\times 10^{11}\text{ cm}^{-2}$) de faible dimension ($\sim 25\text{ nm}$) émettant vers $1,55\ \mu\text{m}$ et présentant une dispersion en taille réduite par rapport aux croissances sur InP(001) [Frechengues 99b, Li 00a, Saito 01, Akahane 02]. Cependant, malgré la qualité de ces résultats, ce type de substrats non standard est difficilement incorporable dans des chaînes de production industrielle, ce qui en limite l'intérêt.

Une autre méthode consiste à utiliser des substrats désorientés de quelques degrés par rapport au plan nominal [Cotta 97]. De telles surfaces dites « vicinales » présentent une succession périodique de terrasses séparées par des marches de hauteur monoatomique sur lesquels la nucléation peut être favorisée. Parmi toutes les désorientations étudiées, des îlots isotropes en forte densité sont obtenus pour des surfaces (001) désorientées de 2° suivant $[110]$ appelées encore 2°B [Cotta 97, Mendonça 98, Salem 01, Bierwagen 05].

Enfin, la dernière méthode consiste à modifier le désaccord de maille entre l'InAs et le substrat d'InP par la croissance de différentes couches tampons de composés ternaires (InAlAs, InGaAs, InGaP) et quaternaires (InGaAsP, InGaAlAs) contraintes. L'insertion d'une fine couche intermédiaire (GaP, GaSb, GaAs) entre la couche tampon et l'InAs a aussi été envisagé pour favoriser la nucléation de boîtes [Gong 04].

La plupart des études réalisées jusqu'à récemment avaient pour objectif des composants optoélectroniques requérant des fortes densités de boîtes quantiques. Les conditions de croissance ont été principalement étudiées et optimisées dans cette optique. Quelques études fondamentales ont néanmoins montré qu'il était possible d'atteindre de très faibles densités de boîtes ($\sim 1 \mu\text{m}^{-2}$). Une importante diminution de la densité est obtenue pour de faibles quantités d'InAs déposées [Ponchet 95c] ou pour de faibles vitesses de croissance en MOCVD [Michon 07].

1.5 Conclusion

Nous avons rappelé dans ce premier chapitre quelques propriétés spécifiques des boîtes quantiques auto-assemblées et l'intérêt de les utiliser dans des applications nanophotoniques. S'il est relativement facile de produire des boîtes d'InAs/GaAs(001) en faible densité, un rapide état de l'art de la croissance dans le système InAs/InP(001) par MBE montre qu'il n'en est pas de même. Tant par la difficulté d'obtenir des îlots isotropes de bonne qualité structurale et optique, que de les produire en faible densité. Ce sont ces verrous que nous avons tentés de lever dans ce travail.

Chapitre 2

Méthodes et techniques expérimentales

Equation Chapter (Next) Section 1 Nous présentons dans ce chapitre les méthodes et techniques expérimentales utilisées lors des étapes de fabrication et de caractérisation des échantillons de boîtes d'InAs/InP(001).

2.1 Croissance des boîtes quantiques auto-assemblées

2.1.1 Epitaxie par jets moléculaires

De manière générale, l'épitaxie consiste à faire croître une couche monocristalline d'un matériau sur un substrat lui-même monocristallin. L'épitaxie par jets moléculaires (EJM ou MBE pour Molecular Beam Epitaxy) est une des nombreuses techniques de croissance de couches minces monocristallines. Développée vers la fin des années 1960 par A. Y. Cho et J. R. Arthur dans les laboratoires Bell (USA) [Arthur 68, Cho 70, Cho 75], elle consiste à projeter directement et simultanément les éléments constituant la couche à épitaxier sur le substrat placé dans une enceinte à ultravide. Les flux d'atomes ou de molécules proviennent de la sublimation ou de l'évaporation des éléments correspondants, solides ou liquides, contenus dans des creusets chauffés individuellement par effet Joule. L'ultravide régnant dans l'enceinte assure une grande qualité des surfaces ainsi qu'un libre parcours moyen des espèces supérieures à la distance source-substrat, d'où le terme de « jets moléculaires ». Cette

technique permet la croissance de couches cristallines de hautes qualités structurales et électroniques avec des interfaces abruptes, un excellent contrôle du dopage, de la composition et de l'épaisseur jusqu'à la monocouche près.

Pour l'épitaxie de matériaux semi-conducteurs III-V, la méthode dite «des trois températures» proposée par K. Günther est généralement utilisée [Günther 58]. La température du substrat T_S est ajustée entre la température d'évaporation des éléments V et celle des éléments III ($T_V < T_S < T_{III}$). Ainsi, les atomes des éléments III se condensent sur le substrat et ne s'évaporent pas. Par contre, les éléments V, envoyés en excès, ne se condensent en surface que s'ils établissent une liaison chimique avec les éléments III. La stœchiométrie du matériau épitaxié est garantie, les atomes de la colonne III étant immédiatement complétés par ceux de la colonne V une fois qu'ils sont incorporés. L'épaisseur des couches et la vitesse de croissance sont ainsi directement imposées par les flux des éléments III.

La Figure 2.1 présente le schéma du système MBE que nous avons utilisé au laboratoire pour la croissance de nos échantillons. Il s'agit d'un réacteur d'épitaxie RIBER 2300 à sources solides où tous les éléments sont issus de composés solides. Les éléments III : Indium (In), Gallium (Ga) et Aluminium (Al) ainsi que les dopants : Silicium (Si) et Béryllium (Be) sont placés chacun dans des cellules à effusion de type Knudsen puis chauffés par effet Joule. La tension de vapeur ou le flux atomique de chaque élément est contrôlée par sa température de cellule. Un cache actionné par un système pneumatique permet d'interrompre le flux de façon quasi-instantanée. Les éléments V : Phosphore et Arsenic, plus délicats à utiliser sont fournis à partir de cellules de grande capacité à craqueurs et à vannes. Ces éléments sont évaporés dans un condenseur puis envoyés dans un craqueur thermique où les molécules As_4 et P_4 initialement présentes sont fractionnées en As_2 et P_2 . Ces flux moléculaires sont ajustés par l'ouverture réglable des vannes. Une sonde à ionisation (jauge Bayart-Alpert) placée au point de convergence des flux permet de les mesurer précisément et de contrôler les vitesses de croissance des différents éléments. Ce type de sonde ne donne pas une mesure directe du flux en $atomes.s^{-1}.cm^{-2}$ mais plutôt une pression équivalente proportionnelle au flux, appelé BEP (Beam Equivalent Pressure). L'échantillon d'InP collé à l'indium sur un support en molybdène appelé « molyblock » est inséré dans le sas d'introduction dans lequel un vide secondaire est réalisé. Il est ensuite transféré sous vide dans une chambre où un dégazage est effectué et enfin amené à la chambre de croissance à l'aide du chariot de transfert. Pendant la croissance, l'échantillon est situé au centre du bâti, au point de convergence des flux atomiques et moléculaires. Le substrat est chauffé sur le manipulateur de façon à ce que les

constituants arrivant en surface puissent convenablement diffuser. Il tourne également sur lui-même afin d'assurer une bonne homogénéité de la couche. La température du substrat est contrôlée par un thermocouple en contact à l'arrière du molyblock et par un pyromètre infrarouge visant la surface de l'échantillon. L'ultravide est maintenu dans l'enceinte à des pressions inférieures à 10^{-10} torr (1 torr = 133,32 Pa) par un système complexe de pompage comprenant des pompes turbomoléculaire et ionique ainsi qu'un sublimateur de titane. Un pompage cryogénique est également réalisé par le refroidissement à l'azote liquide des panneaux internes à l'enceinte. Enfin, le front de croissance peut être caractérisé in situ et en temps réel par diffraction d'électrons à haute énergie en incidence rasante fournissant de précieuses informations sur la surface.

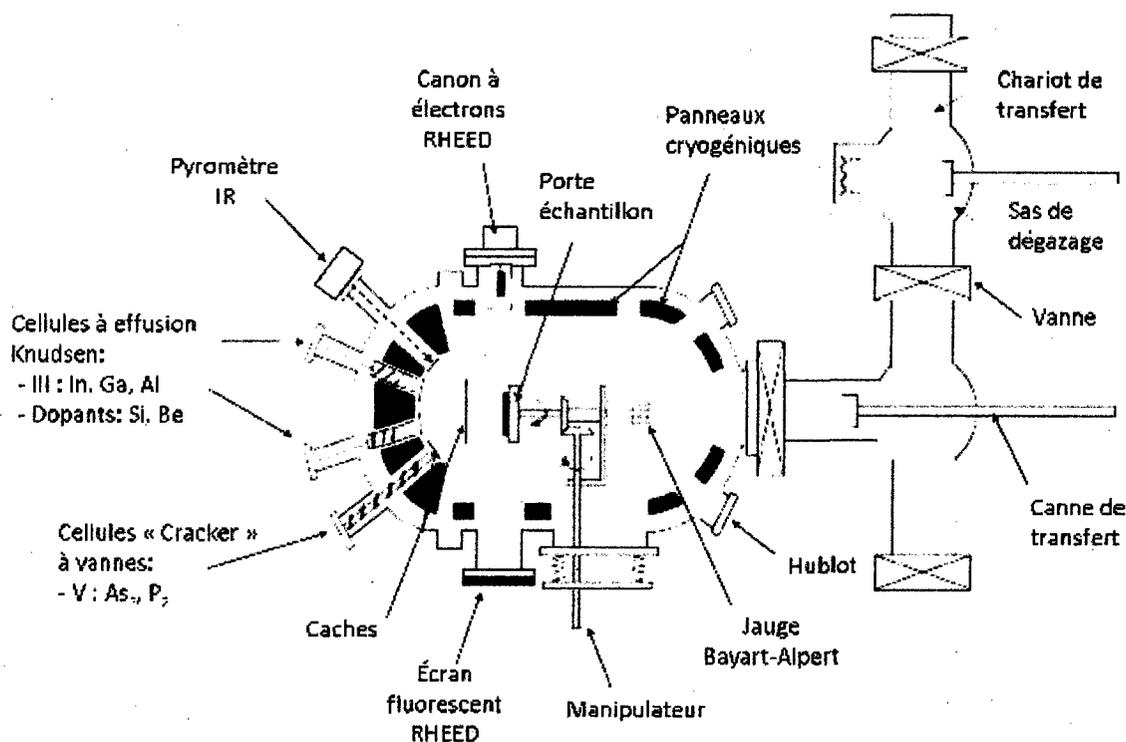


Figure 2.1. Diagramme schématique du réacteur d'épitaxie Riber 2300 en coupe transversale. Le système des pompes à vide est situé en dessous.

2.1.2 Diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante

La technique RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) est une méthode d'analyse de surface qui permet d'aller sonder la structure cristalline en surface avec une grande sensibilité. Couplé à un réacteur d'épitaxie sous ultravide (Figure 2.1), elle permet de

contrôler *in situ* et en temps réel l'évolution morphologique et cristalline de la surface d'une couche épitaxiée au cours de sa croissance. Elle offre ainsi de précieuses indications sur les mécanismes de croissance, les reconstructions de surface ainsi que sur la qualité cristalline de la surface de la couche.

La Figure 2.2 présente le schéma du dispositif expérimental. Il est constitué d'un canon à électrons (Staib Instruments) et d'un écran fluorescent placés de part et d'autre de l'échantillon. Le faisceau d'électrons de haute énergie ($E \sim 25 \text{ keV}$) est focalisé sur la surface en incidence rasante ($\theta \sim 2^\circ$). Une partie du faisceau est réfléchi (tache spéculaire), l'autre est diffracté par les premiers plans atomiques sous la surface produisant un interférogramme qui est recueilli sur l'écran fluorescent et enregistré par une caméra CCD pour analyse. L'observation du diagramme de diffraction peut se faire selon plusieurs azimuts par rotation du substrat.

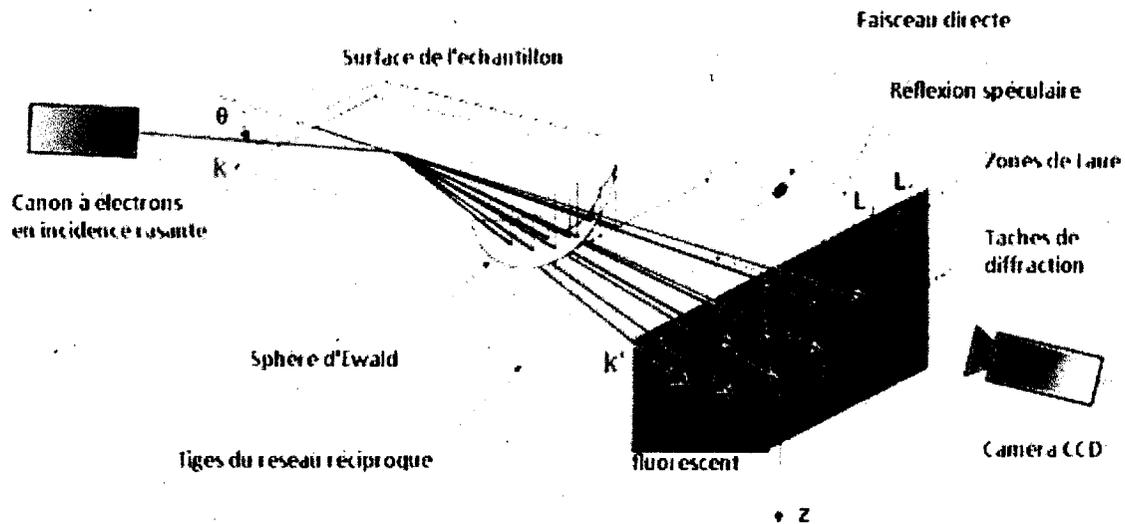


Figure 2.2. Schéma du dispositif RHEED installé dans l'enceinte MBE (vue du dessous en perspective).

Dans cette configuration, les électrons incidents n'interagissent qu'avec les premiers plans atomiques de la surface que l'on peut assimiler à un réseau bidimensionnel. Dans le cas d'une surface idéale, la périodicité pour une direction du cristal est supprimée et on peut montrer que le réseau réciproque associé est constitué d'un ensemble de tiges parallèles entre elles, perpendiculaires à la surface et séparés de $2\pi/a$ avec a le paramètre de maille du réseau directe [Braun 99]. Les conditions de diffraction, Bragg et Laue sont réunies lorsque les tiges du réseau réciproque interceptent la sphère d'Ewald de rayon $k = 2\pi/\lambda_e$. Chaque intersection

dans l'espace réciproque détermine la direction k' des interférences constructives dans l'espace réel et forme une tache de diffraction sur l'écran (Figure 2.3).

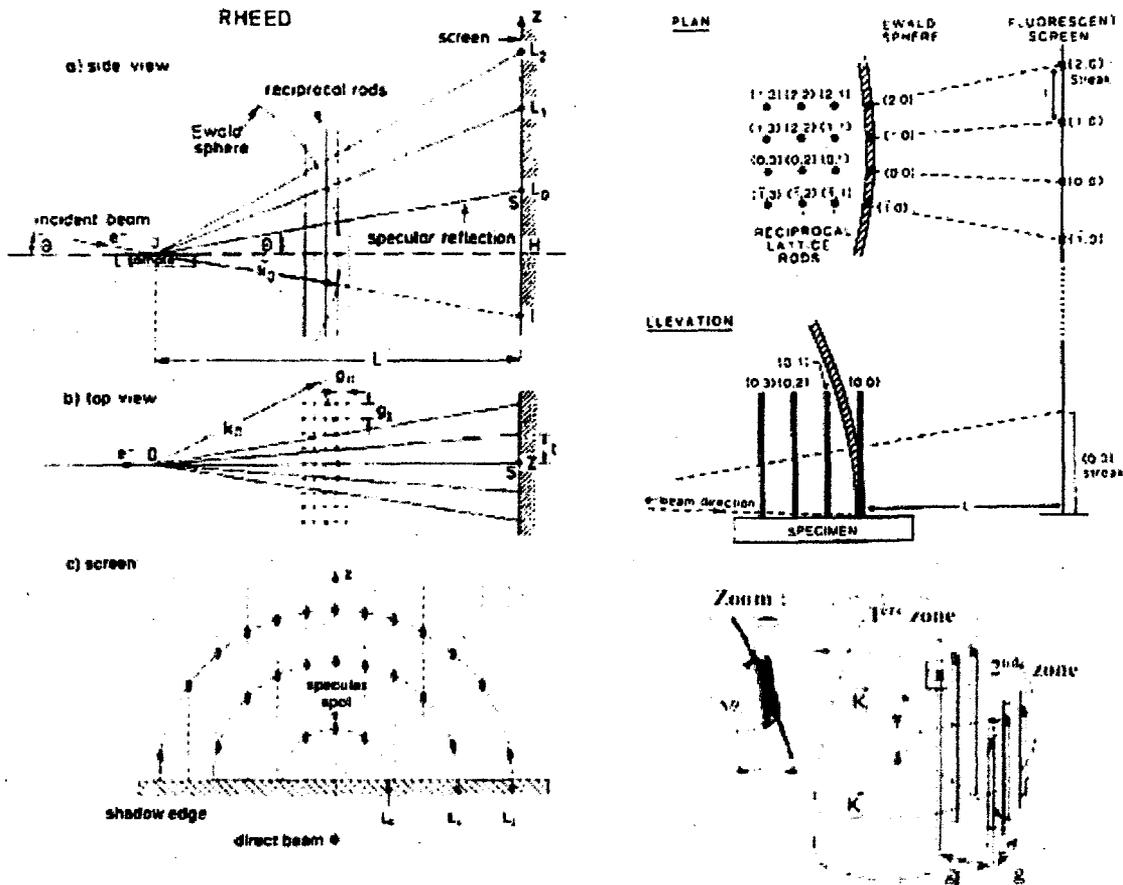


Figure 2.3. Figures représentant l'intersection de la sphère d'Ewald avec le réseau réciproque d'une surface idéale (gauche) et d'une surface réelle (droite). Les conditions de Laue sont satisfaites si l'extrémité du vecteur $\Delta k = k' - k = G_{hk}$ intercepte une tige du réseau réciproque. D'après [Bauer 92]

Pour une surface idéale, la figure de diffraction représente des points lumineux placés sur des demi-cercles appelés zones de Laue (Figure 2.3(c)). Dans la pratique, les lignes du réseau réciproque sont élargies par les nombreuses imperfections présentes sur les surfaces réelles. La figure de diffraction obtenue est généralement constituée d'un ensemble de raies parallèles, dont la finesse et la longueur dépendent de la qualité de surface. Ces raies dites principales correspondent à la périodicité du cristal massif. La distance entre deux raies consécutives t est reliée au paramètre de maille en surface qui est parallèle au faisceau incident par l'équation: $a_{//} = \lambda_e L / t$ avec λ_e est la longueur d'onde des électrons incidents donnée par $\lambda_e = h / \sqrt{2m_e E}$ et L est la distance séparant le point d'impact à l'écran. L'écart

entre ces lignes est donc inversement proportionnel au paramètre de maille du réseau cristallin. D'autres informations plus qualitatives peuvent être déduites de l'analyse des diagrammes RHEED.

Transition 2D/3D du mode de croissance

Lors de la transition 2D/3D du mode de croissance, d'une couche contrainte par exemple, le diagramme RHEED passe progressivement d'un diagramme de raies (Figure 2.4(a)) caractéristique d'une diffraction par réflexion sur la surface 2D, à un diagramme de taches de Bragg (Figure 2.4(b)), caractéristique d'une diffraction par transmission dans les îlots formés. Le suivi de l'intensité d'une fenêtre placée à l'endroit de l'apparition de la tache de Bragg (Figure 2.5), permet de déterminer avec précision l'épaisseur critique H_{3D} de l'enclenchement d'un mode de croissance 3D avec apparition d'îlots quantiques par exemple. Pour une surface présentant des îlots facettés, les taches adoptent, typiquement, une forme en V dont les angles avec la verticale peuvent être mesurés pour identifier les plans caractéristiques des facettes des îlots (Figure 2.4(b)).

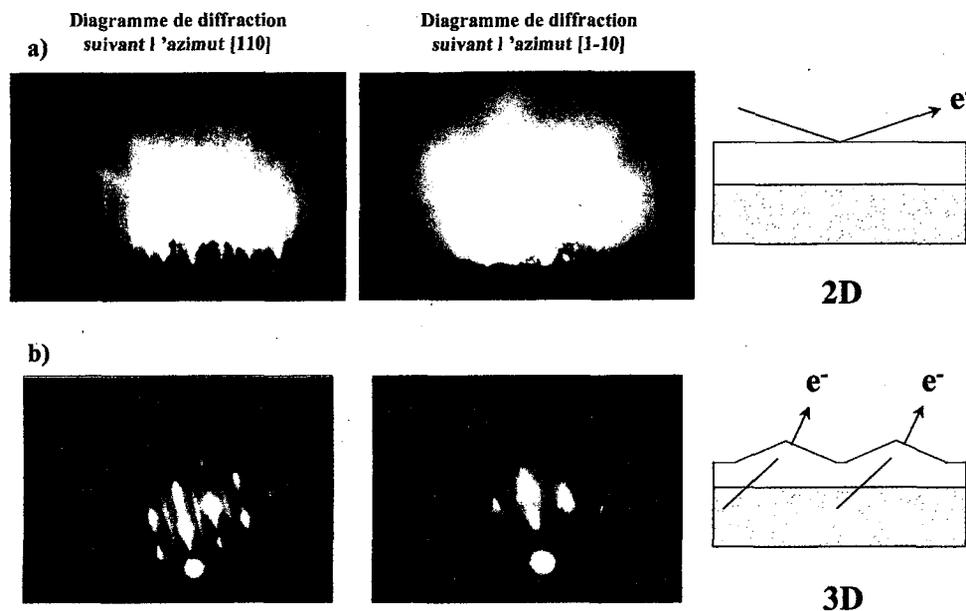


Figure 2.4. Diffraction en fonction de la morphologie : (a) lignes de diffraction dans le cas d'une couche plane (2D) : exemple d'une reconstruction de surface (2×4), (b) taches de diffraction caractéristiques d'une surface rugueuse (3D). Lors de la formation d'îlots 3D, l'apparition de nouveaux plans cristallins donne aux taches la forme de chevrons 'V'.

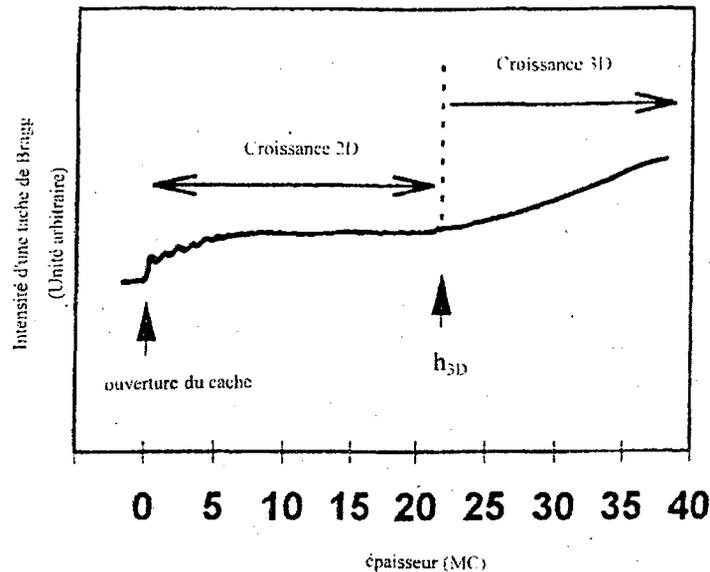


Figure 2.5. Mesure de l'intensité d'une fenêtre placée à l'endroit de l'apparition d'une tache de Bragg. Détermination de l'épaisseur critique H_{3D} de la transition 2D / 3D du mode de croissance. D'après [Gendry 95].

Mesure d'une vitesse de croissance : Oscillations RHEED

La réflexion pure du faisceau entraîne la présence de la tache spéculaire sur le diagramme RHEED. L'intensité de cette tache spéculaire est très sensible à la rugosité de la surface. En effet, les marches atomiques de la surface diffusent une partie des électrons qui ne seront plus collectés dans la tache spéculaire. Ainsi, l'intensité de la tache spéculaire est directement liée à la densité de marches présentes sur la surface. Or, lors de la croissance monocouche par monocouche (2D), la formation des nucléi et des marches se fait de façon cyclique : sur une surface idéalement plane, des terrasses nucléent et se développent. Puis les atomes arrivant sur la surface s'incorporent préférentiellement aux bords des terrasses existantes. Lorsque ces terrasses atteignent une taille suffisante, elles coalescent pour finalement former à nouveau un plan cristallin complet. Le cycle peut recommencer par la formation de nouveaux nucléi. Ce cycle peut être observé en suivant l'intensité de la tache spéculaire qui présente alors des oscillations régulières de périodicité T (Figure 2.6). Les maxima d'intensité réfléchi correspondent aux moments où la couche est la plus proche d'un plan cristallin idéal ($\theta = 0$ et $\theta = 1$). Les minima correspondent aux moments où la monocouche est à moitié remplie. Le temps séparant deux maxima d'intensité correspond

donc au temps de dépôt d'une monocouche, i.e. dans notre cas un plan d'éléments III et un plan d'éléments V. Ainsi la mesure du temps séparant deux maxima permet de déterminer la vitesse de croissance v par la relation simple $v = a / 2T$ (avec a le paramètre de la couche).

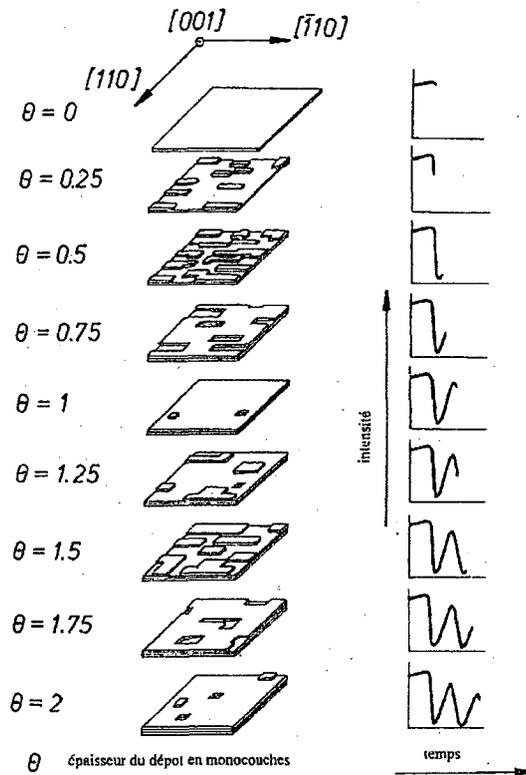


Figure 2.6. Interprétation des oscillations RHEED - Evolution de l'intensité de la tache spéculaire en fonction du taux de recouvrement θ (en MC). D'après [Neave 83].

Les reconstructions de surface

Pour les semi-conducteurs III-V, les liaisons atomiques non satisfaites du dernier plan atomique, dites liaisons pendantes, vont se réorganiser par la création de dimères afin de trouver une configuration énergétique plus favorable. Ce réarrangement des atomes en surface conduit à nouvelle structure périodique différente de celle du cristal massif. Sur les diagrammes RHEED, les reconstructions de surface sont facilement observables par l'apparition de raies supplémentaires dites « fractionnaires » entre les raies principales. Leur présence renseigne sur la périodicité de la surface.

Le réseau d'une surface orientée (001) non reconstruite a une maille élémentaire carrée, de paramètre $a\sqrt{2}$ et de directions principales $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. On parle de reconstruction $(p \times q)$ lorsque la période du réseau de surface est p fois plus grande dans la direction $[1\bar{1}0]$ et q fois

plus grande dans la direction [110] que pour la surface non reconstruite. Les entiers p et q sont supérieurs ou égaux à 1 et ils traduisent la nouvelle périodicité de la surface en unité de maille du cristal massif.

La nature des reconstructions varie en fonction du taux de recouvrement de surface en éléments constituant le dernier plan de surface et donc des paramètres de croissance. Par exemple, les reconstructions de la surface d'InP(001) varient en fonction de la température et des pressions en éléments V et III [Labella 00, Junno 96]. La transition d'une reconstruction à une autre permet ainsi de calibrer la température du substrat.

2.1.3 Procédures et paramètres expérimentaux

Les paramètres de contrôle de la croissance: $E_{\text{InAs}} / T_c / P_{\text{As}} / V_c$

Les paramètres de contrôle de la croissance d'une couche en MBE (Figure 2.7) sont donnés par l'épaisseur déposée d'InAs E_{InAs} définie ici en nombre de monocouche (1 MC d'InAs équivaut à 3,03 Å pour une surface (001)), la température de croissance T_c en degré Celsius, la pression équivalente dans le flux d'éléments V (P_{As_2} et P_{P_2}) en torr et la vitesse de croissance V_c en MC/s ou $\mu\text{m/h}$, fixé par le flux d'élément III (ici l'indium)

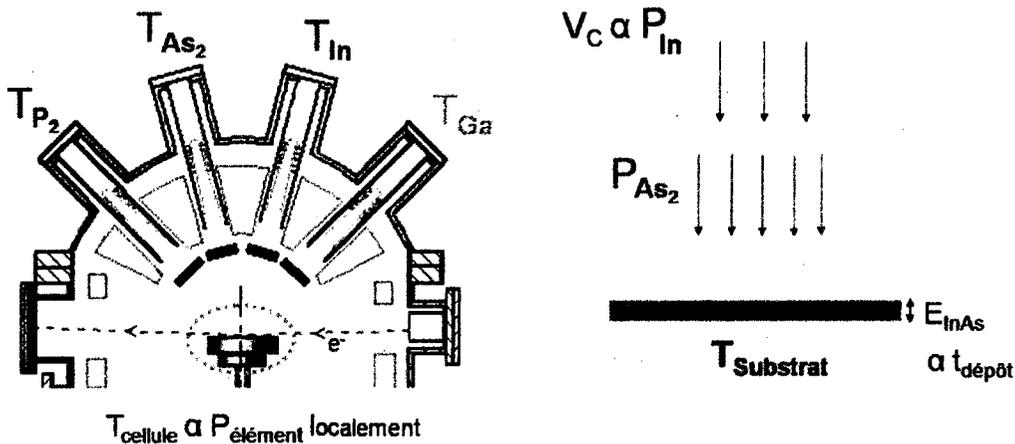


Figure 2.7. Paramètres de contrôle lors de la croissance d'une couche d'InAs en MBE.

Croissance des échantillons

Deux types d'échantillons sont réalisés pour étudier l'influence des paramètres de croissance sur les propriétés morphologiques et optiques des boîtes quantiques d'InAs/InP. Le

Tableau 2.1 présente les séquences typiques des différentes étapes de la croissance d'un échantillon de boîtes quantiques d'InAs non capées pour une observation de la surface par microscopie à force atomique et capées par une couche d'InP pour l'étude optique par photoluminescence.

Les échantillons ont été élaborés par MBE sur des substrats nominaux d'InP(001) semi-isolants de la société InPact. Ces substrats prêts à l'emploi sont recouverts par une fine couche d'oxyde natif d'une dizaine d'angström d'épaisseur. La première étape consiste donc à désorber cette couche. Les substrats d'InP collés à l'indium sur un molyblock sont chauffés à 200°C à 10^{-8} torr avant d'être introduits dans le réacteur afin d'évaporer tout d'abord les contaminations carbonées de surface. L'oxyde est ensuite désorbé dans le réacteur sous une pression de phosphore (P_2) de 10^{-5} torr en montant la température du substrat à environ 50°C/min jusqu'à environ 530°C. Cette température correspond à la transition de reconstruction (2×1) à (2×4) stabilisé phosphore. La désorption complète de l'oxyde est associée à l'observation de la (2×4) . La surface est alors maintenue quelques secondes à cette température puis abaissée jusqu'à observer la transformation de la (2×4) vers une (2×1) à 470°C. Cette étape sert principalement à la calibration en température de l'échantillon. Les températures mesurées soit par pyrométrie, soit avec un thermocouple, sont calibrées par rapport à la température de fusion de l'InSb égale à 525°C dans une ambiance ultravide.

Une couche tampon d'InP de quelques centaines de nanomètres d'épaisseur est ensuite épitaxiée à 480°C avec la même pression de phosphore et une vitesse de croissance d'1 $\mu\text{m/h}$. Ces conditions standard de croissance permettent d'obtenir une reconstruction (2×4) de la surface. Le substrat est ensuite amené à la température de croissance d'InAs.

Avant le dépôt d'InAs, la surface d'InP est exposée 2 secondes sous phosphore et arsenic simultanément pour éviter que la surface ne soit plus exposée à un flux d'éléments V lors de la commutation. La valve de phosphore est ensuite fermée et la surface maintenue 10 s sous arsenic. Une fine couche d'InAs est alors formée en surface par échange P/As d'environ 1 à 2 MC d'épaisseur (voir chapitre 3). La couche d'InAs est ensuite épitaxiée dans les conditions choisies.

Ensuite les échantillons sont descendus rapidement à la température ambiante sous une pression d'élément V pour les caractérisations par AFM. Pour les mesures de PL, les échantillons sont recouverts de 40 nm d'InP.

Tableau 2.1 Séquences typiques des caches pour la croissance d'un échantillon de boîtes d'InAs (a) non capé pour observations par AFM et (b) capé par une couche d'InP pour la PL. Légende : AC : Arrêt de Croissance ; SW : « switch » : commutation des caches éléments V ; DT : Descente en Température ; TA : Température Ambiante. L'arrêt de croissance et la descente en température se fait sous atmosphère d'éléments V.

(a) AFM	Désox. InP	Tampon InP 100 nm	AC P ₂	SW	AC As ₂	InAs 3 MC	AC As ₂	DT As ₂	DT P ₂ ou vide
In 1 μm/h									
P ₂									
In 0,2 MC/s									
As ₂									
BEP V (μtorr)	10	10	10	10/2	2	2	2	2	4
Temps (s)		360	600	2	10	15	10	40	600
T _s (°C)	→540	480	510	510	510	510	510	→TA	470→TA

(b) PL	Désox. InP	Tampon InP 100 nm	AC P ₂	SW	AC As ₂	InAs 3 MC	AC As ₂	Cape InP 40 nm	DT P ₂
In 1 μm/h									
P ₂									
In 0,2 MC/s									
As ₂									
BEP V (μtorr)	10	10	10	10/2	2	2	2	10	4
Temps (s)		360	600	2	10	15	10	144	600
T _s (°C)	→540	480	510	510	510	510	510	510	→TA

2.2 Caractérisation morphologique des îlots

2.2.1 Microscopie à force atomique

La microscopie à force atomique (AFM) a été utilisée dans cette étude pour obtenir « rapidement » la topographie de surface des échantillons non capés à l'échelle nanométrique. Les images des îlots ont été effectuées à l'air ambiant sur un AFM Digital Instruments CP-II de la compagnie Veeco Instruments par Gengzhao Xu, Yves Robach et moi-même. L'analyse des images renseigne sur la forme, la densité, les dimensions et l'organisation spatiale des

filots non capés. Ses principaux avantages sont une mise en œuvre rapide et une relative facilité d'utilisation.

Le principe de l'AFM (Figure 2.8) en mode imagerie repose sur les interactions à courtes portées entre une pointe sonde et une surface. Très proche de la surface, la pointe idéalement atomique subit des forces d'interaction décrites classiquement par le potentiel de Lennard-Jones : $V(r) = 4\epsilon [(\sigma/r)^{12} - (\sigma/r)^6]$. Selon la distance pointe-surface, elles peuvent être de nature attractive : forces de Van der Waals ou alors répulsive : forces d'interactions coulombiennes électroniques. Lorsque la pointe montée à l'extrémité d'un microlevier flexible balaye la surface, elle subit ces forces d'interaction. La déflexion Δz du bras de levier de raideur k est proportionnelle à la valeur de ces forces F telle que $F = k \times \Delta z$. Un système électronique d'asservissement permet d'ajuster la distance pointe-surface afin de maintenir constante la force entre la pointe et l'échantillon pendant le balayage. La pointe suit précisément la surface de l'échantillon en tout temps et de manière contrôlée. On obtient ainsi une image iso-force de la surface qui reflète sa topographie. Généralement, la déflexion du levier est détectée avec précision par la réflexion d'un laser focalisé sur le levier et une photodiode à quadrants. Les balayages vertical et latéral sont assurés par un système piézoélectrique triaxe calibré sur lequel repose l'échantillon.

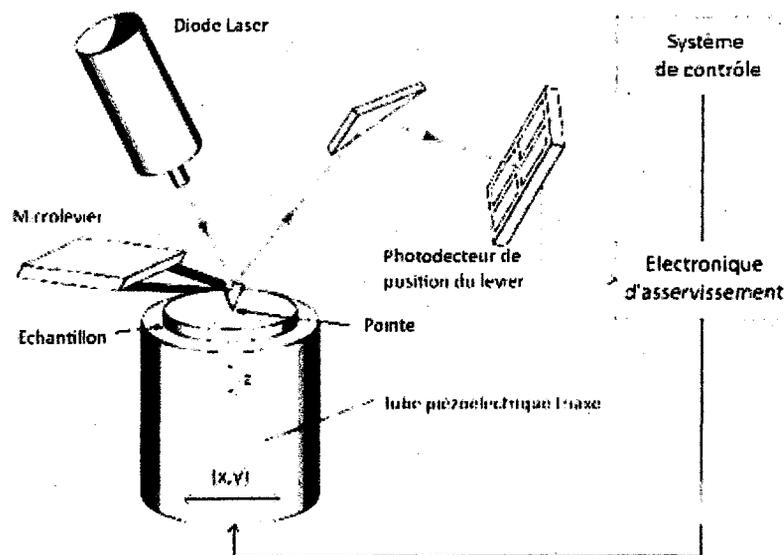


Figure 2.8. Schéma de principe d'un microscope à force atomique.

Deux modes d'acquisition topographique ont été utilisés : le mode «contact» et le mode «contact intermittent». Pour le premier, la pointe est en contact permanent avec l'échantillon

et une force constante de référence est appliquée suivant z causant la déflexion du cantilever. Ce niveau prédéfini de déflexion est maintenu constant durant le balayage par le système d'asservissement électronique qui actionne le tube piézoélectrique selon l'axe vertical z afin de compenser la déviation. Le signal de correction en z pour chaque coordonnées (x,y) de surface sert à générer l'image topographique. Pour le second mode, la pointe légèrement au-dessus de la surface, est mise en vibration à une fréquence proche de la résonance du microlevier et vient toucher la surface par intermittence. L'amplitude, la fréquence et la phase initiale de vibration sont modifiées au cours du balayage par la topographie de surface. Dans notre cas, le signal d'asservissement est pris sur l'amplitude qui est maintenue constante par ajustement de la distance pointe-surface. Le signal de correction du piézoélectrique sert une nouvelle fois à générer l'image de la surface. L'avantage de ce mode d'imagerie est d'améliorer la résolution latérale sur des échantillons à forte densité car il permet d'éliminer les forces latérales présentes en mode contact et de réduire les effets de convolution de pointe.

Des zones, variant de $5\ \mu\text{m}$ de côté jusqu'à $300\ \text{nm}$ de côté, ont été balayées (Figure 2.9(a)) afin d'obtenir une vue générale de la distribution spatiale et une vue plus précise de la forme et des dimensions des îlots. Les images ont été construites et analysées avec le logiciel libre Gwyddion³. La définition des images AFM a été prise en général à 256×256 pixels carrés quelle que soit la surface balayée afin de limiter le temps d'acquisition, la dérive latérale du tube piézo et la taille des fichiers. Le balayage de la pointe a été fait selon les directions $\langle 100 \rangle$ afin d'imager correctement les élongations des îlots suivant $[1\bar{1}0]$. Le traitement statistique permettant de déterminer la densité, la hauteur, le diamètre, la surface et le volume de chaque îlot a été réalisé sur des images de taille $1 \times 1\ \mu\text{m}^2$ ou $0,5 \times 0,5\ \mu\text{m}^2$ de différentes zones de l'échantillon. Des algorithmes de détection de particules (« threshold segmentation » et « watershed ») fournis dans le logiciel ont été utilisés pour extraire rapidement ces paramètres sur des échantillons de faible à moyenne densité (Figure 2.9(b)). Par contre, à plus haute densité, les îlots apparaissent accolés et ne sont plus correctement discriminés par le logiciel. Les résultats sont souvent erronés. Nous avons opté alors pour une analyse « manuelle » du profil sur chacun des îlots, plutôt fastidieuse mais évidemment plus fiable (Figure 2.9(c)).

³ <http://gwyddion.net/>

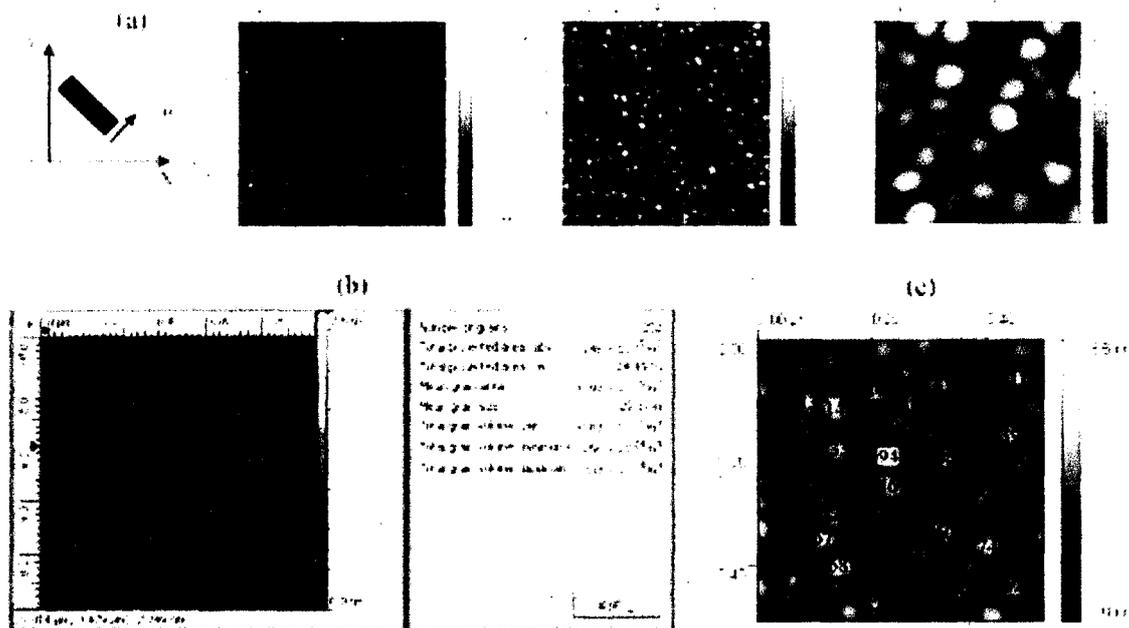


Figure 2.9. (a) Images AFM de différentes tailles d'un échantillon d'îlots non capés. Le balayage de la pointe AFM est réalisé suivant $\langle 100 \rangle$ c'est-à-dire à 45° de la direction de clivage $[110]$ de l'échantillon. (b) Analyse de la densité, de la hauteur et du diamètre par un algorithme de détection automatique de grains sous le logiciel Gwyddion et (c) par une méthode « manuelle » pour un échantillon à forte densité.

L'AFM présente cependant certaines limitations. Tout d'abord, la détermination précise de la forme, des facettes et des dimensions latérales des boîtes est difficile à l'AFM à cause des effets de pointe. L'image résultant du passage de la pointe sur l'échantillon est une convolution de la morphologie de surface avec la forme de la pointe. L'image finale obtenue dépend donc fortement de la qualité de la pointe c'est-à-dire du rayon de courbure et du ratio des tailles extrémité/hauteur [Mechler 05, Shiramine 07]. Pour des échantillons à forte densité, la taille de nos pointes ne permet pas d'imager avec fidélité la forme ainsi que les dimensions des îlots. Les dimensions en AFM sont souvent majorées par rapport aux observations plus précises faites au TEM [Carlsson 98]. De plus, les mesures sont réalisées à l'air ambiant et une couche d'oxyde isolant se forme en surface de l'échantillon modifiant encore une fois les dimensions réelles des îlots.

Un autre désavantage concerne la procédure d'observation ex-situ des îlots par AFM. On doit pour ce faire refroidir rapidement l'échantillon non capé jusqu'à température ambiante sous une atmosphère d'éléments V ou de pression résiduelle du réacteur afin de « geler » la morphologie de surface après la croissance pour une observation à l'extérieur. Or, il a été

montré dans le système InAs/InP que ces processus post-croissance pouvaient sous certaines conditions modifier drastiquement la forme, la taille et la densité des îlots d'InAs par des échanges Arsenic/Phosphore [Frechengues 99a, Walther 00, Gutiérrez 02]. Par exemple, Gutiérrez et al. ont montré, qu'un refroidissement sous phosphore conduit à une érosion rapide, des îlots jusqu'à leur disparition et laisse place à des ondulations de surface d'InP. Inversement, un refroidissement sous arsenic mène à un excès d'InAs par rapport à la quantité déposée et conduit à la coalescence des bâtonnets en îlots isotropes. Enfin, le refroidissement sous la pression résiduelle du réacteur semble conserver la morphologie des îlots. Ce dernier résultat est en contradiction avec ceux de Yang et coll. où les auteurs ont pu observer une transformation des bâtonnets en îlots dans ces conditions [Yang 01]. De plus, il est peu recommandé en raison de la désorption importante d'As et la formation de billes d'indium en surface, surtout si la température de croissance est élevée. Cette évolution pendant le refroidissement restreint l'intérêt de l'AFM car elle empêche d'obtenir avec certitude une image représentative des îlots après leur croissance. Ces effets sont indésirables lorsque des études morphologiques sont faites pour comprendre les mécanismes de croissance. Par contre, comme nous le verrons dans la suite de ce manuscrit, ils peuvent être exploités de manière intentionnelle pour la fabrication de boîtes diluées dans le système InAs/InP(001) [Dupuy 06]. Il convient donc d'être vigilant sur les corrélations des images avec les paramètres de croissance.

Conscient de ce problème, une méthode a été mise au point à l'INL pendant la thèse de Julien Braut pour limiter au maximum l'évolution parasite des bâtonnets pendant le refroidissement [Braut 00]. La procédure adoptée, bien que loin d'être idéale, est un compromis des effets As/P cités plus haut. Elle consiste à commuter le flux d'arsenic stabilisant les îlots d'InAs par un faible flux de phosphore (4×10^{-6} torr de P_2) 30 secondes à 1 minute après le début du refroidissement de l'échantillon, à une température d'échantillon voisine de 470°C. Les résultats montrent que ce refroidissement partiel sous phosphore permet, par exemple, de conserver la morphologie des bâtonnets formés à la température de croissance. Pour le cas de la croissance directe de boîtes, la forme des îlots est légèrement modifiée (Figure 2.10). Lorsque les îlots sont refroidis sous As jusqu'à température ambiante, un allongement suivant [110] est observé. Au contraire, lorsque la descente a lieu sous phosphore les îlots sont plutôt allongés suivant $[1\bar{1}0]$. Ce phénomène a été observé tant que la commutation As/P est déclenchée au dessus de 300°C. Les dimensions, particulièrement la hauteur, ne sont pas non plus très représentatives des îlots après la croissance à cause de

l'augmentation du volume des îlots sous arsenic par des réactions d'échange P/As post-croissance puis par l'érosion de ces îlots par le phosphore. Par contre, la procédure ne semble pas modifier la densité surfacique des îlots.

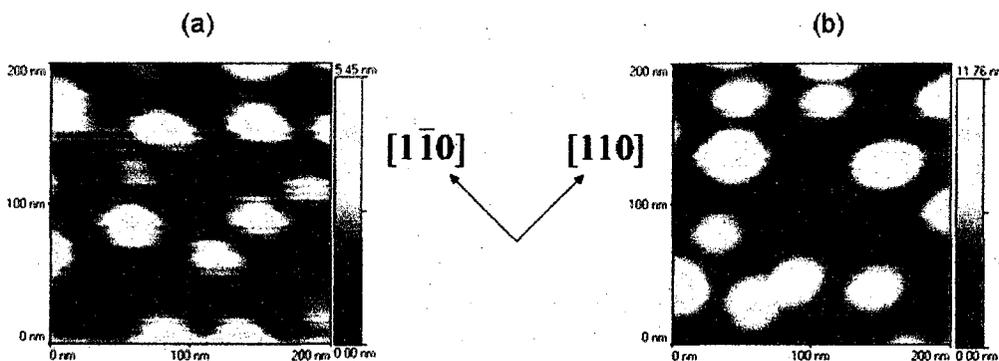


Figure 2.10. Images AFM de boîtes descendues jusqu'à température ambiante : (a) sous 4×10^{-6} torr de P_2 , 30 s après le début de la descente sous As_2 ; (b) sous As_2 . Les conditions de croissance des boîtes sont: 2 MC/530°C/ 8×10^{-6} torr /0,2 MC/s suivi de 10s de recuit à 530°C.

On peut conclure que l'AFM permet une analyse statistique rapide et précise de la distribution spatiale et de la densité des boîtes et sous certaines conditions de leur forme générale. Par contre, des précautions sont à prendre concernant la taille et la forme détaillée des boîtes.

2.2.2 Microscopie électronique en transmission

Des images de microscopie électronique en transmission (TEM) ont été obtenues sur certains échantillons par Gilles Patriarche du Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN) à Marcoussis. Le principal intérêt de cette technique est qu'elle donne accès directement aux caractéristiques morphologiques et structurales des boîtes encapsulées dans leur matrice avec une résolution nanométrique. Bien que la préparation des échantillons reste longue et délicate, cette technique ne requiert aucune procédure de croissance spécifique, contrairement à l'AFM. Elle rend ainsi possible une corrélation directe entre les propriétés morphologiques et optiques.

Le TEM repose sur l'interaction élastique d'un faisceau d'électrons énergétiques avec un échantillon cristallin suffisamment aminci (~ 100 nm) pour que les électrons soient transmis. La Figure 2.11 montre le schéma de principe d'un TEM.

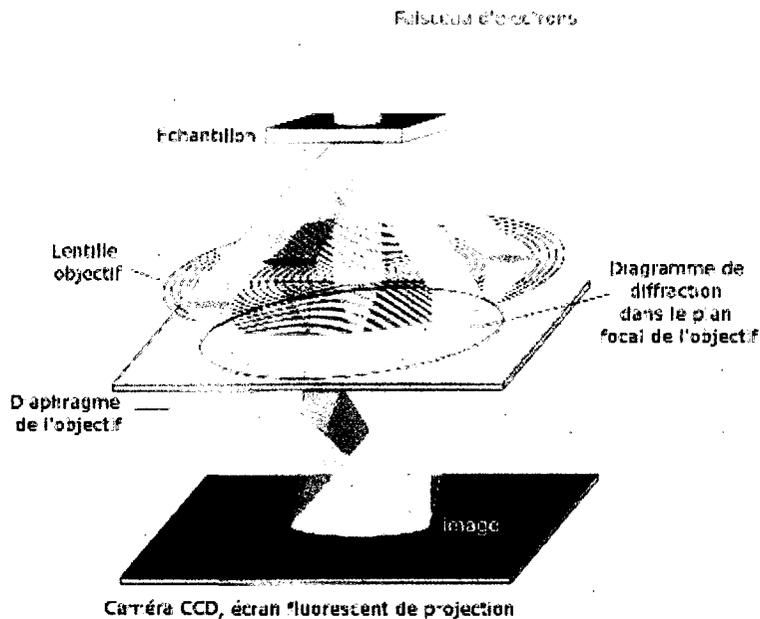


Figure 2.11. Schéma de principe du microscope électronique en transmission. Chaque faisceau diffracté par l'échantillon est focalisé en un point dans le plan focal image de l'objectif et forme un motif de diffraction caractéristique. Un diaphragme d'ouverture variable permet de sélectionner les faisceaux qui interféreront pour former l'image (d'après [Shchukin 04]).

Un faisceau d'électrons incident de vecteur d'onde \mathbf{k} diffracte lors de son passage dans l'échantillon et donne naissance en sortie à une série de faisceaux de vecteur d'onde \mathbf{k}' tel que la condition de Bragg $\mathbf{k}' = \mathbf{k} + \mathbf{G}_{hkl}$ soit respectée, avec \mathbf{G}_{hkl} le vecteur du réseau réciproque du cristal étudié. Ces faisceaux d'électrons diffractés par l'échantillon sont collectés par la lentille objective et chaque composante des fréquences spatiales est focalisée dans le plan focal de l'objectif. L'image formée dans ce plan focal permet donc d'observer le cliché de diffraction caractéristique de la structure cristalline de l'échantillon. C'est le mode de diffraction. En variant la position et l'ouverture du diaphragme inséré au niveau du plan focal, il est possible de sélectionner un ou plusieurs faisceaux diffractés qui vont rejoindre un écran fluorescent ou une caméra CCD et contribuer à la formation de l'image reconstruite de l'échantillon. C'est le mode image. Un système de lentilles de projection (non montré sur le schéma) est utilisé pour faire des agrandissements variables de la zone sondée.

Selon l'orientation de l'échantillon et les taches de diffraction sélectionnées pour former l'image, celle-ci peut faire apparaître des contrastes. En microscopie conventionnelle, le contraste de l'image pour un échantillon cristallin est principalement relié à l'orientation des

plans, la nature chimique des atomes et aux déformations des plans liés aux champs de contraintes. L'image peut être formée soit avec le faisceau transmis (image en champ clair) soit avec un faisceau diffracté particulier (image en champ sombre). Certaines imageries sont liées à des conditions de diffraction particulière. Le cristal est alors orienté de façon à ce qu'une seule tache diffractée soit exactement dans les conditions de Bragg. Pour l'étude TEM de semi-conducteur de structure zinc-blende, les principaux faisceaux utilisés sont {200} et {220}. En effet, l'amplitude diffusée dans la direction $\mathbf{k}' = \mathbf{k} + \mathbf{g}$ est proportionnelle au facteur de structure géométrique qui est donné par :

$$F_S(\mathbf{g}_{hkl}) = 4 \left[f_c^A(\mathbf{g}_{hkl}) + f_c^B(\mathbf{g}_{hkl}) \exp \frac{2\pi i(h+k+l)}{4} \right] \quad (2.1)$$

et valable pour un semi-conducteur binaire AB (InP ou InAs) de structure zinc-blende, avec $f_c^A(\mathbf{g}_{hkl})$ et $f_c^B(\mathbf{g}_{hkl})$ les facteurs de diffusion des électrons des atomes A et B [Shchukin 04]. Les facteurs de structure pour les faisceaux {200} et {220} sont alors donnés par

$$F_S(\mathbf{g}_{200}) \propto [f_c^A(\mathbf{g}_{200}) - f_c^B(\mathbf{g}_{200})] \quad (2.2)$$

$$F_S(\mathbf{g}_{220}) \propto [f_c^A(\mathbf{g}_{220}) + f_c^B(\mathbf{g}_{220})] \quad (2.3)$$

On peut voir ainsi que le faisceau {200} est particulièrement sensible au changement de composition chimique. Tandis que le faisceau {220} est sensible au champ de déformation et à la présence de défauts de type dislocations dans l'échantillon.

Pour étudier nos nanostructures, deux types d'images en TEM ont été réalisés. Les boîtes ont été observées en vue plane (vue du dessus) et en vue de côté (coupe transversale). Les vues planes fournissent des informations sur la densité, les dimensions latérales, la forme globale. Les vues de côté donnent la hauteur des boîtes et les angles des facettes. La composition chimique et les champs de déformation dans et autour des boîtes ont été également analysés sur les deux types d'image. Pour nos boîtes d'InAs sur InP(001), la vue plane est réalisée avec l'échantillon orienté en axe de zone [001], le plus souvent en champ clair. Ces échantillons sont préparés par polissage mécanique suivi d'un amincissement chimique. Pour la vue en coupe, les échantillons sont imagés selon $\langle 110 \rangle$ ou $\langle 100 \rangle$ en utilisant la tache g_{200} . L'amincissement est par contre réalisé par bombardement ionique sous incidence rasante par des ions argon (Ar^+) accélérés à 2,5 keV. Les images présentées dans ce travail ont été obtenues sur un TEM Philips CM20 « super twin » à 200 kV.

2.3 Caractérisation optique d'un ensemble de boîtes quantiques

Les propriétés optiques des boîtes sont reliées directement à leurs caractéristiques structurales. Elles dépendent notamment de la géométrie, de la taille et de la composition des boîtes. Les méthodes de caractérisations optiques qui sont sans contacts et non destructives sont particulièrement bien adaptées pour sonder la structure électronique et les processus de relaxation dans les boîtes. Nous présentons l'une d'entre elles, la photoluminescence continue.

2.3.1 Photoluminescence continue

La photoluminescence continue (PL) est la technique de spectroscopie standard pour caractériser les propriétés optiques des semi-conducteurs. Elle consiste à créer des porteurs de charges dans le semi-conducteur à l'aide d'une source d'excitation intense et continue, généralement un laser dont les photons possèdent une énergie supérieure à la bande interdite du semi-conducteur puis à collecter et à analyser la lumière émise lors de la recombinaison des porteurs. Dans le cas des nanostructures semi-conductrices (Figure 2.12), les photons absorbés dans la barrière génèrent des paires électron-trou qui relaxent rapidement vers les niveaux d'énergie les plus bas avant de se recombiner de façon radiative. Le signal de PL dépend des temps de vie des différents processus de relaxation. Dans le cas d'une relaxation efficace, le signal de PL est dominé par les transitions interbandes entre les premiers niveaux confinés d'électrons et de trous. Grâce à cette technique, nous obtenons des informations sur les niveaux d'énergie les plus bas des boîtes. L'étude en puissance d'excitation permet de sonder les niveaux excités supérieurs s'ils sont confinés.

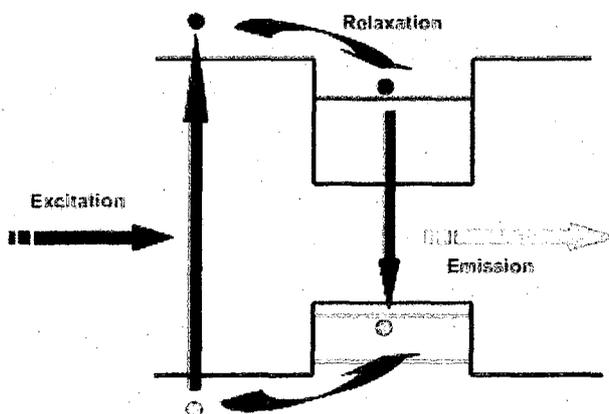


Figure 2.12. Schéma illustrant le principe de la photoluminescence.

La taille du faisceau laser est assez large ($\sim 100 \mu\text{m}$ de diamètre) et sonde une grande quantité de boîtes. Le spectre de luminescence est alors large, typiquement quelques dizaines voir centaines de meV (voir Figure 2.14). Il résulte de l'émission de l'ensemble des différentes boîtes sondées. La largeur à mi-hauteur (FWHM) renseigne alors sur la dispersion en taille des boîtes (largeur inhomogène). La position spectrale du pic reflète directement la taille et la forme des boîtes les plus nombreuses. Enfin l'intensité de PL renseigne sur la qualité structurale et la densité des boîtes.

2.4 Caractérisations optiques de boîtes quantiques uniques

L'utilisation d'une boîte comme émetteur dans des sources quantiques de lumière (cf. chapitre 1) nécessite au préalable une étude approfondie de leurs propriétés intrinsèques individuelles. Deux techniques de spectroscopie optique à grande résolution spatiale sont présentées : la micro-photoluminescence et la cathodoluminescence à basse tension d'accélération.

2.4.1 Micro-Photoluminescence

La spectroscopie de boîtes individuelles d'InAs/InP par μPL a été réalisée sur des échantillons à forte densité par Nicolas Chauvin à l'INL-site INSA de Lyon sous la direction de Catherine Bru-Chevallier [Chauvin 06d]. Nous décrivons ici très brièvement le principe et les conditions nécessaires à l'observation de raies individuelles par $\mu\text{-PL}$. Le dispositif expérimental utilisé pour obtenir les spectres est également présenté.

Isolement d'un faible nombre de boîtes

Dans les expériences de micro-photoluminescence, l'excitation et la détection locale sont obtenues avec une résolution spatiale au mieux d'un micromètre. Pour des densités de boîtes élevées ($\sim 100 \mu\text{m}^{-2}$), la distance inter-boîtes étant inférieure à la résolution, un nombre trop important de boîtes est alors sondé. A moins de diminuer fortement la densité de boîtes ($\sim 1 \text{boîte}/\mu\text{m}^2$ et moins), il est nécessaire de recourir à l'isolement spatial de quelques boîtes si l'on veut observer l'émission d'une seule boîte. Cet isolement spatial a été démontré de deux façons, soit par gravure de mesas de faibles diamètres [Marzin 94], soit par des ouvertures submicroniques dans un masque métallique opaque déposé à la surface de l'échantillon [Gammon 95] (Figure 2.13). Ces structures sont généralement fabriquées par lithographie à faisceau d'électrons suivie d'une gravure du matériau.

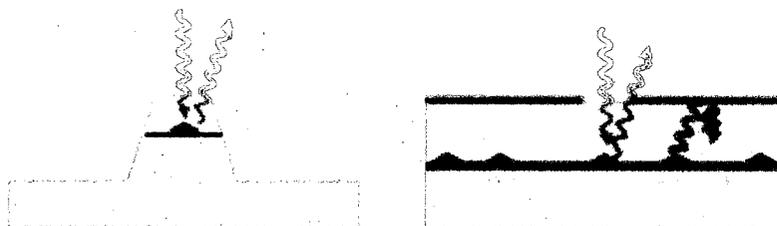


Figure 2.13. Deux techniques d'isolation spatiale de boîtes (a) par la gravure d'un mesa et (b) par une ouverture submicronique dans un masque métallique. L'excitation du laser est en rouge et la luminescence des boîtes isolées spatialement est représentée en magenta. L'émission des boîtes en dehors de l'ouverture (en noire) est bloquée par le masque.

Grâce à ces techniques, il est possible de réduire la fenêtre d'observation et d'isoler la raie de photoluminescence d'une boîte unique de la distribution inhomogène. La Figure 2.14 présente les spectres de μ PL de boîtes en fonction de la taille de l'ouverture d'un masque métallique déposé en surface de l'échantillon. A mesure que la dimension de l'ouverture diminue, l'allure du spectre change. Le spectre de μ PL de quelques boîtes est identifié par l'apparition de fines raies en contraste avec les spectres élargis de PL observés sur un ensemble de boîtes.

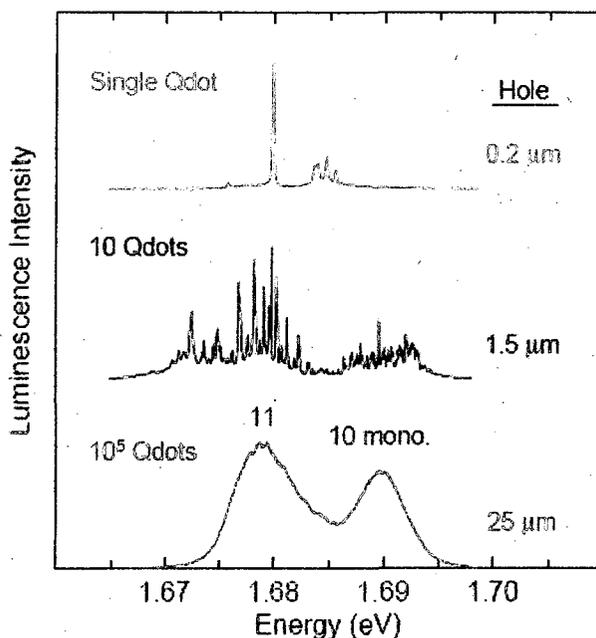


Figure 2.14. Spectres de μ PL d'un échantillon de boîtes à forte densité à travers des ouvertures variables dans un masque métallique [Gammon 98]. Le spectre d'une boîte individuelle est isolé pour une ouverture submicronique.

Cette méthode a également été adoptée pour étudier l'émission de quelques boîtes d'InAs/InP. Par contre, les ouvertures dans le masque métallique sont obtenues par un procédé plus simple utilisant des billes de latex et développé dans la thèse de Nicolas Chauvin [Chauvin 06b]. Son principe consiste à disperser uniformément des billes de latex de quelques centaines de nanomètres à la surface de l'échantillon avant le dépôt du masque métallique de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur. Les billes sont ensuite enlevées par attaque chimique et laissent place à des trous dont les dimensions sont de l'ordre du diamètre des billes.

L'émission d'une boîte unique d'InAs/InP sur un échantillon de densité de l'ordre de $100 \mu\text{m}^{-2}$ a été ainsi obtenue avec ce procédé pour une ouverture de 200 nm dans un masque d'or de 40 nm d'épaisseur déposé en surface. La largeur à mi-hauteur des raies est limitée par la résolution du système de détection soit environ $200 \mu\text{eV}$. En réalité, les raies ont une largeur dite homogène, inférieure de l'ordre de quelques dizaines de μeV [Gammon 98].

Dispositif expérimental

Le schéma du banc de microphotoluminescence situé à l'INSA de Lyon est représenté sur la Figure 2.15 ci-dessous. L'excitation lumineuse est fournie par un laser He-Ne continue (632 nm) puis focalisée sur l'échantillon avec une taille du spot d'environ $2 \mu\text{m}$ au moyen d'un objectif achromatique de grande ouverture numérique ($\times 20$, $\text{NA}=0,4$).

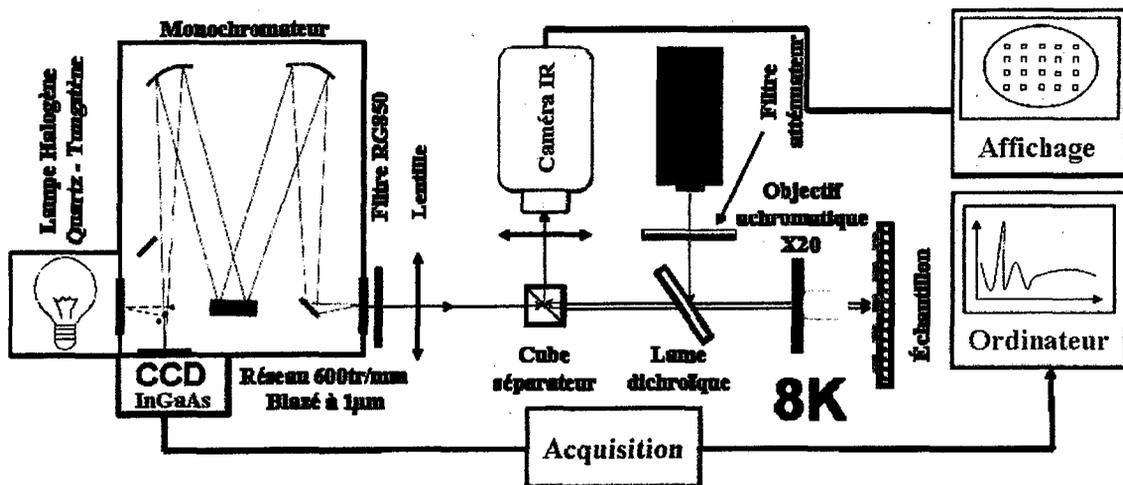


Figure 2.15. Schéma du banc de Micro-Photoluminescence, d'après [Chauvin 06b].

La puissance d'excitation est ajustée en insérant des filtres neutres sur le parcours du faisceau d'excitation et varie entre 200 nW et 2 mW. Une caméra infrarouge permet de repérer les trous ou mésas luminescents éclairés par le laser ou une lampe blanche. Le signal de photoluminescence issu de l'échantillon est ensuite collecté par le même objectif de microscope, filtré et envoyé vers le système de détection optique. La lumière est dispersée par le spectromètre Jobin Yvon 300 associé à un réseau de 600 traits/mm blazé à 1 μm , puis détecté par une barrette CCD d'InGaAs de 512 pixels refroidie à l'azote liquide. Cette barrette permet d'accumuler le signal sur une plage de 70 nm dans la gamme spectrale de 0,8 à 1,6 μm . La résolution maximale, de l'ordre de 70 μeV ($\sim 0,15$ nm), est limitée par la taille du pixel. En prenant en compte l'ensemble du banc expérimental, la résolution spectrale du montage est estimée autour de 200 μeV ($\sim 0,4$ nm). L'échantillon est monté sur un doigt froid dans un cryostat à hélium liquide permettant des mesures en température dans la gamme de 8 à 300 K. Toutes les mesures d'émission de boîtes uniques sont réalisées à basses températures pour limiter les recombinaisons non radiatives.

2.4.2 Cathodoluminescence

La cathodoluminescence (CL), plus méconnue que la μPL , est une autre technique à sonde locale qui peut être utilisée pour étudier les propriétés de nanostructures semi-conductrices individuelles. Nous présenterons de manière détaillée son principe de fonctionnement et les conditions nécessaires pour l'obtention d'une grande résolution spatiale latérale.

Introduction

La cathodoluminescence (CL) est par définition l'émission de lumière consécutive au bombardement d'un matériau par des électrons. C'est également le nom d'une technique de caractérisation qui permet de sonder les propriétés électroniques et optiques de matériaux luminescents. Cette technique de caractérisation présente de nombreux avantages, notamment d'être sans contact et relativement non destructive. Elle est reconnue comme étant un outil efficace pour analyser des matériaux luminescents tels que des semi-conducteurs à larges bandes interdites (GaN, ZnO) aussi bien à l'échelle micrométrique que nanométrique [Gustafsson 98].

Pratiquement, pour générer un faisceau d'électrons, un microscope électronique à balayage (MEB) ou un microscope électronique à balayage en transmission (STEM) est

généralement utilisé. Les électrons sont accélérés à une énergie qui peut varier de quelques keV à quelques centaines de keV. En pénétrant dans l'échantillon, les électrons incidents subissent des chocs élastiques et inélastiques avec les atomes du matériau transférant progressivement leur énergie cinétique. Le volume dans lequel les électrons primaires cèdent leur énergie, connu sous le nom de volume d'interaction, prend la forme d'une poire dont les dimensions dépendent principalement de la tension d'accélération et du numéro atomique composant l'échantillon. Dans ce volume, différents types d'électrons et rayonnements sont produits, tels qu'illustrés sur la Figure 2.16, et peuvent être détectés en surface par des capteurs spécifiques.

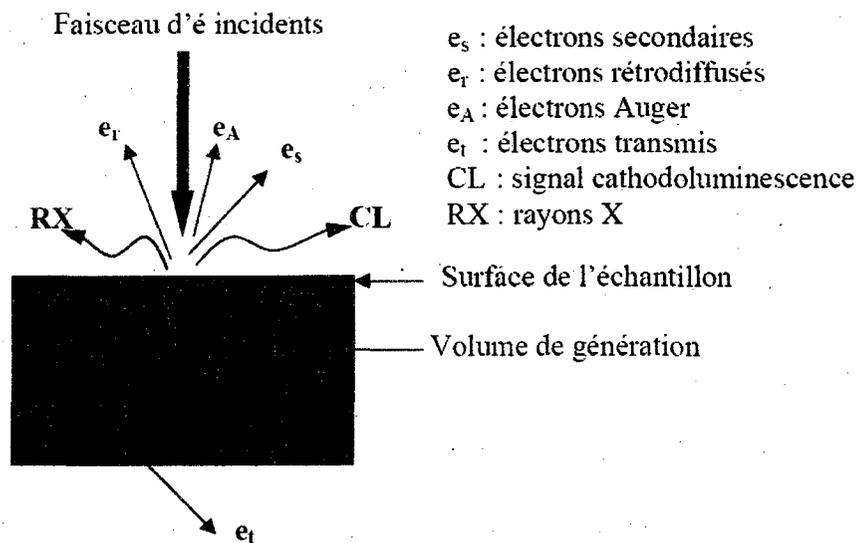


Figure 2.16. Représentation schématique des différents types d'électrons et rayonnements liés à l'interaction d'un faisceau d'électrons avec un solide. D'après [Lahkak 03].

Dans le cas d'un matériau semi-conducteur, l'interaction du faisceau d'électrons avec l'échantillon crée des paires électron-trou dans le volume d'interaction qui diffusent jusqu'à leurs recombinaisons. Si ces recombinaisons sont radiatives, la lumière émise par l'échantillon est récupérée par un système de collection optique dans l'enceinte du microscope et analysée sur un banc de spectroscopie à l'extérieur de la chambre. On obtient, ainsi, le spectre de cathodoluminescence de la région sondée de l'échantillon. Grâce à la finesse de sonde et à la possibilité de balayage du faisceau électronique dans un MEB/STEM, il est possible de réaliser des images de CL de l'échantillon et faire une cartographie localisée de la lumière émise par l'échantillon. Cette cartographie de luminescence peut être faite soit en mode monochromatique en sélectionnant une longueur d'onde avec le monochromateur,

soit en mode panchromatique en intégrant toute la lumière émise. Il est également possible de visualiser simultanément l'image topographique, grâce au signal en électrons secondaires, et l'image de CL afin de corrélérer au besoin les propriétés optiques et morphologiques de l'échantillon.

Dispositif expérimental

Un schéma complet du dispositif de CL situé dans les salles blanches du CRN2-Sherbrooke est présenté sur la Figure 2.17. Notre système de détection de CL est associé au microscope électronique à balayage Zeiss Supra 55 VP muni d'un canon à électrons à émission de champ de type Schottky. Ce type de source présente l'avantage de générer un faisceau d'électrons monocinétique, stable, ayant une forte intensité et une petite taille de sonde même à faible tension d'accélération (3 nm à 1 kV), ce qui permet des fortes densités de courant et ainsi une meilleure résolution sur les images topographiques. Les électrons extraits de la cathode sont mis en forme dans la colonne. Ils passent à travers le trou de diamètre submillimétrique d'un miroir semi-parabolique et viennent exciter l'échantillon placé ci-dessous en son plan focal. La lumière émise est collectée efficacement par ce miroir puis renvoyée à l'extérieure du MEB vers un spectromètre.

Pour l'analyse spectrale, la lumière est dispersée par le monochromateur Gatan MonoCL2 équipé d'un réseau de 830 traits/mm blasé à 1200 nm. La résolution spectrale est au mieux d'1 nm à 1,5 μm (550 meV à 0,8 eV) et limitée par le pas du moteur contrôlant la rotation du réseau. La détection du signal est réalisée par un photomultiplicateur muni d'une photocathode d'InGaAs (Hamamatsu R5509-72) sensible entre 300 et 1650 nm et opérant en mode de comptage de photon. Ce détecteur est refroidi à la glace sèche (-78°C) et mis à sa tension maximale de fonctionnement (1750 V) afin d'accroître la sensibilité de détection. La sortie du photomultiplicateur est reliée à un préamplificateur courant-tension lui-même relié à un amplificateur de tension (Oxford PA3). L'acquisition des données, l'affichage et le traitement des spectres CL sont effectués à partir d'un système informatique de la compagnie Gatan.

Pour l'acquisition des images de CL, deux modes existent: soit le mode monochromatique soit le mode panchromatique. Dans ce dernier cas, la lumière collectée est directement envoyée au photomultiplicateur opérant en mode linéaire. Un filtre optique coupant tout ou partie du spectre d'émission peut être inséré sur le parcours optique avant la détection par le photomultiplicateur.

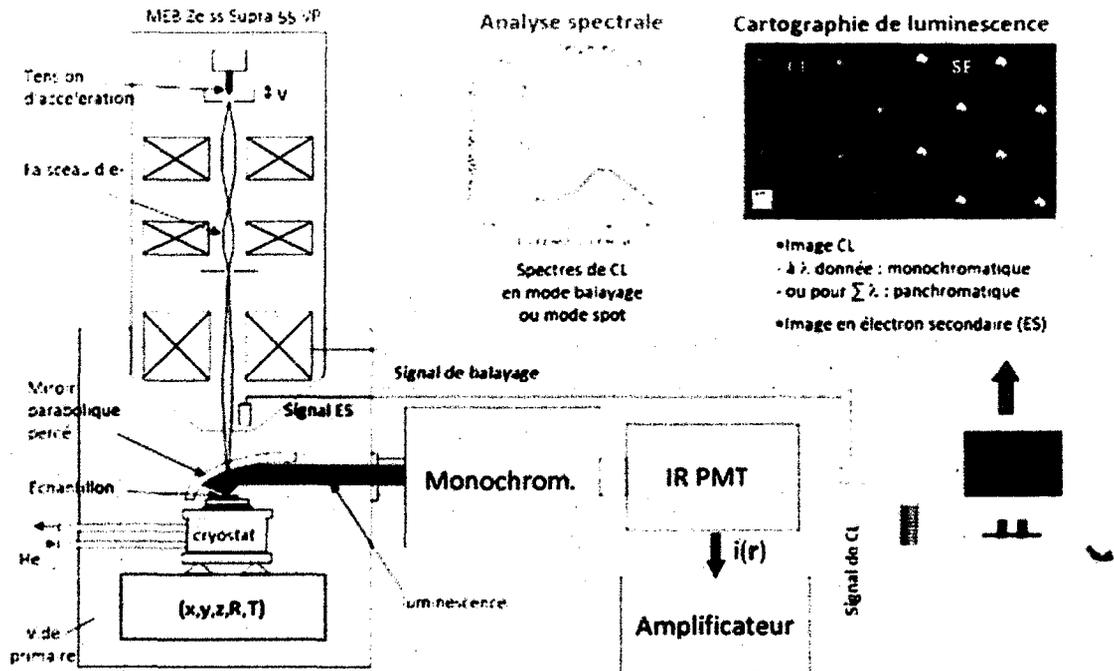


Figure 2.17. Schéma du dispositif de CL et de quelques types d'analyses possibles.

Un vide secondaire est maintenu dans la chambre à environ 2×10^{-6} torr par une pompe turbo-moléculaire assistée d'une pompe primaire à valves sans huile situées sous le microscope. Deux pompes ioniques assurent un ultravide ($3,5 \times 10^{-10}$ torr) dans la colonne. L'intensité du faisceau d'électrons est ajustée avec la tension d'extraction de la cathode et un diaphragme dans la colonne qui laisse passer plus ou moins d'électrons. Le courant est mesuré à l'aide d'une cage de Faraday reliée à un ampèremètre de précision. Les échantillons sont collés sur le doigt froid d'un système cryogénique Oxford à flux d'hélium continu et à faibles vibrations pour des études en fonction de la température pouvant s'échelonner de 5 à 300 K.

Résolution spatiale en CL

La résolution spatiale de cette technique, a priori égale à la taille de sonde qui est de l'ordre du nanomètre pour notre microscope, est limitée par la diffusion des électrons primaires, ainsi que par la diffusion des porteurs en excès générés dans le matériau [Yacobi 90]. La connaissance de ces deux grandeurs qui dépendent du semi-conducteur étudié est donc d'un grand intérêt pour comprendre la relation entre la génération de porteurs et le lieu de leurs recombinaisons.

- **Volume d'interaction et distribution des porteurs générés**

Généralement, deux manières permettent d'estimer le volume de dissipation d'énergie du faisceau d'électrons dans le matériau. Soit de manière semi-empirique [Everhart 71, Kanaya 72], soit de manière statistique en utilisant les simulations Monte-Carlo [Holt 94, Joy 95]. Cette dernière se révèle être plus précise et a été adoptée.

La méthode Monte-Carlo consiste à simuler un nombre important de trajectoires d'électrons de manière aléatoire en se basant sur des équations qui tiennent compte des collisions élastiques et inélastiques des électrons. L'énergie, la trajectoire, et la distance sont évaluées après chaque collision jusqu'à la perte totale de l'énergie des électrons primaires. Ainsi, il est possible d'évaluer le volume de dissipation de l'énergie et la longueur de pénétration dans le solide en effectuant la somme des énergies perdues par les électrons après chaque collision. Les simulations ont été effectuées par le programme CASINO⁴ développé au CRN2 à Sherbrooke. Une revue détaillée de la méthode est disponible à la référence [Drouin 07]. La Figure 2.18 présente une simulation illustrant la trajectoire de 200 électrons primaires en fonction de l'énergie d'excitation dans une couche d'InP.

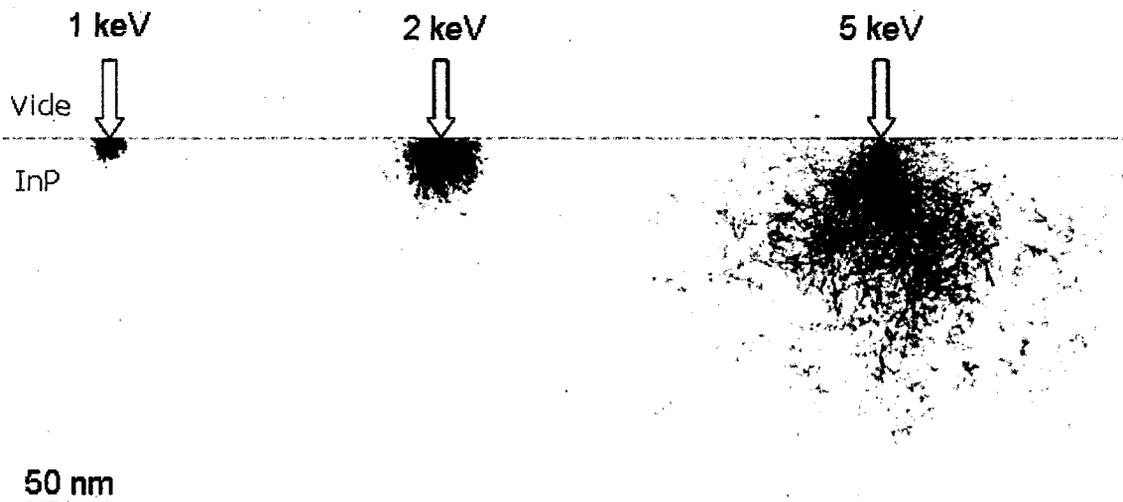


Figure 2.18. Trajectoires de 200 électrons primaires calculées par simulations Monte-Carlo dans un substrat d'InP pour différentes énergies d'excitation. En rouge, sont représentés les électrons primaires retrodiffusés et en bleu les électrons primaires absorbés dans la matrice.

⁴ <http://www.gel.usherbrooke.ca/casino>

A mesure que l'énergie du faisceau diminue, la profondeur de pénétration ainsi que l'extension latérale des électrons primaires dans l'échantillon sont réduites. On voit clairement que les électrons les plus énergétiques à 5 keV pénètrent beaucoup plus profondément et latéralement dans la structure qu'à 1 keV.

Le volume dans lequel les électrons primaires transfèrent leur énergie est connu sous le nom de volume d'interaction. Il prend la forme d'une poire correspondant aux contours d'isoénergie des électrons primaires. Ce volume se décompose à la manière d'un oignon dont chaque épaisseur correspond à un intervalle de perte d'énergie donnée des électrons primaires. La Figure 2.19(a) donne la représentation 2D du volume d'interaction issu d'un faisceau d'électrons de 1 keV et de 3 nm de diamètre dans de l'InP, calculée pour 200 000 électrons primaires. La longueur R_e définissant le volume dans lequel un pourcentage seuil de l'énergie des électrons primaires est transféré, également appelée « electron range », détermine l'extension du volume d'interaction suivant la profondeur ou suivant le plan normal au faisceau.

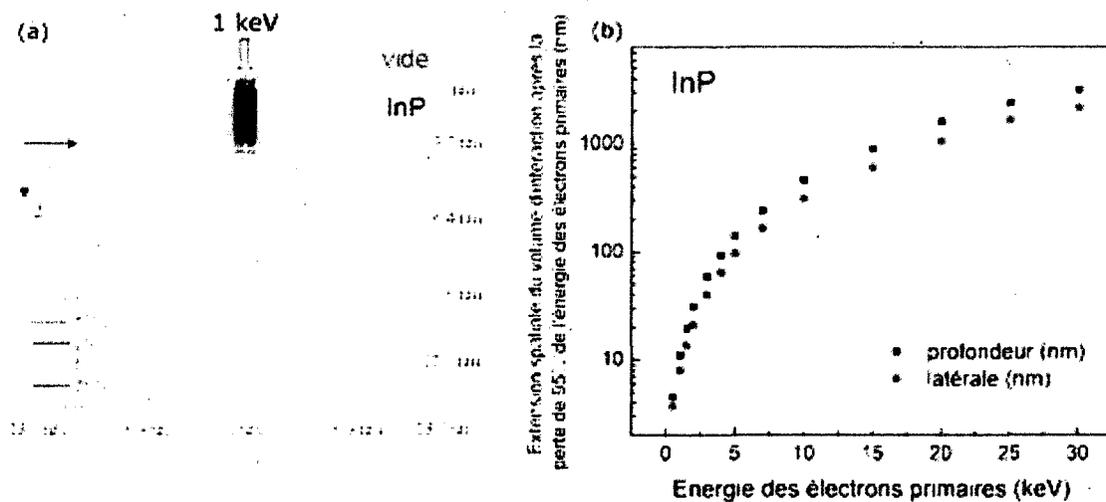


Figure 2.19. (a) Vue bidimensionnelle des courbes d'isoénergie des électrons primaires définissant la forme du volume d'interaction dans InP pour 1 keV; (b) Extension spatiale du volume d'interaction après la perte de 95% de l'énergie cinétique des électrons primaires (contour cyan (a)). A 1 keV, un volume aussi petit que $(11 \times 8 \times 8 \text{ nm}^3)$ est obtenu dans l'InP.

Ce pourcentage seuil est généralement de l'ordre de 95 %. La Figure 2.19(b) donne l'évolution de R_e dans la profondeur et dans le plan d'un échantillon d'InP et indique clairement que R_e diminue de manière surlinéaire au fur et à mesure que la tension d'accélération décroît. Il est à noter que la valeur de R_e suivant la profondeur de l'échantillon est généralement supérieure à son analogue dans le plan, conférant ainsi au volume

d'interaction sa forme en poire. La répartition de l'énergie déposée dans ce volume d'interaction permet de déterminer aisément la distribution spatiale des porteurs générés sachant que le seuil de génération des paires est environ trois fois l'énergie de la bande interdite du semi-conducteur [Klein 68].

- **Diffusion des porteurs en excès**

Ces paires électron-trou une fois créées dans le semi-conducteur vont diffuser au delà de leur zone de génération sur une distance moyenne appelée longueur de diffusion (L_d) jusqu'à leur recombinaison. Ce paramètre, dans le cas de porteurs minoritaires dépend du coefficient de diffusion D du type de porteur concerné, ainsi que de leur durée de vie τ dans le semi-conducteur et s'écrit $L_d = \sqrt{D\tau}$. La dimensionnalité du semi-conducteur joue aussi un rôle important sur le processus de diffusion. La diffusion des porteurs est possible dans les trois directions de l'espace pour un matériau massif, mais elle est réduite à un plan pour un puits quantique et à une direction dans un fil quantique. Les porteurs sont complètement localisés dans une boîte quantique idéale. La dimensionnalité modifie aussi le profil de diffusion spatiale. Par exemple, pour une génération ponctuelle, la densité de porteurs minoritaires en excès décroît suivant $\exp(-|x|/L_d)$ à une dimension (1D), suivant $K_0(|x|/L_d)$ à 2D où K_0 est

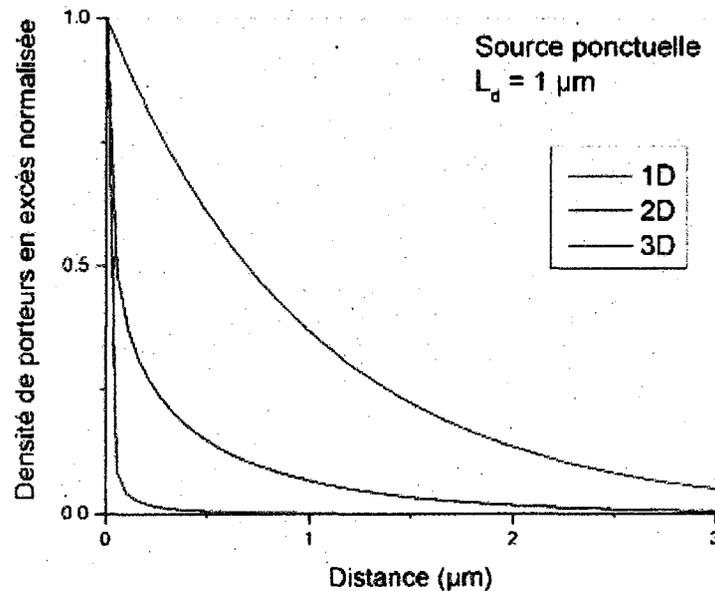


Figure 2.20. Densité de porteurs en excès normalisée en fonction de la distance pour les cas à 1D, 2D et 3D. La source située à l'origine est ponctuelle et la longueur de diffusion est fixée à $1 \mu\text{m}$.

la fonction de Bessel modifiée d'ordre zéro du second genre, enfin à 3D elle décroît suivant $1/|x| \times \exp(-|x|/L_d)$ [Sze 81, Yacobi 90]. La Figure 2.20 représente la densité de porteurs en excès normalisée en fonction de la distance à une source ponctuelle pour les cas à 1D, 2D et 3D avec une longueur de diffusion fixée à $1 \mu\text{m}$.

On voit ainsi clairement que la densité de porteurs en 3D chute très rapidement comparée au cas 2D et encore plus à 1D. Ce comportement pour le cas 3D est exploité d'ailleurs pour imager des dislocations et déduire la longueur de diffusion des porteurs dans des semi-conducteurs massifs [Pauc 06].

- **Bilan sur la résolution spatiale en CL**

Nous avons vu que la taille du volume de génération et donc la résolution spatiale en CL sont affectées par un ensemble de paramètres comprenant l'énergie d'excitation, le semi-conducteur, le type de porteurs, la dimensionnalité, etc.... Il est donc très important de connaître ces conditions afin de mieux comprendre la relation entre la génération de porteurs et les contrastes lumineux sur les cartographies de CL. On notera qu'une haute résolution spatiale (quelques dizaines de nanomètres) peut être obtenue pour de faibles tensions d'accélération et un semi-conducteur massif présentant une faible longueur de diffusion.

Chapitre 3

Croissance de boîtes quantiques diluées d'InAs/InP(001) par MBE

3.1 Introduction

Equation Chapter (Next) Section 1 Comme nous l'avons vu au chapitre 1, la croissance d'îlots quantiques d'InAs sur InP montre des résultats très variés en termes de forme, de taille et de densité suivant les conditions et techniques de croissance. Des fils ou des bâtonnets allongés suivant $[1\bar{1}0]$ se forment spontanément dans des conditions standard en MBE. De gros îlots plus isotropes sont aussi observés après un long temps de recuit sous une forte pression d'arsenic. Par contre en MOCVD, des boîtes sont formées directement. Les mécanismes régissant la formation de ces nanostructures dans ce système restent, contrairement au système InAs/GaAs, encore loin d'être parfaitement compris.

Les dernières études menées à l'INL sur ce système ont été consacrées à la croissance de bâtonnets quantiques d'InAs sur des surfaces nominales d'InP(001) en MBE avec pour but de les utiliser comme matériau actif dans un microlaser à cristaux photoniques [Monat 03]. L'objectif était d'optimiser les conditions de croissance afin d'obtenir une forte densité, une distribution en taille minimale et une émission à $1,55 \mu\text{m}$ à température ambiante. Les conditions optimales trouvées sont les suivantes: $E_{\text{InAs}} = 4 \text{ MC} / T_c = 510^\circ\text{C} / P_{\text{As}} = 2 \times 10^{-6} \text{ torr} / V_c = 0,2 \text{ MC.s}^{-1}$, suivi d'un court recuit de 10 s sous As à température de croissance

[Gendry 04]. La Figure 3.1 présente une image AFM et les spectres de PL typiques de ces bâtonnets d'InAs obtenus dans ces conditions.

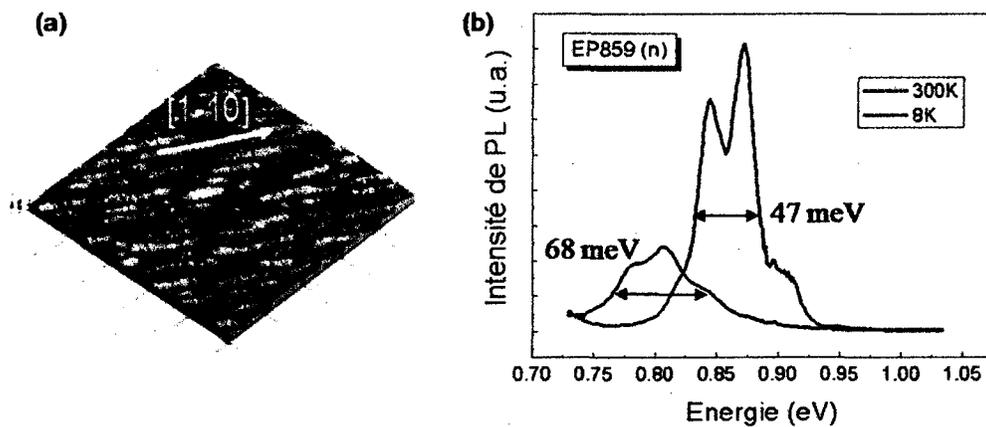


Figure 3.1. (a) Image AFM et (b) spectres de PL typiques de bâtonnets quantiques d'InAs sur InP(001) [Monat 03].

Dans ce chapitre, nous proposons d'étudier de manière plus systématique l'influence des conditions de croissance sur les propriétés des îlots quantiques d'InAs qui se forment sur InP(001) dans un système MBE à sources solides. La compréhension des mécanismes de croissance est nécessaire afin de maîtriser la forme, la taille, la distribution en taille et la densité des îlots. L'objectif du travail est de savoir fabriquer des boîtes quantiques dilués c'est-à-dire avec des densités inférieures à $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ pour des applications nanophotoniques.

3.2 Influence des conditions de croissance

L'influence des conditions de croissance, telles que la température de croissance, la pression d'arsenic et l'épaisseur d'InAs déposée, a tout d'abord été étudiée par diffraction RHEED pour déterminer l'épaisseur critique (H_{3D}) de la transition 2D/3D du mode de croissance, mais aussi pour en retirer une première information sur la forme des îlots. Une fois ces premières conditions établies, la forme des îlots a été plus précisément déterminée par microscopies AFM et TEM.

3.2.1 Epaisseur critique de la transition 2D/3D

La technique du RHEED permet de réaliser facilement des mesures in situ pendant la croissance, en particulier de déterminer l'épaisseur critique H_{3D} de la transition 2D/3D du mode de croissance Stranski-Krastanov (SK). Bien évidemment, de nombreux travaux ont

porté sur sa détermination par RHEED dans différents systèmes de matériaux contraints. Pour le système InAs/InP(001), les épaisseurs H_{3D} ont été déterminées pour des croissances d'InAs effectuées sur différentes couches tampons d'InP [Hollinger 92, Gutiérrez 01a, Gendry 04], d'InGaAs [Gendry 92, Ponchet 95a], d'InAlAs [Braut 00, Koo 01]. Les résultats sont très variables suivant les études et les valeurs peuvent fluctuer entre 1 à 3 MC sur InP(001). De plus, d'autres travaux montrent que la transition 2D/3D est lente et a lieu après un arrêt de croissance suivant le dépôt d'InAs [Ponchet 95c, Fafard 96, Frechengues 99a]. Afin de clarifier la situation, nous présentons ici une étude systématique de la valeur de l'épaisseur critique H_{3D} mesurée par RHEED pendant la croissance d'une couche d'InAs sur une surface d'InP(001) en fonction de la température de croissance et de la pression d'arsenic.

Procédure d'observation au RHEED

Au cours de la croissance, la transition 2D/3D peut facilement être observée sur le diagramme de diffraction RHEED. Elle est détectée par une rapide transformation du diagramme de diffraction constitué de raies, caractéristique d'une croissance bidimensionnelle en un diagramme de taches, caractéristique d'une croissance tridimensionnelle. La valeur de H_{3D} est prise au seuil d'augmentation de l'intensité mesurée dans une fenêtre placée à

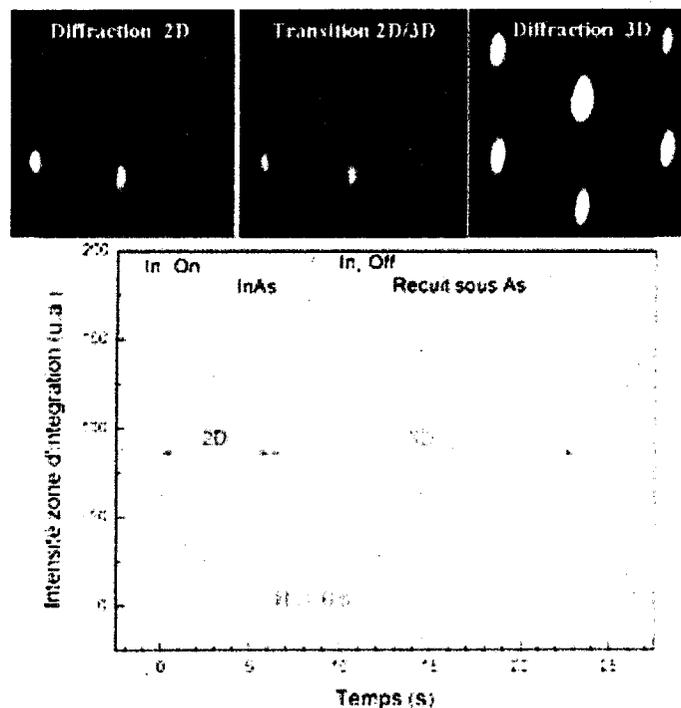


Figure 3.2. Principe de la mesure de l'épaisseur critique H_{3D} . Evolution en fonction du temps, de l'intensité d'une fenêtre placée à l'endroit d'une tache de Bragg du diagramme RHEED selon [110] dans le cas d'une transition 2D/3D du mode de croissance.

l'endroit de l'apparition d'une tache de Bragg sur le diagramme RHEED (Figure 3.2). La vitesse de croissance de 0,2 MC/s conservée tout au long de l'étude permet une détermination assez précise de H_{3D} par cette méthode.

Afin de déterminer précisément H_{3D} en fonction de la température de croissance et de la pression d'arsenic, une procédure a été adoptée pour s'affranchir du manque de reproductibilité possible en température de croissance d'un échantillon à l'autre. Elle consiste à faire croître sur un même échantillon plusieurs plans de boîtes, chacun séparé par une couche tampon d'InP suffisamment épaisse [Caroff 05d]. Pour réduire au maximum les champs de contraintes induits par le plan précédent, les îlots formés sont supprimés par un arrêt de croissance sous phosphore suffisamment long pour retrouver un diagramme RHEED de type 2D. Les conditions de température ou de pression d'arsenic sont modifiées entre chaque séquence de formation de boîtes après la croissance de la couche tampon. Cette procédure s'est révélée fiable et efficace pour la détermination de H_{3D} même après la croissance d'une dizaine de plans.

Influence de la température de croissance

La Figure 3.3 montre la dépendance de H_{3D} d'une couche d'InAs déposée sur InP(001) en fonction de la température de croissance, entre 450 et 530°C, pour une pression d'arsenic de 2×10^{-6} torr et une vitesse de croissance de 0,2 MC/s. A 530°C, la pression d'arsenic est

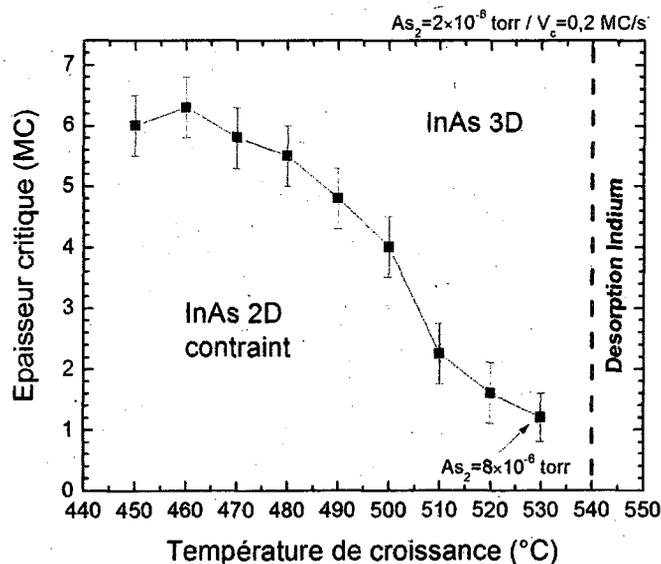


Figure 3.3. Épaisseur critique H_{3D} en fonction de la température de croissance T_c , avec $P_{As} = 2 \times 10^{-6}$ torr et $V_c = 0,2$ MC/s.

augmentée à 8×10^{-6} torr afin de toujours stabiliser la surface par de l'arsenic. Au delà de 540°C , le seuil de désorption de l'indium est atteint quelle que soit la pression d'élément V en surface [Moison 87]. Le coefficient de collage n'est plus égal à 1 et l'épaisseur d'InAs en surface ne correspond plus alors à l'épaisseur déposée. On observe donc une nette influence de T_c sur la valeur de H_{3D} qui peut varier de 1 à 6 MC lorsque T_c est diminuée de 530°C à 450°C .

Influence de la pression d'arsenic

La Figure 3.4 montre l'épaisseur critique d'InAs sur InP(001) en fonction de la pression d'arsenic (As_2) pendant la croissance à 510°C . La pression d'arsenic est variée de 1×10^{-6} à $1,15 \times 10^{-5}$ torr. De façon moindre qu'avec T_c , H_{3D} est aussi dépendante de la pression d' As_2 .

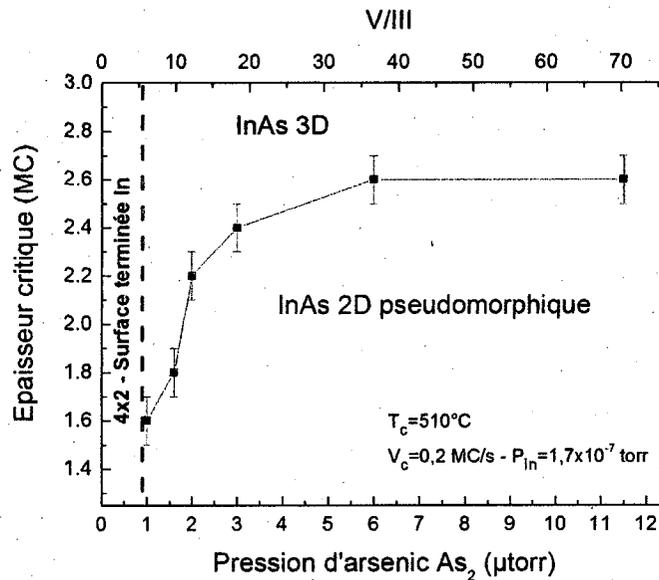


Figure 3.4. Epaisseur critique H_{3D} en fonction de la pression d'arsenic (As_2) pendant la croissance, pour $T_c=510^\circ\text{C}$ et $V_c=0,2$ MC/s.

Pour des très faibles pressions d' As_2 correspondant à des rapports de pression d'éléments $V/III < 5$, la surface n'est plus « stabilisée arsenic » et laisse apparaître une reconstruction de surface (4×2) signifiant que la surface est « stabilisée indium ». Par contre, pour de forts rapports ($V/III > 30$), H_{3D} tend à saturer vers 2,6 MC.

Discussion

La température de croissance et la pression d'arsenic jouent donc un rôle prépondérant sur la valeur de l'épaisseur critique H_{3D} (1–6 MC) dans le système InAs/InP. Ces résultats

contrastent avec ceux du système InAs/GaAs plus contraint (6,7%), où la transition 2D/3D observée pour des valeurs de 1,5–1,8 MC est quasiment indépendante des conditions de croissance [Krzyzewski 08]. Cela suggère que les effets d'énergie de volume dans le système InAs/InP ne dominent plus autant ceux des énergies de surface dans le processus de relaxation élastique de la contrainte.

Outre l'influence évidente qu'un plus faible désaccord de maille nécessite une plus forte épaisseur critique, plusieurs causes peuvent être à l'origine de cette grande variation dans le système InAs/InP.

La première met directement en cause des effets cinétiques sur la mobilité des adatoms en surface. Diminuer la température de croissance ou augmenter la pression d'arsenic tend à diminuer cette mobilité et a pour conséquence de retarder la transition 2D/3D. Celle-ci nécessitant en effet un déplacement important des adatoms pour former les îlots. On peut cependant noter que l'épaisseur critique peut être inférieure à celle qui avait été mesurée à 2,5 MC sur InAlAs [Brault 02] dans des conditions permettant de s'affranchir des effets cinétiques (forte T_C , faible pression d'arsenic, faible vitesse de croissance et dépôt d'InAs par fraction de 0,5 MC). Pour expliquer les plus faibles valeurs mesurées dans certaines conditions sur InP, un autre mécanisme doit être pris en compte.

Ce deuxième mécanisme met en jeu des réactions d'échange P/As qui sont bien connues pour être particulièrement efficaces à l'interface InAs/InP [Moison 86, Aspnes 94, Sobiesierski 97, Yoon 99]. Ce mécanisme s'établit lorsque l'on expose une surface d'InP à un flux d'arsenic. Il conduit à un apport d'InAs supplémentaire par rapport à l'InAs réellement déposé par les flux d'indium et d'arsenic. L'intensité du mécanisme suit une loi de type Arrhenius avec la température. Plus la température est élevée, plus les échanges P/As en surface sont importants et mènent à la formation d'InAs supplémentaire par consommation de l'InP en surface. Inversement, à plus basse température, les échanges sont moindres. Ces échanges P/As sont aussi d'autant plus importants que la pression d'arsenic est élevée. La couche d'InAs formée par ces échanges peut atteindre de 1 à 3 MC d'épaisseur dans nos conditions de température et de pression d'arsenic [Hollinger 90, Tabata 94].

Si ces échanges permettent d'expliquer l'évolution de H_{3D} avec T_C (il faut en effet déposer plus d'InAs à basse T_C puisque l'InAs formé par réaction d'échange est moindre), ils ne permettent pas en revanche d'expliquer la variation de H_{3D} avec la pression d'arsenic P_{As} . On s'attendrait à une diminution de H_{3D} avec l'augmentation de P_{As} puisque plus d'InAs serait formé par réaction d'échange. Or, ce n'est pas le cas.

Nous en avons donc conclu que les effets cinétiques sont certainement les premiers à être mis en cause pour expliquer l'évolution de H_{3D} avec T_C et P_{As} . Les réactions d'échange P/As à l'interface viennent en complément pour expliquer l'ensemble des résultats expérimentaux qui peuvent être obtenus dans ce système faiblement contraint.

3.2.2 Forme des îlots

Les propriétés morphologiques des îlots ont par la suite été étudiées pour quelques conditions de croissance typiques repérées par les points A, B et C sur la Figure 3.5. Pour chaque échantillon, l'épaisseur déposée est supérieure à H_{3D} afin que la transition 2D/3D ait lieu durant la croissance. La pression d'arsenic durant la croissance est de 2×10^{-6} torr sauf à 530°C (échantillon C) où elle est de 8×10^{-6} torr pour conserver une couverture en arsenic suffisante pour que la surface d'InAs ne bascule pas en « stabilisée indium ». Nous présentons tout d'abord une étude morphologique des îlots par AFM puis l'évolution du diagramme RHEED pendant la croissance sera présentée.

Etude AFM

Les images AFM des îlots ont été obtenues en respectant la procédure particulière mise au point à l'INL pour la descente en température d'échantillons d'îlots d'InAs non capés sur une surface d'InP(001) [Brault 00]. Nous avons en effet observé, et même exploité dans ce travail (cf. section 3.4.2), qu'une descente en température de tels échantillons sous un flux d'arsenic As_2 pouvait conduire à une évolution drastique de la morphologie de surface et donc de la forme des îlots d'InAs qui se sont formés à la température de croissance. Afin de « geler » la surface et éviter tout changement morphologique, une procédure consistant en une commutation du flux d'arsenic par un flux de phosphore (« switch » As/P) est donc opéré lorsque la température de l'échantillon atteint environ 470°C (voir section 2.2.1). En respectant cette procédure, les images AFM sont bien représentatives des îlots formés à la température de croissance, en particulier leur forme. La Figure 3.5 présente donc les images AFM des îlots formés dans les conditions de croissance repérées par les points A, B et C sur le graphique de la Figure 3.5.

Les images AFM montrent que la forme des îlots d'InAs dépend fortement de la température de croissance. Pour les échantillons A et B, des bâtonnets allongés suivant la direction cristallographique $[1\bar{1}0]$ sont observés tandis qu'à 530°C des îlots de forme plus isotrope, de type « boîtes », sont obtenus. A 480°C , les bâtonnets ont une longueur moyenne

de 235 nm, une largeur de 26 nm, une hauteur de 1,9 nm et leur densité est d'environ $430 \mu\text{m}^{-2}$. A 510°C , les bâtonnets sont moins longs (110 nm) et un peu moins larges (25 nm) et hauts (1,3 nm). Leur densité est par contre plus élevée ($570 \pm 30 \mu\text{m}^{-2}$). A 530°C , la densité des boîtes est de $260 \mu\text{m}^{-2}$, une longueur moyenne de 75 nm, une largeur de 55 nm et enfin une hauteur de 3,8 nm.

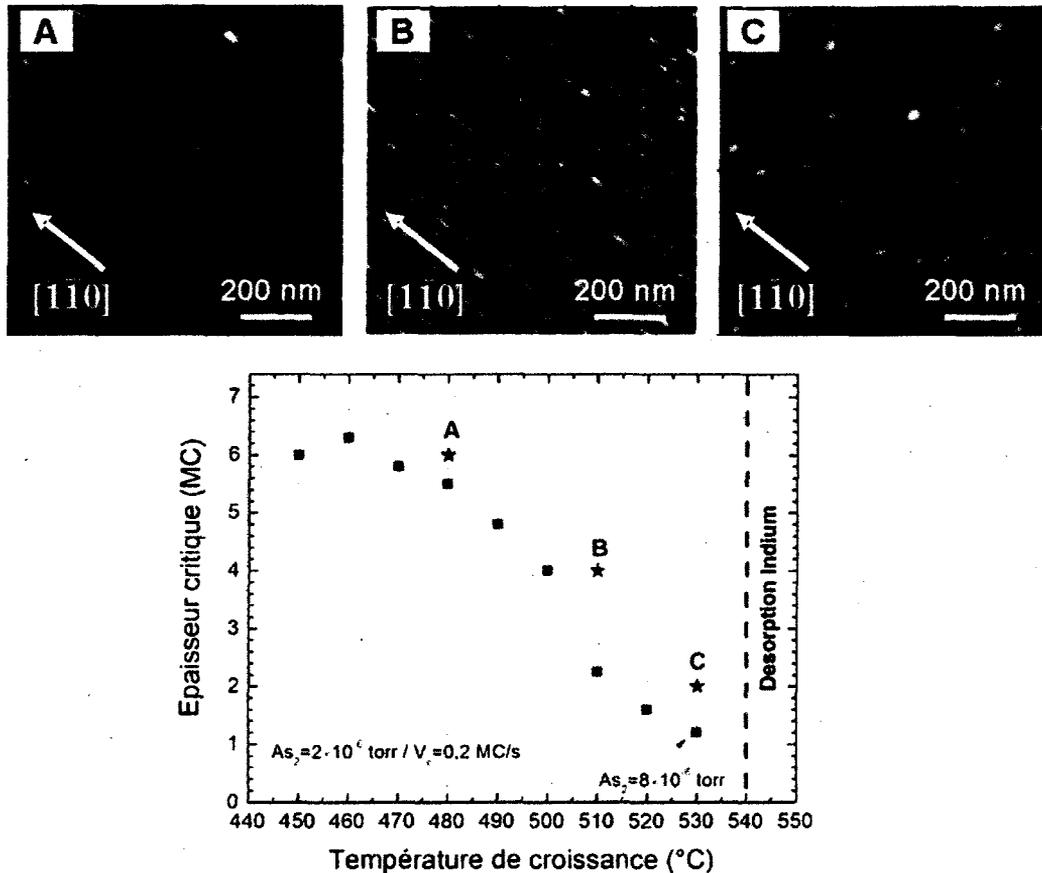


Figure 3.5. Images AFM des îlots d'InAs formés dans les conditions de croissance repérées par les lettres A ($T_c = 480^\circ\text{C} / 6 \text{ MC}$), B ($T_c = 510^\circ\text{C} / 4 \text{ MC}$) et C ($T_c = 530^\circ\text{C} / 2 \text{ MC}$).

Etude RHEED

La Figure 3.6 présente les diagrammes RHEED suivant les azimuts $[110]$ et $[1\bar{1}0]$, typiques de la croissance des bâtonnets à 510°C et des boîtes à 530°C . Tout d'abord, l'échantillon (substrat d'InP + couche tampon d'InP) est porté à la température de croissance de l'InAs (510°C ou 530°C), sous une pression de phosphore de 10^{-5} torr. La couche tampon d'InP montre une reconstruction (2×4) pour les deux températures de croissance.

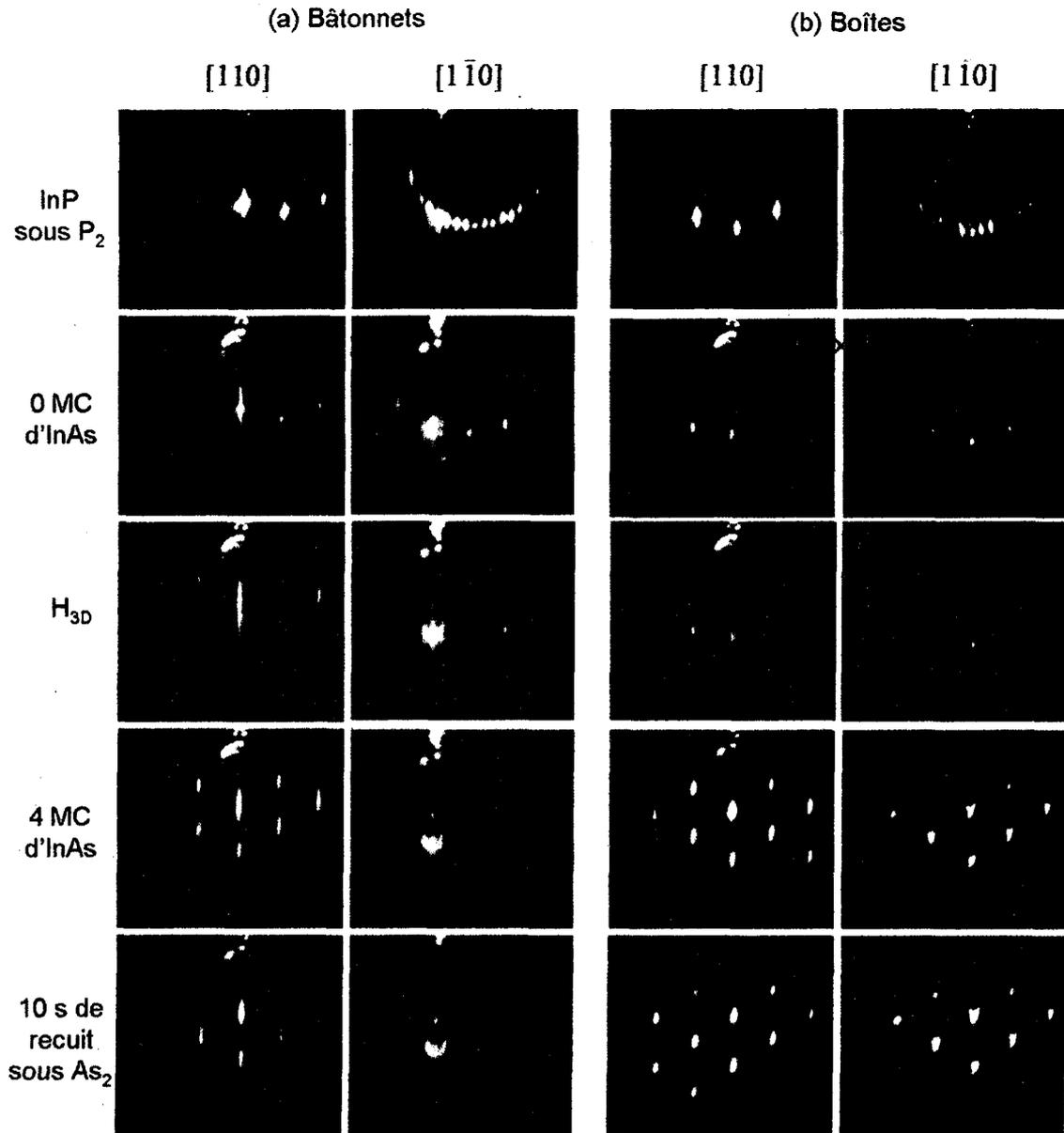


Figure 3.6. Diagrammes RHEED suivant les azimuts $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ pendant la croissance de 4 MC d'InAs sur InP pour deux conditions de croissance : (a) $510^{\circ}\text{C} / 2 \times 10^{-6}$ torr / 0,2 MC/s conduisant à la formation de bâtonnets et (b) $530^{\circ}\text{C} / 8 \times 10^{-6}$ torr / 0,2 MC/s conduisant à la formation de boîtes. Les reconstructions de surface de la surface d'InP exposée au flux d'arsenic avant le dépôt d'InAs et les épaisseurs critiques H_{3D} de la transition 2D/3D du mode de croissance sont indiquées en rouge.

A 530°C néanmoins, l'intensité de la $\times 4$ est moindre et les raies plus larges, ce qui peut signifier que le front de croissance est plus rugueux. La désorption de phosphore est un phénomène thermiquement activé ce qui explique qu'à plus forte température la surface soit moins lisse. Lorsque la surface d'InP est exposée au flux d'arsenic pendant 10 s avant le début

de la croissance, un changement de reconstruction s'opère quasi instantanément. A 510°C, le diagramme de diffraction RHEED indique la disparition de la raie fractionnaire centrale de la $\times 4$, ce qui indique une reconstruction de type $\alpha(2\times 4)$. A 530°C, la $\times 4$ disparaît et une reconstruction (2×1) , quasiment une (1×1) est obtenue, ne laissant apparentes que les raies principales de l'InP massif. Ces raies indiquent cependant dans les deux cas une surface d'InAs formée par échange P/As relativement lisse.

Pendant la croissance d'InAs, la transition 2D/3D intervient pour une épaisseur critique d'environ 2,4 MC et 1,2 MC, respectivement pour 510°C et 530°C. Les diagrammes RHEED montrent alors, suivant $[110]$ des taches de Bragg relatif à une diffraction de volume tant dis que suivant $[1\bar{1}0]$ des structures en forme de chevrons apparaissent. Ces chevrons sont caractéristiques de la formation de facettes parallèles à la direction d'observation [Hanada 01].

Pour les bâtonnets formés à 510°C, les chevrons se forment progressivement entre les raies d'ordre fractionnaire de la $\times 4$. L'angle entre les bras des chevrons et la direction $[001]$ mesure environ 20°, ce qui correspond à l'angle que font des facettes de type $\{114\}$ avec le plan (001) . Au regard de la direction de diffraction, ces chevrons mettent donc en évidence des facettes de type (114) et $(\bar{1}\bar{1}4)$. A la fin de la croissance d'InAs, les chevrons selon $[1\bar{1}0]$ sont plus intenses et la $\times 4$ commence à s'atténuer. Après 10 secondes de recuit, la $\times 4$ a complètement disparu et la taille ainsi que l'intensité des chevrons ont augmenté. On observe également que les taches selon $[110]$ sont très allongées et même reliées par les raies d'ordre entier. A mesure que la croissance avance, les taches s'intensifient et deviennent ponctuelles. La $\times 2$ est conservée tout au long de la croissance. Ces dernières observations suggèrent la formation progressive d'îlots peu hauts et relativement plats dans la direction $[1\bar{1}0]$, en accord avec les observations AFM.

Pour les boîtes formées à 530°C, un comportement différent est observé. Des taches de Bragg ponctuelles sont formées dès la fin de la croissance d'InAs. Des chevrons sont aussi observés selon $[1\bar{1}0]$ mais par contre, ils sont issus de taches assez semblables à celles observées selon $[110]$. Cela suggère une analogie de forme des îlots entre les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$, ce qui est en concordance une nouvelle fois avec la forme des îlots plus isotropes observés par AFM.

3.2.3 Bilan

Tout d'abord, l'influence des conditions de croissance sur l'épaisseur critique H_{3D} a été étudiée. Nous avons confirmé que les effets cinétiques sont certainement les premiers à mettre en cause pour expliquer l'évolution de l'épaisseur critique, en particulier avec T_C et P_{As} . Cependant, les résultats expérimentaux ne peuvent s'expliquer complètement qu'en prenant en compte les réactions d'échange P/As qui ont lieu d'abord à la surface d'InP exposée au flux d'As₂, puis, de façon moindre, à l'interface InAs/InP lorsque les îlots sont formés et maintenus sous un flux d'arsenic. Nous reviendrons sur ces aspects à la section (3.4) consacrés à la transformation de forme « bâtonnets vers boîtes » observées pour certaines conditions de maintien de ces surfaces sous un flux d'arsenic.

La reconstruction de surface avant et pendant le dépôt d'InAs semble avoir une influence déterminante sur la forme finale des îlots. Dans ce système à faible désaccord de maille, on peut s'attendre à ce que les reconstructions de surface, qui ont une action directe sur la valeur de l'énergie de surface de l'InAs, aient un rôle non négligeable dans la balance énergétique surface/volume qui commande la transition 2D/3D mais aussi la forme des îlots à travers les énergies des facettes développées. Nous avons donc poursuivi cette étude en étudiant plus systématiquement les reconstructions de la surface de l'InAs contraint sur InP en fonction des conditions de croissance T_C et P_{As} , c'est-à-dire en fonction du taux de couverture en arsenic de cette surface.

3.3 Influence des reconstructions de surface

Avant la croissance d'InAs, la procédure de commutation P/As impose que la surface d'InP soit exposée au flux d'arsenic. Puisque les échanges As/P sont très rapides, cette étape de stabilisation de la surface mène invariablement à la formation d'une fine couche d'InAs en surface de l'échantillon. Cela signifie que la croissance d'InAs n'a pas lieu sur une surface d'InP terminée par du phosphore mais bien sur une couche d'InAs contrainte préexistante. Nous avons vu que la reconstruction de surface de la couche d'InAs semble influencer directement la forme des îlots produits. En effet, dans le système InAs/InP, il est probable que le faible désaccord de maille mène à une plus forte influence des énergies de surface dans la balance énergétique responsable du mode de croissance Stranski-Krastanov et dans la forme finale des îlots d'InAs. L'objectif de cette section est de démontrer ce type de corrélation. Nous commencerons par décrire brièvement quelques reconstructions d'InAs et dresserons dans un second temps le diagramme de phase des reconstructions de surface d'une couche 2D

d'InAs contraint sur InP. Enfin, nous étudierons la forme des îlots en fonction des différents domaines de reconstruction.

3.3.1 Reconstructions de surface d'InAs

Les atomes de surfaces se lient avec leurs voisins pour diminuer le nombre de liaisons pendantes. Dans le cas des surfaces des semi-conducteurs III-V « stabilisés élément V », des dimères d'éléments V sont ainsi formés en surface. La deuxième étape de la reconstruction est la répartition et la mise en ordre de ces dimères sur la surface pour respecter un certain nombre de critères comme la neutralité électronique de la surface par exemple [Pashley 89]. Différentes reconstructions de surface peuvent exister en fonction du taux de couverture en élément V (l'arsenic As pour ce qui de l'InAs nous concerne) de la surface. Une transition de phase entre deux reconstructions peut donc avoir lieu lorsque ce taux de couverture en As change en surface.

La reconstruction de surface généralement observée pour des conditions de croissance standard d'InAs est la reconstruction (2×4) . On peut cependant différencier la reconstruction (2×4) selon trois phases α , β et γ suivant le taux de couverture en arsenic de la surface. Pour la phase β , la reconstruction la plus stable énergétiquement et la plus souvent observée par microscopie à effet tunnel à l'échelle atomique est désignée par $\beta_2(2 \times 4)$. Sa structure atomique est la même que celle sur une surface de GaAs [Moll 96]. Elle est schématisée sur la Figure 3.7 présentée ci-dessous.

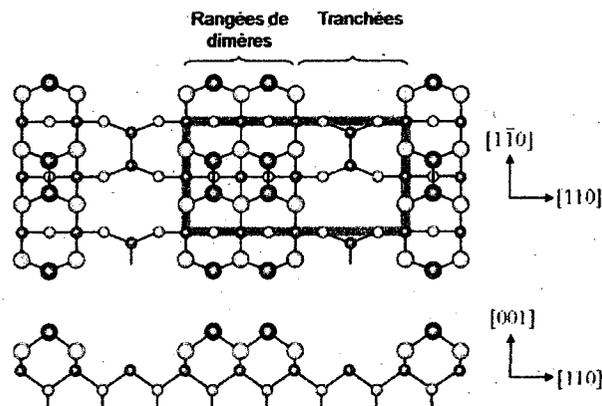


Figure 3.7. Vues planes et de profil de la reconstruction $\beta_2(2 \times 4)$ sur InAs(001) montrant l'alternance des rangées des paires de dimères As et des tranchées des dimères manquants. Les cercles de couleur noir et gris représentent les atomes d'As et d'In, respectivement. La cellule unitaire de surface est indiquée par la région surlignée en gris foncé. D'après [Ohtake 08].

Elle contient deux dimères d'arsenic sur le dernier plan atomique et un troisième dimère situé sur la troisième couche atomique en dessous, dans laquelle une tranchée est formée en raison de l'absence d'une rangée de dimères. Les phases α et γ apparaissent dans des conditions de taux de couverture respectivement pauvre et riche en arsenic. Le modèle de structure atomique en surface des deux configurations est illustré sur la Figure 3.8.

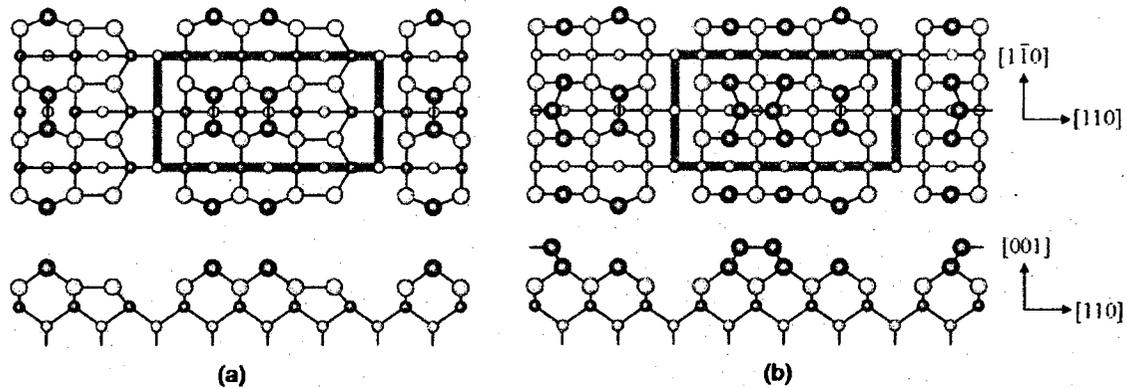


Figure 3.8. Vues planes et de profil des reconstructions : (a) $\alpha(2 \times 4)$ et (b) $\gamma(2 \times 4)$ sur InAs(001). D'après [Ohtake 08].

Pour la phase α pauvre en arsenic, la structure est similaire à celle de la phase $\beta_2(2 \times 4)$ mais avec les atomes d'In dans les tranchées de dimères manquants. Pour la phase $\gamma(2 \times 4)$ riche en arsenic, un dimère As supplémentaire est formé sur la surface $\beta(2 \times 4)$ (le troisième dimère est dans le même plan que les deux autres de la $\beta_2(2 \times 4)$) le long de la direction $[110]$.

3.3.2 Diagramme de phases des reconstructions de surface d'InAs contraint sur InP

Afin de vérifier s'il existe une corrélation entre la forme des îlots d'InAs et les reconstructions de surface possibles de sa surface, nous avons entrepris de sonder l'ensemble des reconstructions de surface d'une fine couche d'InAs épitaxiée sur une surface d'InP(001) en fonction de la température et de la pression d'arsenic. La couche d'InAs montre, en fonction de la température du substrat et la pression d'arsenic P_{As} , des reconstructions de surface différentes qui peuvent être facilement observables sur le diagramme RHEED. Le résultat est rassemblé dans un diagramme de phase présenté sur la Figure 3.9.

Ce diagramme a été réalisé en condition statique après la croissance d'une monocouche d'InAs (pour qu'elle reste bidimensionnelle) à $T_s = 480^\circ\text{C}$, une pression d'arsenic $As_2 = 2 \times 10^{-6}$

torr et une vitesse de croissance de 0,2 MC/s sur une surface d'InP(001) nominal présentant une reconstruction $\beta(2 \times 4)$. Différents couples de pression d'arsenic et de température de substrat ont ensuite été balayés. La température et la pression sont respectivement suivies par un pyromètre optique et une jauge ionique. Suivant la gamme de températures sondées, la détermination des reconstructions a été réalisée de deux façons. Pour la zone des températures inférieures à 510°C, la température du substrat a été baissée d'1°C/min avec une pression d'arsenic fixe et la surface est observée par RHEED. Par contre, à plus haute température, la détermination des reconstructions est beaucoup plus délicate à cause des échanges P/As beaucoup plus importants. Ceux-ci conduisent à augmenter la quantité d'InAs totale en surface et au passage rapide à une surface 3D. Au delà de 510°C, les reconstructions sont donc déterminées sur la couche d'InAs formée par échange juste après la commutation P/As. Lorsqu'il y a passage en 3D, les îlots sont rognés par un flux de phosphore jusqu'à leur disparition et une couche tampon d'InP de 400 nm est déposée par-dessus dans des conditions standard. D'autres couples de paramètres peuvent ainsi être par la suite sondés sur le même échantillon.

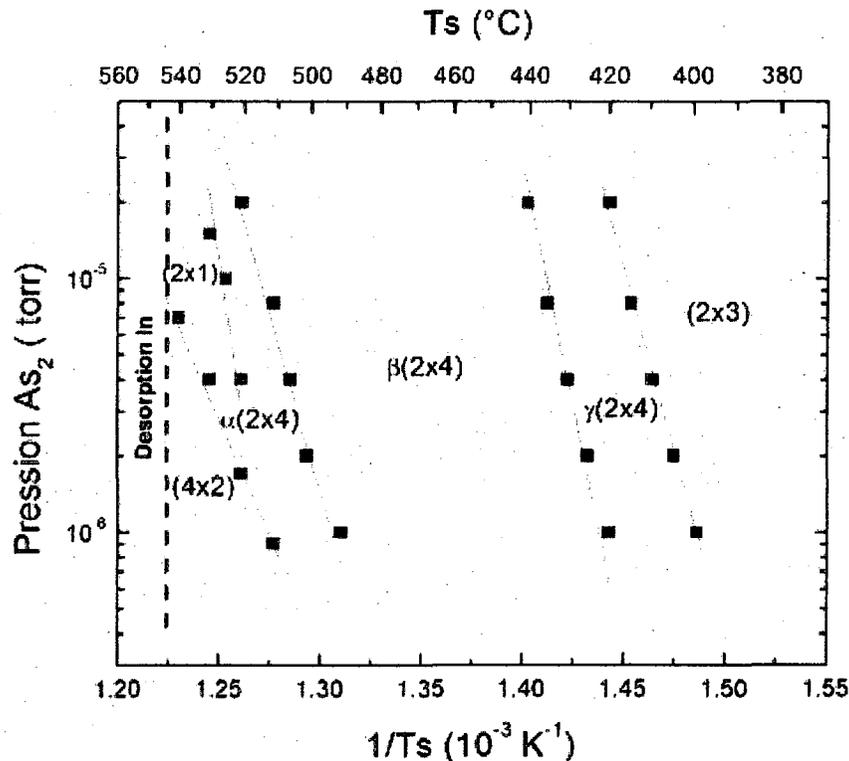


Figure 3.9. Diagramme de phase des reconstructions de surface d'une couche d'InAs épitaxiée sur InP(001) en fonction de la température du substrat et de la pression d'arsenic.

Ce diagramme révèle six phases de reconstruction de surface que l'on peut classer par ordre d'apparition pour des températures croissantes: (2×3) , $\gamma(2 \times 4)$, $\beta(2 \times 4)$, $\alpha(2 \times 4)$, (2×1) et (4×2) . Ces reconstructions dépendent du taux de couverture en arsenic à la surface qui dépend lui-même fortement du couple (T_S, P_{As}) . La Figure 3.10 schématise les diagrammes RHEED associés à ces reconstructions ainsi que leur taux de couverture d'arsenic associé [Ozanyan 97].

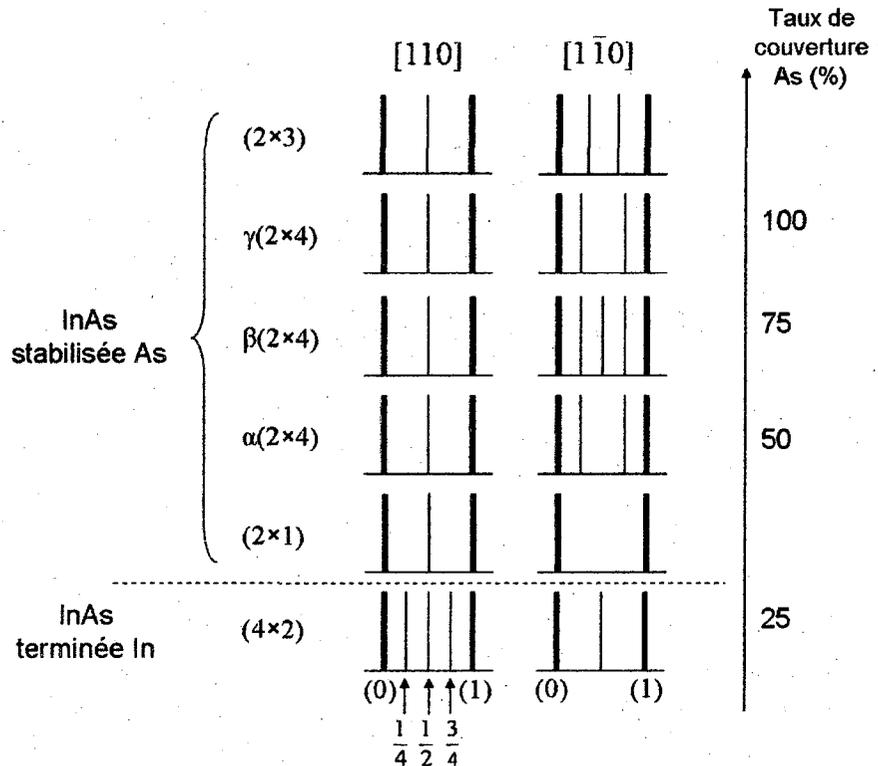


Figure 3.10. Identification des reconstructions de surface d'InAs sur les diagrammes RHEED. Les raies d'ordre entier et fractionnaire sont indiquées ainsi que le taux de couverture d'arsenic en surface pour quelques reconstructions.

Autour des différentes phases de la (2×4) , nous avons mis en évidence d'autres reconstructions pas ou peu documentées dans la littérature. En réduisant la température du substrat en dessous de $400-420^\circ\text{C}$, la reconstruction $\gamma(2 \times 4)$ évolue vers une (2×3) . Au contraire, en augmentant la température du substrat au dessus de $500-520^\circ\text{C}$, la reconstruction $\alpha(2 \times 4)$ évolue vers une (2×1) avant d'évoluer vers une (4×2) caractéristique d'une surface « stabilisée indium », aux alentours de 540°C .

Nous avons fait croître ensuite des îlots dans des conditions de croissance correspondant à ces différentes reconstructions. Nous avons confirmé que suivant le type de reconstruction,

nous pouvons former deux types d'îlots : des bâtonnets avec la reconstruction (2×4) et des îlots plus isotropes avec la reconstruction (2×1) . Les propriétés structurales de ces îlots sont détaillées dans les deux sous-sections suivantes. Le rôle possible des reconstructions de surface sur la forme des îlots sera ensuite discuté.

3.3.3 Les bâtonnets avec la reconstruction (2×4)

La croissance de fils ou de bâtonnets allongés suivant $[1\bar{1}0]$ coïncident toujours avec une reconstruction (2×4) de la couche d'InAs. Ceci a été observé pour les trois phases α , β , γ de la (2×4) . Des images TEM de ces fils crus en $\beta(2 \times 4)$ et encapsulé dans de l'InP sont présentées à la Figure 3.11.

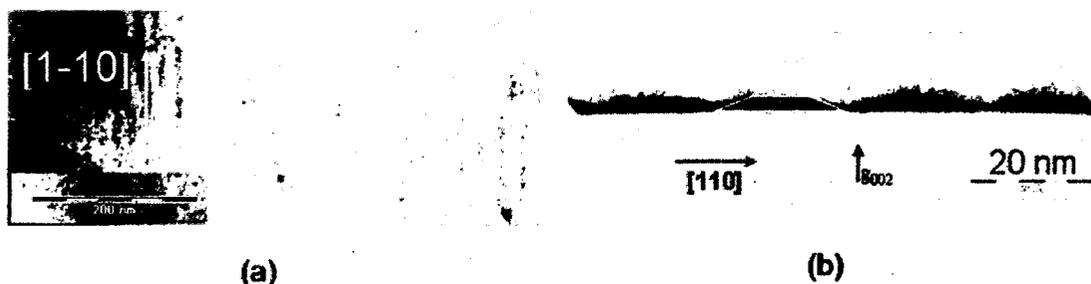


Figure 3.11. Images TEM de bâtonnets d'InAs recouverts d'une couche d'InP (a) en vue plane champ clair et (b) en coupe suivant $[110]$ en champ foncé [Gendry 04].

Le schéma de la Figure 3.12 illustre les dimensions caractéristiques de ces bâtonnets avec la mise en évidence des facettes $\{114\}$ faiblement inclinées ($\sim 20^\circ$) par rapport au plan (001) et parallèles à la direction $[1\bar{1}0]$.

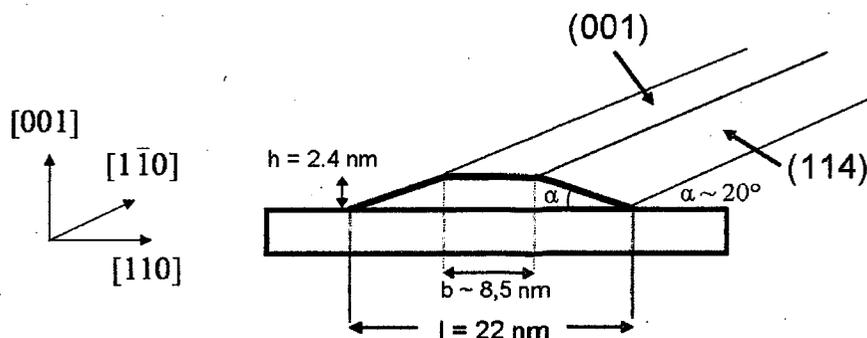


Figure 3.12. Représentation schématique des bâtonnets quantiques d'InAs/InP(001) déduite de l'analyse des images TEM en coupe transverse. Les dimensions caractéristiques et l'orientation des facettes sont indiquées.

3.3.4 Les boîtes avec la reconstruction (2×1)

Lorsque la reconstruction (2×4) se transforme en une (2×1) en augmentant la température du substrat et la pression d'arsenic, des îlots plus isotropes sont directement formés lors de la croissance.

La Figure 3.13 montre une image TEM en vue plane et champ clair de l'échantillon non capé orienté en axe de zone [001]. La plupart des îlots sont de forme hexagonale légèrement allongée suivant la direction [110] et présentent un bord parallèle aux directions <100>. Le sommet au centre des îlots, apparaît comme un petit rond blanc. Le contraste des images est manifestement un contraste complexe surtout lié à l'absorption (donc chimique et lié à l'épaisseur traversée) mais aussi aux champs de déformation. Une faible désorientation change



Figure 3.13. Image TEM en vue plane et en champ clair des îlots formés avec une reconstruction (2×1). L'échantillon est orienté en axe de zone [001].

rapidement le contraste pour privilégier le contraste lié aux champs de déformation.

Nous avons également observé cet échantillon en coupe transverse. La Figure 3.14(b-c) présente deux images TEM de ces îlots dans les plans (110) et (1 $\bar{1}$ 0) respectivement. On voit clairement que les îlots sont facettés. Pour la coupe dans le plan (1 $\bar{1}$ 0), des pyramides assez pointues sont systématiquement observées avec des facettes d'angle d'ouverture faible d'environ 25° qui correspondent probablement à des facettes {113}. Pour le plan (110), les îlots ont un profil en dôme, avec des facettes à la base très raides, de l'ordre de 50-60°. Ces facettes correspondent certainement aux plans {111}.

Nous avons mesuré leurs dimensions pour une vingtaine d'îlots. Ils présentent une longueur moyenne $L \approx 40$ nm suivant $[110]$, une largeur moyenne $l \approx 30$ nm suivant $[1\bar{1}0]$ et une hauteur moyenne $h \approx 9$ nm. Les îlots sont en moyenne plus larges lorsqu'on les observe selon $[110]$ (forme en triangle) que selon $[1\bar{1}0]$ (forme en dôme). Ceci est à mettre en regard de la légère anisotropie de la forme hexagonale observée en vue plane (Figure 3.14(a)).

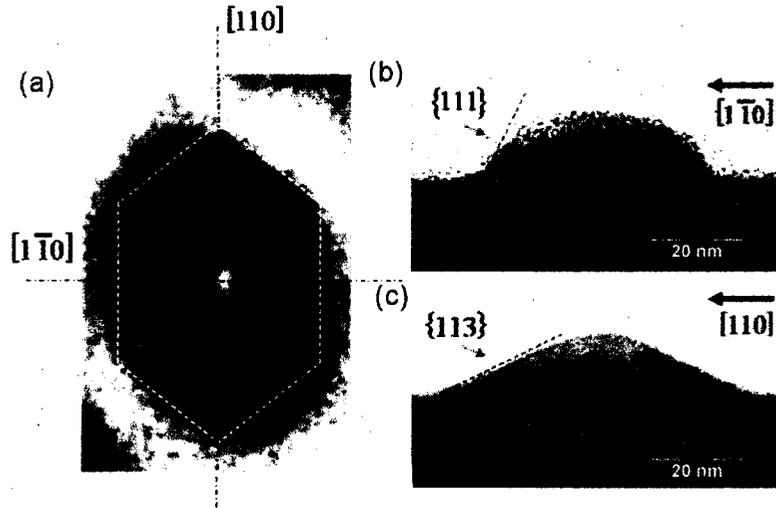


Figure 3.14. (a) Vue agrandie d'un îlot de forme hexagonale dans le plan (001). Coupes transversales montrant des profils en forme : (b) de dôme suivant $[1\bar{1}0]$ avec des facettes $\{111\}$ et (c) de pyramide suivant $[110]$ avec des facettes $\{113\}$.

D'autre part, la géométrie et la taille de nos îlots contrastent avec celles obtenues en CBE et MOCVD par d'autres groupes [McCaffrey 01, Hwang 04, Michon 05]. Cette disparité laisse suggérer une autre forme d'équilibre pour les îlots élaborés avec nos conditions de croissance en MBE.

La Figure 3.15 montre les images TEM de telles boîtes en vue plane et coupe transverse dans le plan (110) après encapsulation par une couche de 20 nm d'InP à environ 520°C. La forme « hexagonale » précédemment décrite est majoritairement conservée après l'encapsulation. Quelques boîtes en forme de losange sont aussi observées. On voit très bien que les boîtes sont plates au sommet, surtout pour les plus hautes, et très "rabortées" par rapport au même plan d'îlots non-couverts. La hauteur des îlots est diminuée de 2 à 3 nm, les dimensions latérales et les facettes sont dans l'ensemble conservées. On note également la présence de la couche de mouillage d'environ 1 nm qui n'était pas observable sur les échantillons non capés. De plus, quelques boîtes sont relaxées par des dislocations.

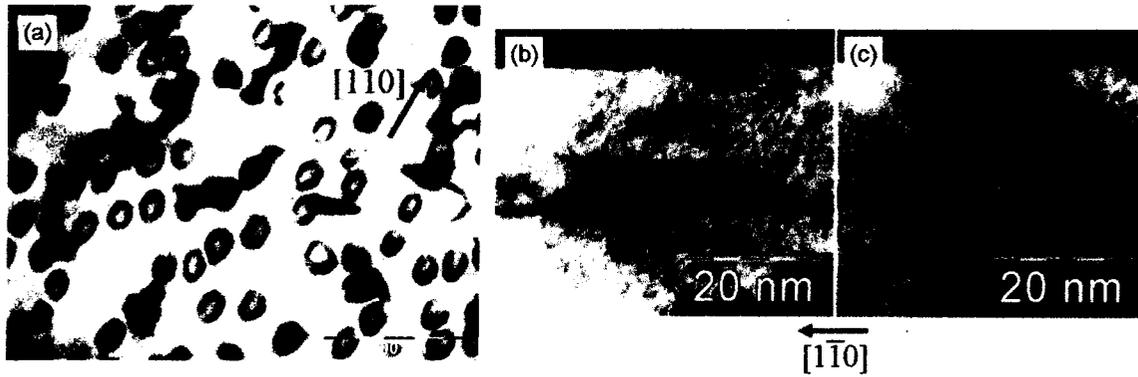


Figure 3.15. Images TEM (a) en vue plane et (b-c) en coupe transverse selon $[1\bar{1}0]$ d'îlots fabriqués selon la voie C et cappés par de l'InP à environ 520°C. L'épaisseur d'InAs déposée est égale à 2 MC.

3.3.5 Interprétations sur l'origine des formes

Plusieurs interprétations ont été avancées pour expliquer l'origine des différentes formes des nanostructures d'InAs sur InP(001) (cf. chapitre 1). Elles font références à des considérations énergétiques, cinétiques ou encore à un mode préférentiel de relaxation de la déformation.

Krzyzewski et Jones ont récemment proposé un modèle atomique (Figure 3.16) qui permet d'expliquer la formation de fils à partir de la présence initiale de la reconstruction $\beta_2(2\times 4)$ dans les conditions standard MBE. Leur modèle est déduit d'une étude détaillée des premiers stades de la croissance d'InAs sur InP(001) par microscopie à effet tunnel à balayage [Krzyzewski 08]. Il est basé sur des mesures antérieures de relaxation de la déformation suivant $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ pendant la formation de fils d'InAs/InP(001) [Garcia 01, Gonzalez 04]. S'il permet d'expliquer de manière convaincante la formation de fils de faible hauteur (2 MC) et allongés suivant $[1\bar{1}0]$ par la relaxation préférentielle de la déformation suivant $[110]$ le long des tranchées d'une couche bidimensionnelle d'InAs initialement en $\beta_2(2\times 4)$, il ne rend pas compte de la formation spécifique des facettes $\{114\}$ observées lors du mode de croissance 3D.

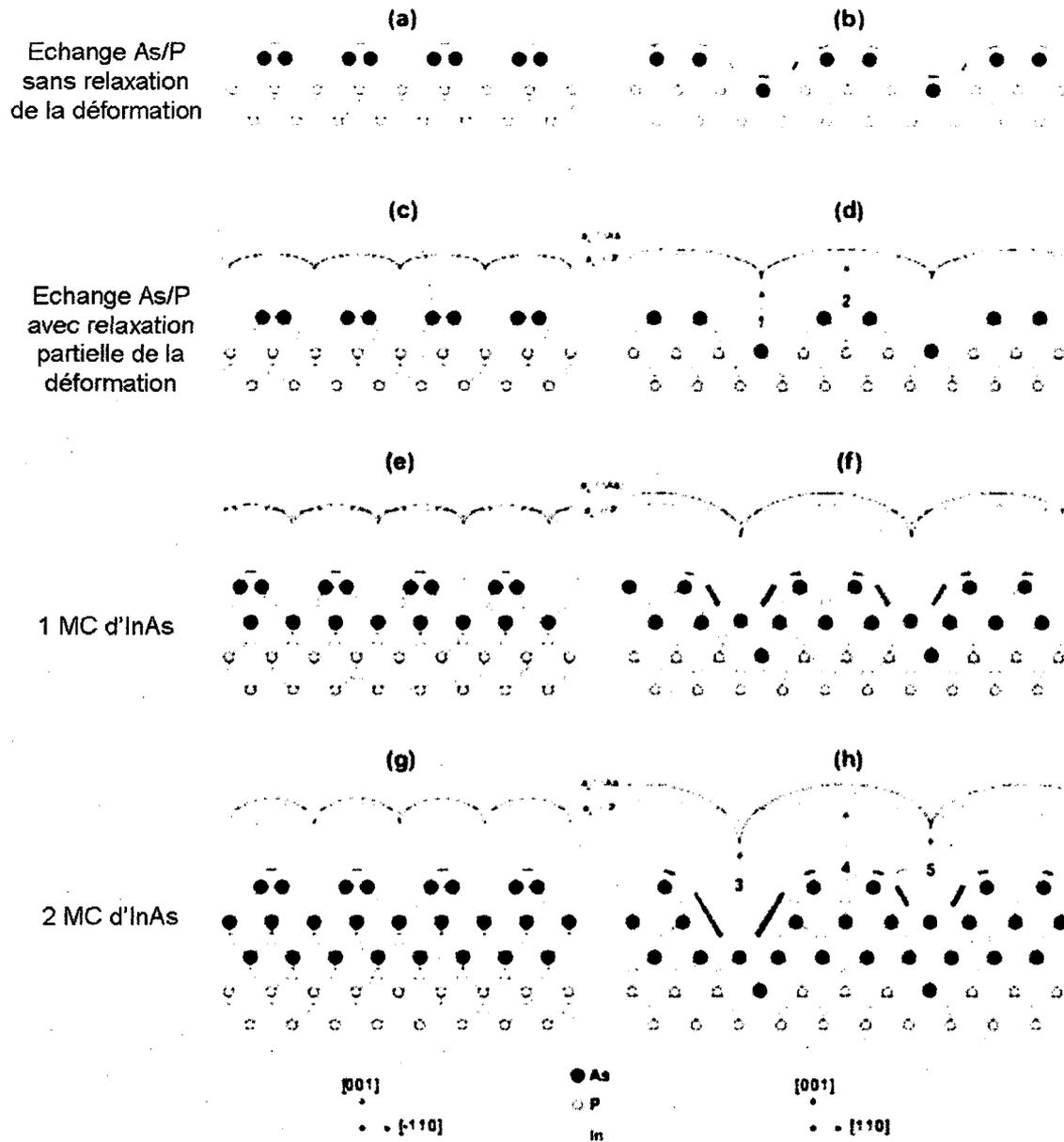


Figure 3.16. Modèle du mécanisme de relaxation de la déformation induite par la reconstruction $\beta_2(2 \times 4)$ de l'InAs, proposé par Krzyzewski et Jones [Krzyzewski 08]. Les flèches indiquent la direction du déplacement des atomes afin de relaxer l'énergie de contrainte.

Ponchet et coll. ont proposé en 1995 un modèle simple qui permet d'expliquer de manière satisfaisante la formation privilégiée de ces facettes [Ponchet 95b] et par l'occasion compléter le modèle précédent. Ces auteurs ont judicieusement remarqué qu'il existe une très grande compatibilité du motif de la reconstruction $\beta(2 \times 4)$ avec les facettes (114) et $(\bar{1}\bar{1}4)$ si celles-ci ne sont pas considérées comme de véritables plans {114} mais comme des surfaces à

marches (type surface vicinale avec un angle de 20°) alternant terrasses (001) et doubles marches monoatomiques (Figure 3.17). C'est la compatibilité du motif d'une reconstruction (2×4) avec la largeur des terrasses (001) qui permettrait à ce type de facettes (114) « vicinales » de se reconstruire de façon semblable à une surface (001) et donc d'en abaisser notablement l'énergie de surface comparativement à celle d'une facette (114) conventionnelle. Il est également très probable que cette énergie de surface soit inférieure à celle des facettes de plus hauts indices, c'est-à-dire présentant de faibles angles avec le plan (001). Ceci pourrait expliquer la formation privilégiée des facettes $\{114\}$.

Des calculs récents ont aussi montré un net abaissement de l'énergie de surface des facettes de type (114)A et $(\bar{1}\bar{1}4)$ A comparée à celle des facettes de type $(1\bar{1}4)$ B et $(\bar{1}14)$ B [Elias 09]. Les marches de type A et B étant perpendiculaires à $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$ respectivement. On comprend alors la tendance à former des îlots développant des facettes de type $\{114\}$ très allongées selon $[\bar{1}\bar{1}0]$, et devenant donc très anisotropes en forme.

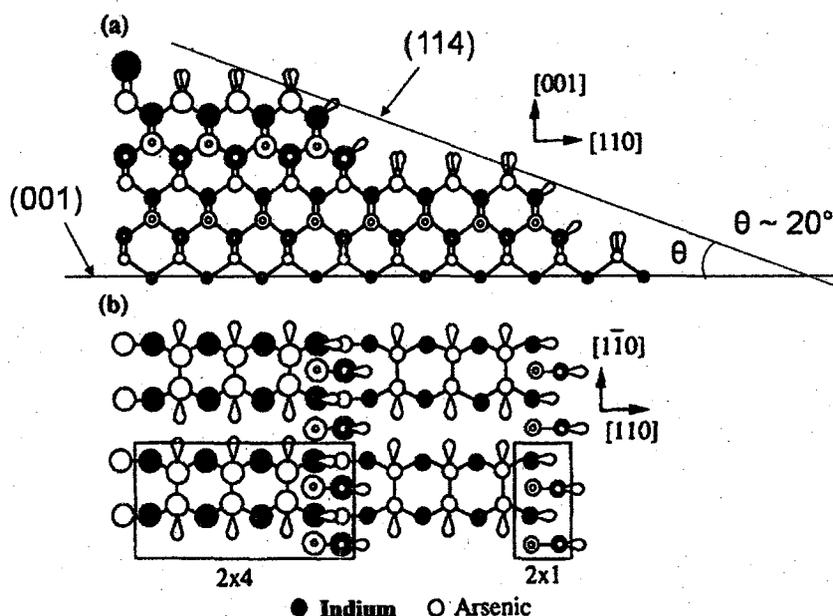


Figure 3.17. Compatibilité d'une facette (114)A à marches avec le motif d'une reconstruction $\beta(2 \times 4)$. Coupes dans le plan : (a) $(\bar{1}\bar{1}0)$ et (b) (001). Les atomes d'arsenic peuvent former trois dimères sur la terrasse (001), tandis que les atomes d'indium sur la double marche correspondent exactement à un dimère d'arsenic manquant par cellule unité. D'après [Ponchet 95b].

Nous avons aussi mentionné précédemment que des considérations d'ordre cinétique impliquant une plus grande longueur de diffusion des adatoms d'indium le long des marches

orientées selon $[1\bar{1}0]$ sont aussi avancées pour expliquer la formation de ces bâtonnets et fils [Poole 01]. Si cet effet va dans le sens de l'anisotropie observée et par conséquent contribue à l'allongement des îlots, il ne rend pas compte de la nature des facettes développées. Ainsi, il ne peut pas être avancé comme seule explication à la formation des bâtonnets et fils dans le système InAs/InP(001).

En dehors de la reconstruction (2×4) , les mécanismes de relaxation de la déformation d'InAs sur InP(001) sont tout autres. La formation directe d'îlots isotropes en (2×1) en est un bon exemple. Dans ce cas, la contrainte accumulée n'est plus relaxée préférentiellement dans la direction particulière $[110]$ du fait de l'asymétrie de la configuration atomique de la (2×4) mais plutôt dans toutes les directions. La forme finale des îlots plus isotropes ainsi que les facettes développées restent toujours dictées par des considérations énergétiques.

La formation directe de boîtes isotropes pourrait également être expliquée avec un argument purement énergétique. Des calculs menés par Saint-Girons et coll. dans des conditions expérimentales relativement similaire aux nôtres (forte température : $T_C = 530^\circ\text{C}$ et forte pression d'arsenic) ont montré que la croissance de boîtes était privilégiée par rapport aux bâtonnets pour des rapports des flux d'éléments V/III élevés [Saint-Girons 06b]. C'est-à-dire pour des pressions d'arsenic élevées. Le résultat de leur étude est représenté sur la Figure 3.18. L'énergie de formation d'une boîte ΔE_{eq} calculée à partir de la géométrie de leur îlot est

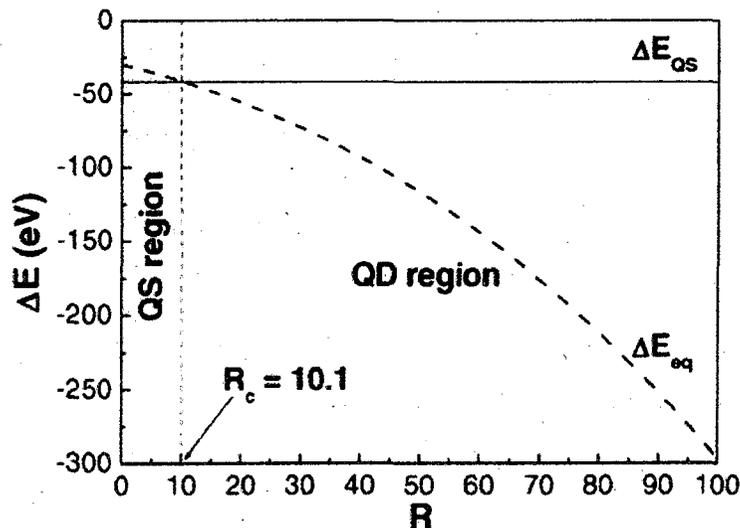


Figure 3.18. Energie de formation d'une boîte quantique ΔE_{eq} et d'un bâtonnet quantique ΔE_{qs} en fonction du rapport des flux d'éléments V/III (As/In) [Saint-Girons 06b].

inférieure à celle d'un bâtonnet ΔE_{QS} lorsque le rapport As/In est supérieur à une certaine valeur critique. Au-delà de cette valeur, la formation d'une boîte est thermodynamiquement favorisée. Dans notre cas, le rapport V/III = 50 indiquant des conditions riches arsenic pendant la croissance, nous place dans des conditions privilégiant la formation de boîtes.

3.4 Transition bâtonnets-boîtes lors de procédés post-croissance

3.4.1 Introduction

A ce stade de l'étude, nous avons rempli une partie des objectifs que nous nous étions fixés, à savoir la croissance d'îlots de forme isotrope en faible densité. En effet, si nous savions fabriquer des îlots isotropes en nous plaçant dans les conditions de croissance conduisant à une reconstruction (2×1) de l'InAs, ces conditions ne nous permettaient pas de les produire en faibles densités (voir section 3.5.3). Pour atteindre l'objectif des faibles densités, il nous est apparu incontournable d'exploiter des processus de maturation des îlots avec des procédés post-croissance. Pour cela, nous nous sommes basés sur les résultats obtenus à l'INL dans le cadre des travaux de thèse de J. Brault [Brault 00] et déjà évoqués dans ce manuscrit pour ce qui était de l'imagerie AFM des îlots. Dans ce travail, il a été montré qu'un changement de forme des bâtonnets vers des îlots plus isotropes pouvait avoir lieu lors de la descente en température sous arsenic. Cette transformation ou transition « bâtonnets-boîtes » a également été mise en évidence plus récemment par d'autres groupes [Yang 01, Gutiérrez 02, Parry 05]. Ce changement de forme s'accompagne d'un déplacement de matière important qui a aussi comme conséquence une diminution notable de la densité des îlots formés, propriété que nous voulions donc exploiter pour atteindre notre objectif des faibles densités. Ce procédé post-croissance de « coalescence » par refroidissement a donc d'abord été exploité pour produire des boîtes d'InAs/InP(001) en faibles densités [Dupuy 06]. Le procédé a ensuite été étendu à l'utilisation de procédés post-croissance sous flux d'arsenic réalisés à la température de croissance. Ce sont ces deux procédés et les propriétés des îlots ainsi fabriqués qui sont exposés dans les paragraphes suivants. Les raisons possibles de cette évolution de la forme des îlots seront ensuite discutées en s'appuyant à nouveau sur des arguments mettant en cause les reconstructions de l'InAs.

3.4.2 Transition bâtonnets-boîtes par refroidissement sous arsenic - Voie A

Nous avons suivi par AFM l'évolution de la transition bâtonnets-boîtes au cours de la descente en température sous As en utilisant la procédure de commutation (switch) des flux As/P. Elle permet de stopper, à la température visée, l'évolution en cours et de pouvoir ensuite faire l'imagerie AFM. Cette procédure a été utilisée pour imager les différents stades de l'évolution aux températures respectives de 460°C, 430°C et 400°C à l'aide de 3 échantillons différents de bâtonnets épitaxiés avec les conditions standard suivantes : 4 MC d'InAs à 520°C avec une pression d'arsenic de $2\text{-}5 \times 10^{-6}$ torr et une vitesse de croissance de 0,2 MC/s. La Figure 3.19(a) montre tout d'abord les bâtonnets d'InAs réalisés dans ces conditions et avec le switch As/P effectué vers 480°C lors de la descente en température. Des bâtonnets plats allongés suivant $[1\bar{1}0]$ sont obtenus avec une forte densité de l'ordre de 7×10^{10} cm^{-2} .

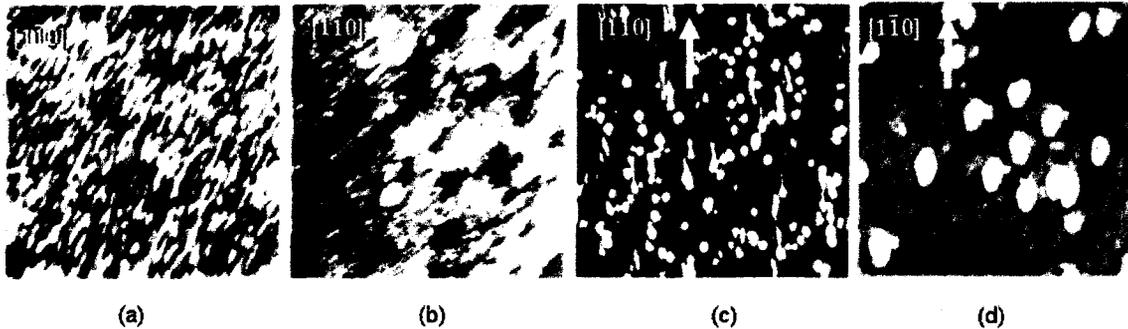


Figure 3.19. Images AFM ($1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$) d'îlots montrant l'évolution morphologique des bâtonnets crûs à 520°C (a) au cours de la descente en température ($\sim -30^\circ\text{C}/\text{min}$) sous flux d'arsenic. La commutation As/P pendant la descente en température permet de geler la morphologie de surface à environ (b) 460°C, (c) 430°C, (d) 400°C.

La Figure 3.19(b) montre l'évolution des bâtonnets à environ 460°C. Elle révèle deux sortes d'îlots : quelques îlots isotropes (que nous appellerons boîtes) entourés de bâtonnets. Une déplétion est observée autour des boîtes indiquant qu'elles se sont probablement formées au dépend des bâtonnets environnants. Ce transfert de matière est encore amplifié lorsque la température de l'échantillon diminue. A 430°C (Figure 3.19(c)), les boîtes sont de plus en plus nombreuses tandis que les bâtonnets tendent à disparaître. La plupart des boîtes (130 boîtes/ μm^2) ont une forme pratiquement isotrope avec un diamètre moyen de 40 nm et une hauteur de 5 nm. Il reste encore quelques bâtonnets avec une longueur comprise entre 120-160 nm et une hauteur moyenne de 2 nm. La présence de bâtonnets résiduels suggère que la coalescence n'est pas complètement terminée. Enfin, lorsque le substrat atteint une

température d'environ 400°C (Figure 3.19(d)), tous les îlots ont une forme pratiquement isotrope ce qui laisse penser que la « coalescence » des bâtonnets est terminée. Les îlots coalescés ont un diamètre de 6080 nm, une hauteur moyenne de 5 nm et leur densité est de $2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

La Figure 3.20(a) montre des images TEM en vue plane de tels îlots après refroidissement jusqu'à 430°C et encapsulation par une couche d'InP à 430°C, et donc pour

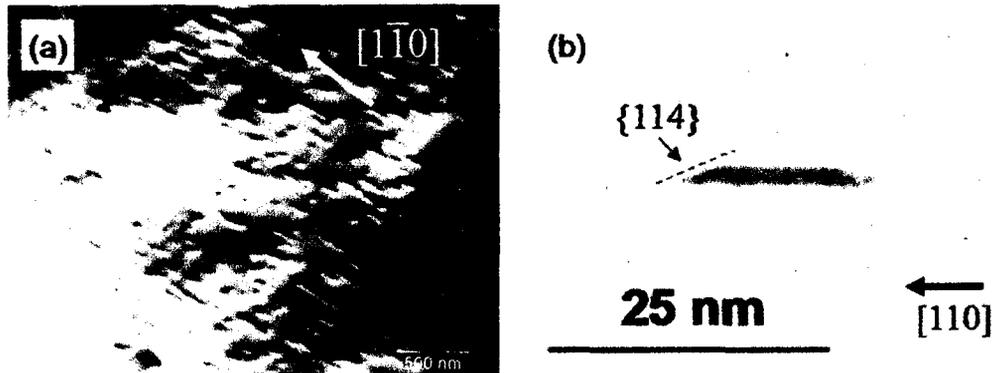


Figure 3.20. Image TEM en vue plane d'îlots pour lesquels la coalescence a été stoppée à 430°C par encapsulation par une couche d'InP : (a) vue plane et (b) coupe transverse suivant [110]. L'épaisseur d'InAs déposé était de 1,5 MC.

lesquels le processus de « coalescence » n'est pas complètement terminé. On observe bien, comme sur l'image AFM de la Figure 3.19(c), la présence de bâtonnets et de boîtes. Ces îlots sont facettés et les angles que font ces facettes avec la surface (001) sont voisins de 20°, indiquant des facettes de type {114}.

La Figure 3.21 montre les images TEM en vue plane et en coupe transverse d'îlots refroidis sous arsenic jusqu'à 400°C et pour lesquels le processus de « coalescence » est donc

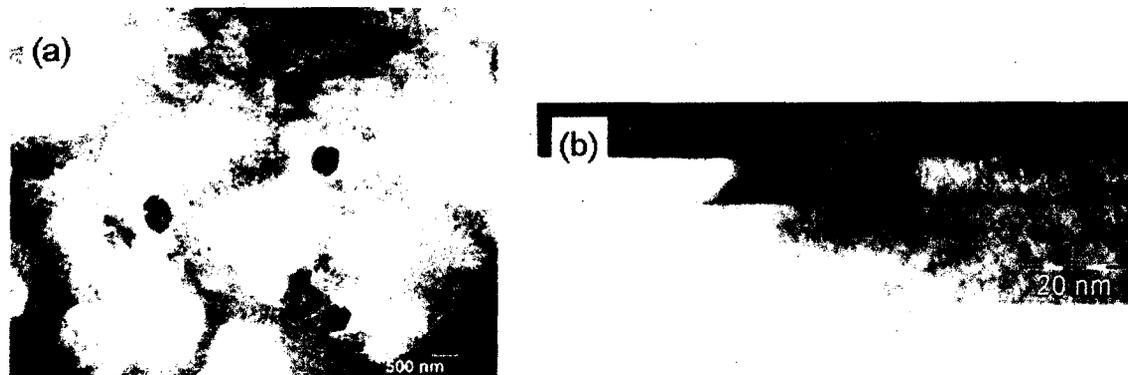


Figure 3.21. Images TEM d'îlots formés par refroidissement sous arsenic à 400°C : (a) vue plane (îlots non cappés) et (b) en coupe transverse suivant (îlots cappés par 10 nm d'InP). L'épaisseur d'InAs déposé était de 1,4 MC.

complètement terminé. On peut donc noter la forme pratiquement isotrope de ces îlots. Les îlots sont facettés et les angles que font les facettes avec la surface (001) sont voisins de 30° .

L'évolution morphologique des bâtonnets sous arsenic pendant la descente en température est un phénomène surprenant et assez complexe qui ne semble pas pouvoir être expliquée par un mûrissement d'Ostwald classique dans lequel les plus gros îlots grossissent au dépend des plus petits [Zinke-Allmang 92]. Plusieurs hypothèses peuvent être proposées.

La première prend en compte des mécanismes impliquant la reconstruction de surface de l'InAs. Les diagrammes de diffraction (Figure 3.22 et Figure 3.23) montrent respectivement

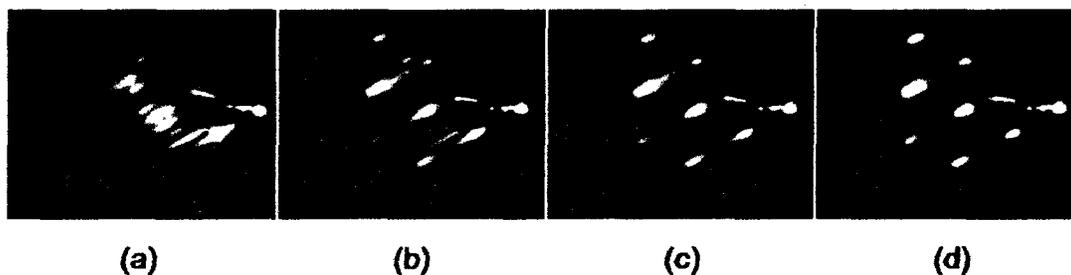


Figure 3.22. Echantillon A : Diagrammes RHEED suivant $[1\bar{1}0]$ (a) des bâtonnets ($E_{InAs} = 1,6$ MC) après 10 s de recuit à 520°C puis (b-d) pendant la descente en température sous une forte pression d' As_2 : (b) $T = 460^\circ\text{C}$, (c) $T = 430^\circ\text{C}$, (d) $T = 400^\circ\text{C}$.

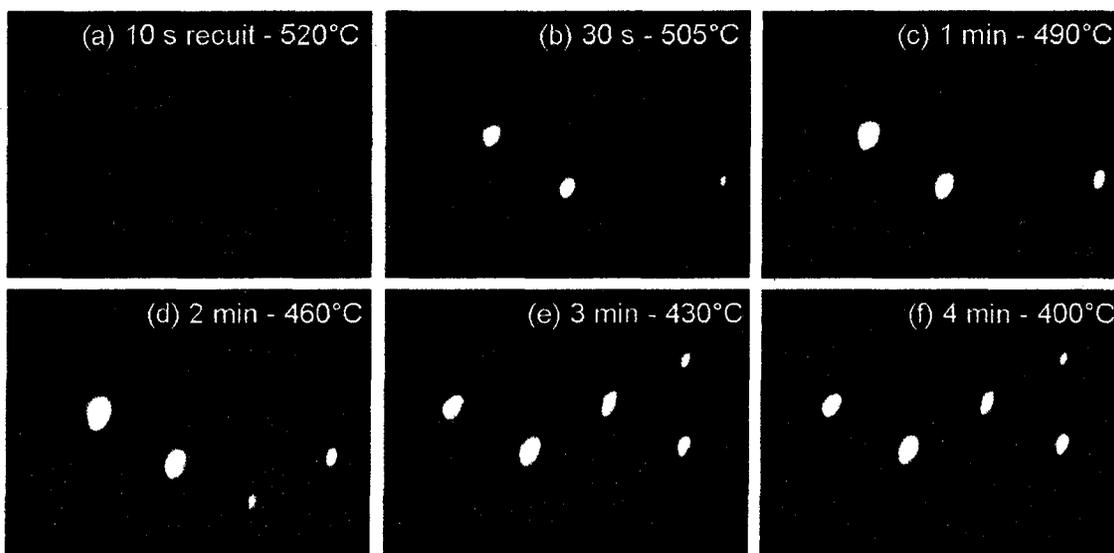


Figure 3.23. Echantillon B : Diagrammes suivant $[1\bar{1}0]$ (a) des bâtonnets ($E_{InAs} = 4$ MC) après 10 s de recuit puis (b-f) pendant la descente en température sous une forte pression d' As_2 .

l'évolution du diagramme RHEED selon $[1\bar{1}0]$ pendant la descente en température sous forte pression d'arsenic pour 2 échantillons A et B à bâtonnets. L'épaisseur d'InAs déposée était de 1,6 MC pour l'échantillon A (les bâtonnets sont de faible hauteur et la $\times 4$ est encore visible) et de 4 MC pour l'échantillon B (les bâtonnets et leurs facettes (114) sont complètement formés et les chevrons sont les seuls visibles). On peut observer, en particulier pour l'échantillon A, qu'à 460°C la $\times 4$ disparaît progressivement (comme observée pour la construction du diagramme des reconstructions de la couche d'InAs 2D – cf. Figure 3.9) au profit du renforcement de l'intensité des taches de Bragg. Pour l'échantillon B sur lequel les chevrons étaient déjà bien formés, ces derniers disparaissent eux aussi vers 460°C dans le même temps que l'intensité des taches de Bragg se renforce. La disparition de la reconstruction $\beta(2\times 4)$ lorsque la température devient inférieure à 460°C pourrait donc être à l'origine de la déstabilisation des bâtonnets au profit d'une forme isotrope plus stable.

La seconde hypothèse serait une déstabilisation de la forme avec l'accroissement du volume de l'ilot par des échanges P/As (cf. Figure 1.8). Il est bien connu que ces échanges créent de l'InAs supplémentaire d'autant plus que la pression d'arsenic et la température sont importantes. Les fortes pressions d'arsenic nécessaires pour obtenir une coalescence complète pendant la descente en température, permettraient de former suffisamment d'InAs supplémentaire pour enclencher une transition vers une forme qui relaxerait plus efficacement la contrainte induite par l'augmentation du volume. Cette dernière hypothèse semble plus envisageable car à faible pression d'arsenic, la transition fils-boîtes est rarement observée pendant la descente en température malgré la disparition de la $\times 4$ à 460°C.

3.4.3 Transition bâtonnets-boîtes par recuit sous arsenic à T_C - Voie B

De nombreux travaux ont aussi montré qu'il était possible de modifier considérablement la morphologie des îlots d'InAs formés sur InP(001) par un simple effet de recuit prolongé à la température à laquelle ils avaient été fabriqués [Houdre 93, Rudra 94, Lebouche-Girard 97, Gutiérrez 01b, Poole 01, McCaffrey 01]. Nous avons donc aussi exploré cette voie que nous dénommerons par la suite voie B pour fabriquer des boîtes d'InAs en faible densité.

Recuit à $T_C = 510-520^\circ\text{C}$

Les expériences ont d'abord été menées dans la gamme de $T_C = 510-520^\circ\text{C}$ avec une pression d'arsenic de 2×10^{-6} torr, condition pour laquelle une reconstruction de type $\alpha(2\times 4)$ est observée pour l'InAs. L'épaisseur d'InAs déposée était de 4 MC. L'objectif a d'abord été

de déterminer le temps nécessaire pour observer une transition bâtonnets-boîtes. Une étude couplée par AFM et RHEED a donc été entreprise en fonction du temps de recuit à $T_C=510^\circ\text{C}$. Les images AFM de la Figure 3.24 montrent une évolution lente des fils vers des boîtes avec le temps de recuit pris de 5 s jusqu'à 4 min. La transformation est complète au bout des 4 minutes, peut être moins. Les étapes intermédiaires de la transition montrent l'apparition progressive des boîtes interconnectées par des bâtonnets suivant la direction d'élongation $[\bar{1}\bar{1}0]$. La Figure 3.24(b) montre que les fils se segmentent dans leur longueur au profit de bâtonnets en plus forte densité. Au fur et à mesure du recuit, la largeur des bâtonnets augmente, quelques boîtes apparaissent le long de ceux-ci, puis leur nombre augmente au détriment de celui des bâtonnets (Figure 3.24(c)). La disposition des boîtes en chapelet suivant $[\bar{1}\bar{1}0]$ laisse penser que le transport de matière a lieu le long des bâtonnets. Pour des plus long temps de recuit, les bâtonnets ont complètement disparu et les boîtes continuent de grossir.

Nous avons également suivi en temps réel l'évolution des diagrammes de diffraction RHEED pendant cette étape de recuit des bâtonnets. Les diagrammes RHEED de la Figure 3.24 montrent eux aussi une évolution lente : les chevrons disparaissent progressivement au profit de taches de Bragg de plus en plus intenses, confirmant ainsi la formation des boîtes.

La Figure 3.25 montre des images TEM en vue plane et coupe transverse de telles boîtes

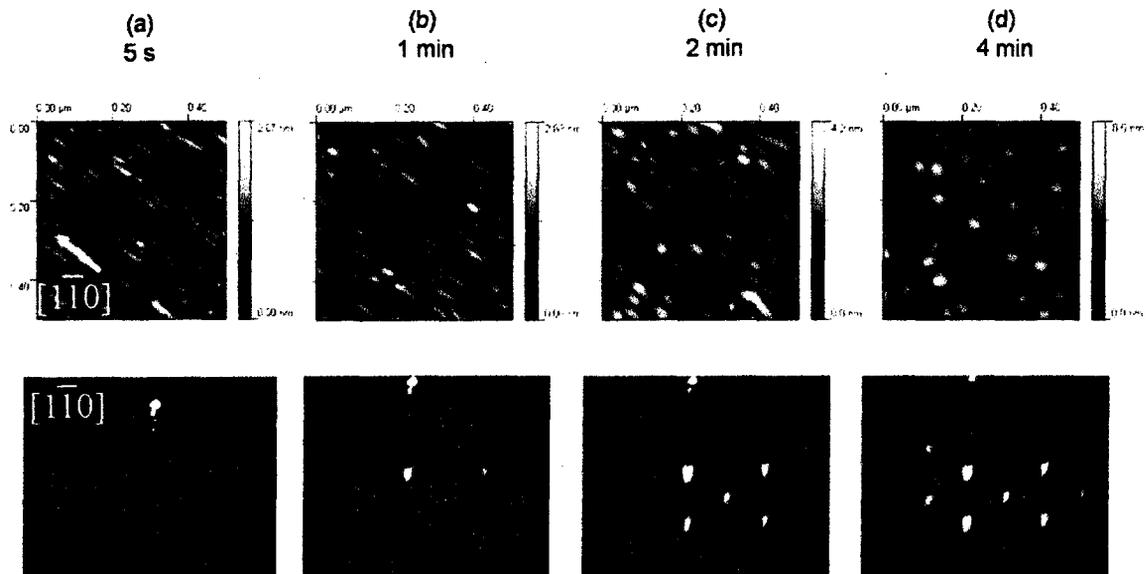


Figure 3.24. Images AFM et diagrammes RHEED suivant l'azimut $[\bar{1}\bar{1}0]$ montrant l'évolution morphologique des fils en fonction du temps de recuit (a) 5 s (b) 1 min (c) 2 min (d) 4 min. Les conditions de croissance des fils sont 4 MC / 510°C / $\text{As}_2: 2 \times 10^{-6}$ torr/ 0,2 MC/s. Le recuit est réalisé à 510°C .

après encapsulation par une couche d'InP. L'épaisseur d'InAs déposée est égale à 2 MC et la pression d'arsenic pendant le recuit est égale à 2×10^{-6} torr. Ces images montrent que pour cette épaisseur, les boîtes sont cohérentes en très grande majorité. Quelques dislocations provenant d'îlots relaxés plastiquement sont observées sur la Figure 3.25(b) prise dans des conditions de deux ondes (seule la réflexion 220 est en condition de Bragg). Les boîtes obtenues ont une forme de pyramide à base carrée et tronquée après encapsulation par de l'InP (Figure 3.25(c-d)). Les cotés de la base carrée sont orientés suivant $\langle 100 \rangle$. Les boîtes semblent être réparties suivant la direction privilégiée $\langle 100 \rangle$ et espacées de manière uniforme. L'image en coupe transverse suivant $[110]$ (Figure 3.25(d)) montre que les facettes (ou les arêtes) de ces îlots font un angle voisin de 15° avec la surface (001). Elles sont probablement de type $\{0\bar{1}4\}$.

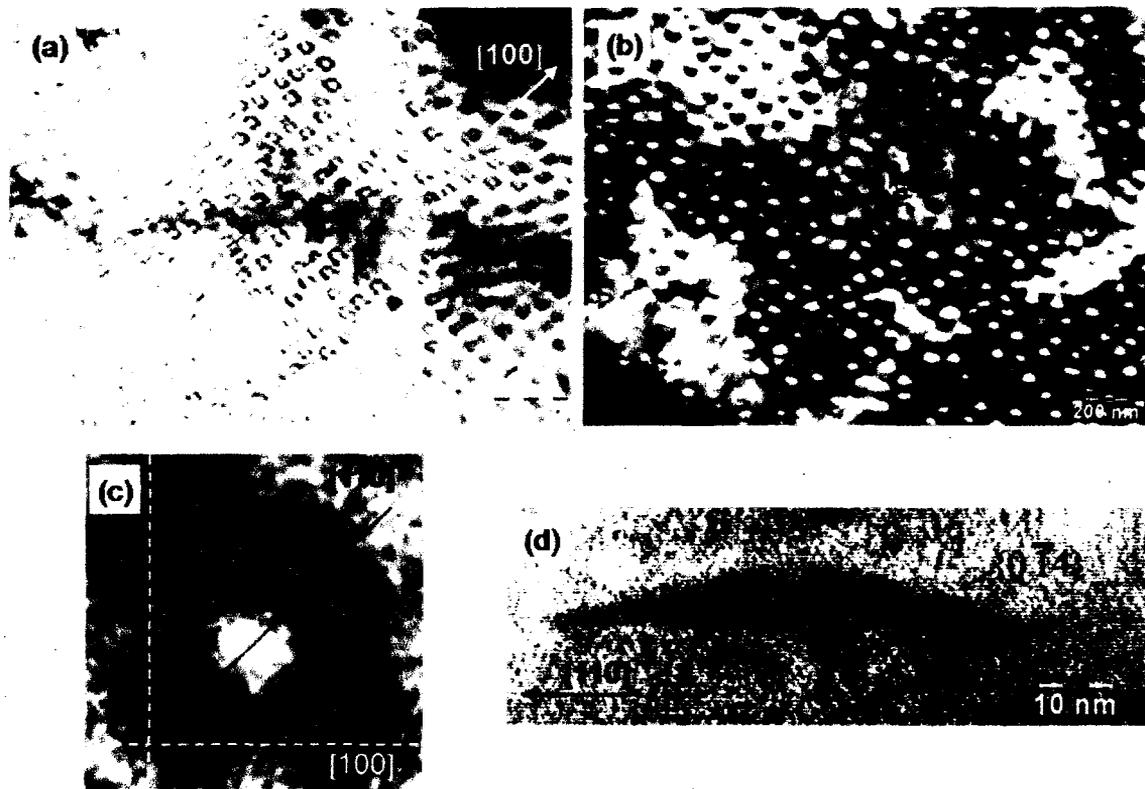


Figure 3.25. Images TEM de boîtes fabriquées selon la voie B avec un recuit de 4 minutes et encapsulées dans l'InP. (a) en champ clair en axe de zone $[001]$ au centre, (b) en champ sombre sur la tache sur la tache 220. Ces boîtes ont une forme pyramidale à base carrée orientée suivant $\langle 100 \rangle$. (c) zoom sur une boîte en vue plane (d) coupe transverse suivant $[110]$.

Recuit à $T_C < 510^\circ\text{C}$

Une étude en fonction de la température de croissance et donc de la température de recuit a été ensuite entreprise pour savoir si cet effet était observé quelle que soit la température de recuit T_R . L'étude a été menée pour des températures de croissance et de recuit comprises entre 480°C et 510°C . L'épaisseur d'InAs déposée est fixée à 4 MC et le temps de recuit à 4 min pour tous les échantillons. Les images AFM de la Figure 3.26(a)-(c) montrent que la transformation « bâtonnets-boîtes » n'est pas systématique quelle que soit la température de croissance. Si cette transformation est encore un peu observée à T_C et T_R égales à 500°C , les bâtonnets évoluent peu pour T_C et T_R égales à 480°C . Ces résultats sont confirmés par les diagrammes RHEED correspondants sur lesquels on peut voir la formation de taches de Bragg très intenses en fin de recuit à 500°C et 510°C , alors que les chevrons sont encore présents à 480°C . Sur ce dernier diagramme RHEED à 480°C , la reconstruction $\times 4$ y est toujours observable entre les chevrons. Au vue du diagramme de phase des reconstructions d'InAs, pour cette condition (T_C , P_{As}), cette reconstruction est du type $\beta(2\times 4)$. Cette observation est une preuve que la présence d'une reconstruction de type $\beta(2\times 4)$ conduit à une « stabilité » des bâtonnets. Au contraire une reconstruction de type $\alpha(2\times 4)$, même si elle conduit au cours de

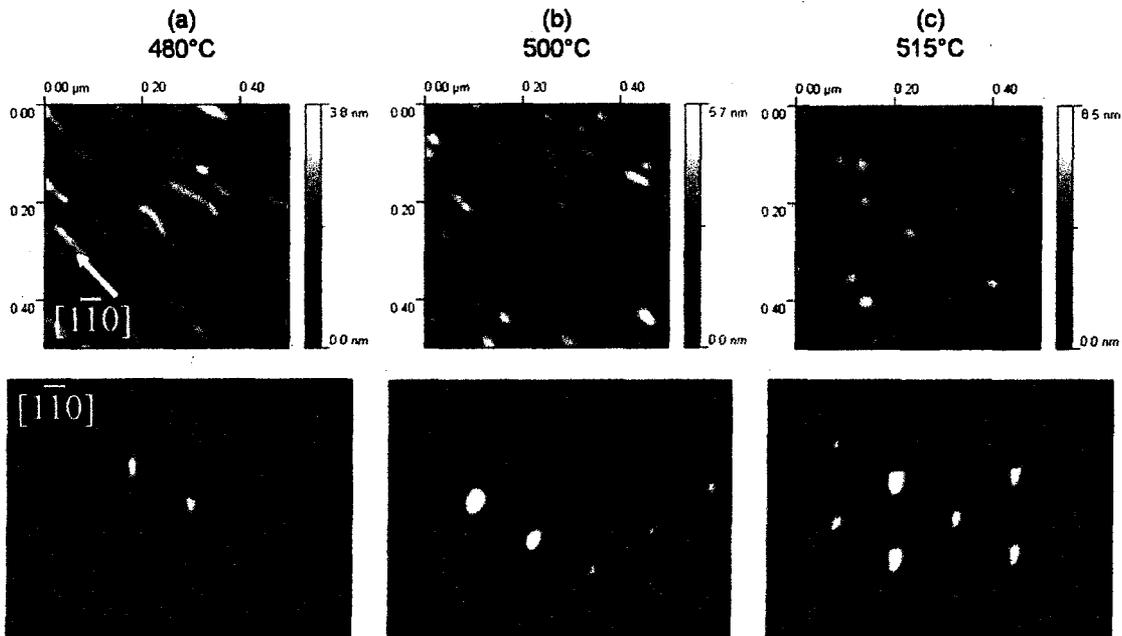


Figure 3.26. Images AFM et diagrammes RHEED après 4 min de recuit sous As_2 à 2×10^{-6} torr montrant l'effet de la température de recuit (a-c) sur l'évolution en forme des bâtonnets.

la croissance à la formation de bâtonnets, ne suffit pas cependant à « stabiliser » ces derniers vis-à-vis d'un recuit prolongé en température.

3.4.4 Discussions et conclusions sur la transition bâtonnets-boîtes

Ces études sur l'évolution des bâtonnets lors de procédés post-croissance amènent aux commentaires suivants :

1- Il apparaît que les fils-bâtonnets sont des structures métastables. Un recuit sous arsenic permet de les faire évoluer vers une forme de boîtes isotropes, plus stable.

2- Cette transformation ne semble pas se réaliser pour toutes les conditions explorées, notamment à plus basse température. Il apparaît que les conditions post-croissance ($T_C = 480^\circ\text{C} / As_2 = 2 \times 10^{-6}$ torr) compatibles à la reconstruction $\beta(2 \times 4)$ de l'InAs ne permettent pas cette transformation dans les 4 min de recuit. Par contre, sous les conditions de reconstruction $\alpha(2 \times 4)$ ($T_C = 500-520^\circ\text{C} / As_2 = 2 \times 10^{-6}$ torr), la transformation est possible dans le même laps de temps.

3- Des interprétations à l'équilibre thermodynamique basées sur le modèle de Tersoff ont déjà été proposés pour expliquer la transition « fils-boîtes » dans le système InAs/InP(001) [Saint-Girons 06b, Elias 09]. Ces auteurs ont pu démontrer que cette transition intervient en fonction du taux d'arsenic en surface pendant la croissance. Pour des faibles pressions d'arsenic, des bâtonnets sont directement formés tant dis que ce sont des boîtes pour des pressions d'arsenic plus élevées. Ces interprétations sont cependant difficilement adaptables à nos résultats car, dans notre cas, la transition a lieu après la croissance, pendant l'étape de mûrissement des fils-bâtonnets. De plus, elles ne considèrent pas l'effet particulier des reconstructions de surface et de leur anisotropie. Nos résultats expérimentaux montrent au contraire l'importance qu'elles peuvent avoir sur les facettes des îlots fabriqués (bâtonnets ou boîtes). C'est particulièrement le cas lorsqu'il existe une comptabilité forte d'une reconstruction avec un type de facette comme cela été mis en évidence par A. Ponchet et coll. pour la reconstruction (2×4) et les facettes de type $\{114\}$ [Ponchet 95b].

4- Si ces procédés permettent de conduire à la fabrication de boîtes quantiques d'InAs sur une surface d'InP(001), nous n'avons toujours pas pu les fabriquer en faibles densités avec les paramètres de croissance utilisés, en particulier avec l'épaisseur d'InAs déposé de 4 MC.

5- Ces procédés post-croissance conduisent à fabriquer des boîtes quantiques de grand volume, de grande dimension et qui sont assez dispersées en taille. Il apparaît nécessaire de contrôler leur taille pour ajuster leur longueur d'onde d'émission.

L'objectif du travail a consisté ensuite à : 1- trouver les paramètres de croissance et de post-croissance permettant de fabriquer des boîtes quantiques en faible densité, et 2- d'appliquer une procédure d'encapsulation dite « double-cap » pour contrôler leur hauteur et ainsi ajuster leur longueur d'onde d'émission à 1,55 μm .

3.5 Contrôle de la densité

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes concentrés sur le contrôle de la forme des îlots d'InAs/InP(001) par les conditions de croissance et/ou de post-croissance. Nous avons vu qu'il existe trois méthodes pour obtenir des îlots isotropes (que nous appellerons à nouveau boîtes), soit par des procédés post-croissance qui conduisent à une transition bâtonnets-boîtes, tels qu'un refroidissement sous flux d'arsenic (voie A) ou un « recuit » sous arsenic à la température de croissance si celle-ci est dans la gamme 510-520°C (voie B), soit par croissance directe si la température de croissance est voisine de 530°C (voie C). L'action d'un ou de plusieurs paramètres de croissance est susceptible de contrôler la densité [Dubrovskii 04]. Des faibles densités de boîtes sont typiquement observées pour des conditions induisant de faibles limitations cinétiques telles que des fortes températures de croissance [Li 08] et/ou à faibles vitesses de croissance [Alloing 05, Michon 07, Huang 08]. Elles sont aussi obtenues avec de faibles épaisseurs déposées [Zolotaryov 07, Guimard 08] allant même jusqu'à des épaisseurs inférieures à l'épaisseur critique H_{3D} , les îlots 3D étant alors formés par un procédé post-croissance; c'est cette dernière voie que nous avons particulièrement explorée pour l'obtention de faibles densités. Nous présentons ci-après les résultats concernant l'influence de l'épaisseur déposée pour les trois voies retenues de croissance de boîtes.

3.5.1 Voie A : Refroidissement sous Arsenic

Une série d'échantillons a permis d'étudier l'influence de l'épaisseur d'InAs déposée sur la densité des boîtes fabriquées par refroidissement sous flux d'arsenic. Les conditions de croissance de l'InAs étaient les suivantes : $T_C = 510^\circ\text{C}$ et la pression d'arsenic fixée à $1,6 \times 10^{-6}$ torr afin de passer le plus rapidement possible en 3D en favorisant une grande longueur de

diffusion des ad-atomes en surface. L'épaisseur critique H_{3D} mesurée par RHED dans ces conditions est voisine de 1,6 MC et le diagramme RHEED est bien représentatif de bâtonnets dès lors que l'épaisseur déposée est suffisante pour qu'ils soient assez nombreux et suffisamment développés. Le refroidissement conduisant à la transition bâtonnets-boîtes par « coalescence » a ensuite été réalisé avec une pression d'arsenic de $6-8 \times 10^{-6}$ torr. La Figure 3.27 présente l'évolution de la densité des boîtes ainsi formées (à gauche) et les images AFM de celles-ci (à droite) en fonction de l'épaisseur déposée.

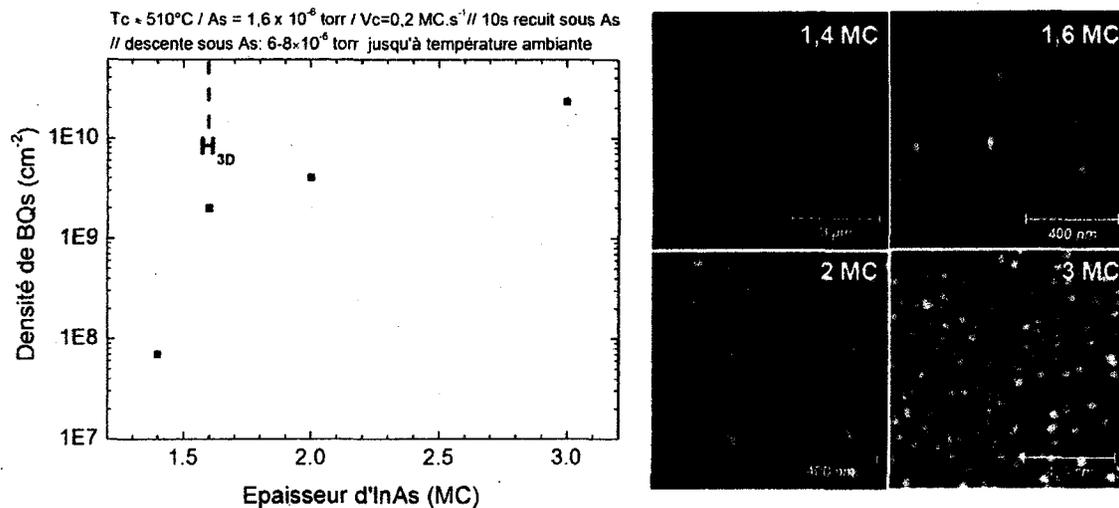


Figure 3.27. Densité et images AFM en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée pour des boîtes fabriquées selon la voie A.

On observe donc une réduction notable de la densité avec l'épaisseur d'InAs déposée. On note même que des boîtes se sont formées lors du refroidissement alors que l'épaisseur déposée était inférieure à H_{3D} . On atteint alors des densités aussi basses que $7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$. Les dimensions des boîtes sont typiquement voisines : $H = 8 \text{ nm}$ et $D = 80-90 \text{ nm}$. Elles sont cependant assez dispersées et les caractéristiques de ces boîtes ne sont pas toujours très reproductibles.

La Figure 3.28 montre des images TEM en vue plane de telles boîtes, pour une épaisseur d'InAs de : 1,4 MC (a), 1,6 MC (b) et 3 MC (c), après encapsulation par une couche d'InP. D'une part, ces images confirment une dispersion latérale en taille relativement élevée de ces boîtes. D'autre part, elles montrent que si les boîtes ne sont pas relaxées par des dislocations pour les faibles épaisseurs déposées de 1,4 et 1,6 MC, elles le sont lorsque l'épaisseur déposée

est de 3 MC. Seules quelques boîtes qui ont des dimensions réduites ne sont pas relaxées par des dislocations (cerclées en rouge).

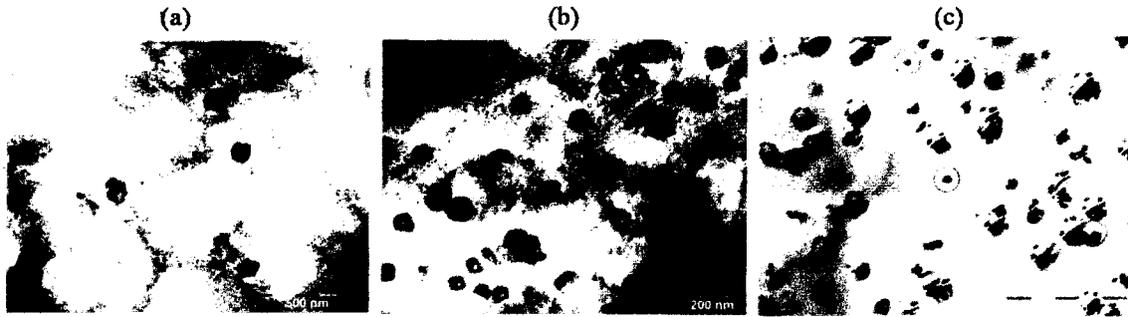


Figure 3.28. Images TEM en vue plane des boîtes fabriquées par la voie A. L'épaisseur d'InAs déposée est égale à : (a) 1,4 MC, (b) 1,6 MC et (c) 3 MC. La pression d'arsenic lors du refroidissement est de $6-8 \times 10^{-6}$ torr.

3.5.2 Voie B : Recuit à température de croissance

Une nouvelle série d'échantillons a permis d'étudier l'influence de l'épaisseur d'InAs déposée sur la densité des boîtes fabriquées par un « recuit » de 4 min sous flux d'arsenic à la température de croissance. Les conditions de croissance de l'InAs étaient les suivantes : $T_C=510^\circ\text{C}$ et la pression d'arsenic fixée à 2×10^{-6} torr. L'épaisseur critique H_{3D} mesurée par

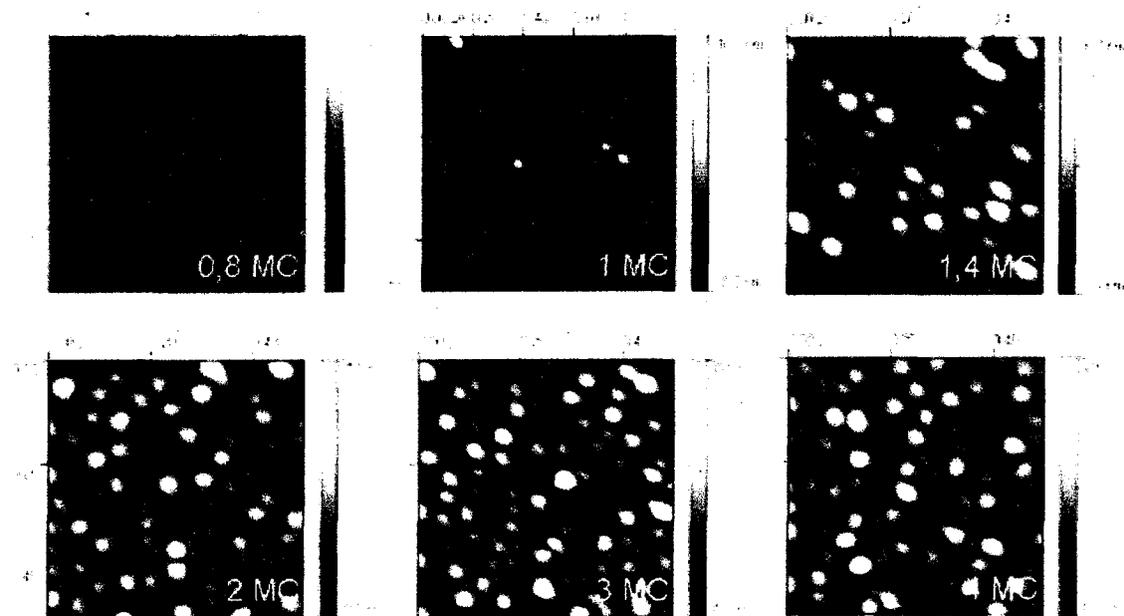


Figure 3.29. Images AFM montrant l'évolution de la densité des boîtes en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée, pour des boîtes fabriquées selon la voie B après 4 min de recuit.

RHEED dans ces conditions est voisine de 2,2 MC. On observe une très nette diminution de la densité des boîtes avec la diminution de l'épaisseur d'InAs déposée (Figure 3.29). Avec cette voie, la densité peut être contrôlée sur plus de deux ordres de grandeur par l'épaisseur d'InAs déposée. A nouveau, on observe des boîtes pour des épaisseurs d'InAs inférieures à H_{3D} , indiquant qu'elles se sont développées au cours du « recuit » de 4 min, comme cela a déjà été observé dans d'autres travaux [Kamiya 02, Sun 04, Song 06b]. Des densités aussi basses que $2 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ont pu être obtenues dans ces conditions (Figure 3.30). L'avantage de cette voie par rapport à la précédente est que la température est maintenue constante durant le procédé post-croissance. Les résultats sont apparus ainsi beaucoup plus reproductibles.

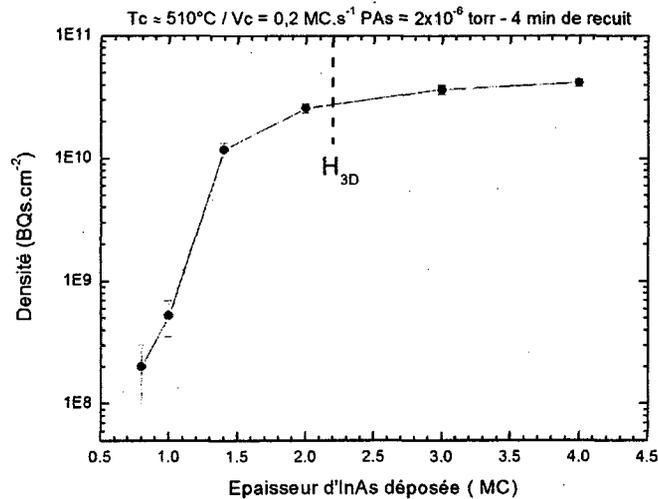


Figure 3.30. Evolution de la densité des boîtes fabriquées selon la voie B en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée.

Nous avons également fait l'étude en fonction de l'épaisseur déposée pour des recuits sous arsenic de 2 minutes. Pour ce temps de recuit, la transition bâtonnets-boîtes n'était pas complète (Figure 3.31). Des bâtonnets sont observés ainsi que quelques boîtes en chapelet

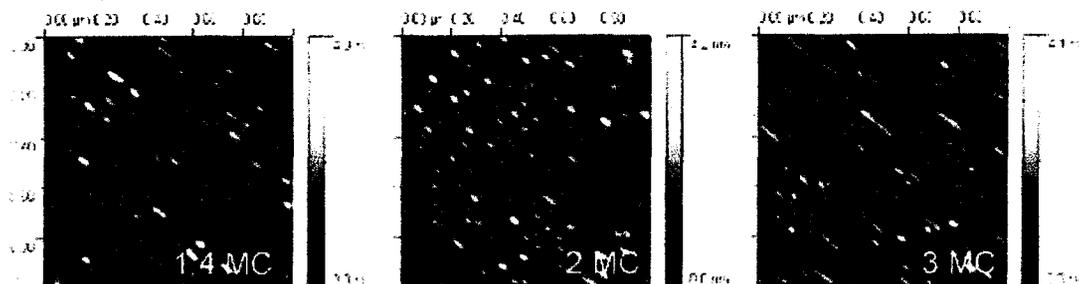


Figure 3.31. Images AFM montrant l'évolution de la densité des bâtonnets en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée après 2 minutes de « recuit ».

suivant $[1\bar{1}0]$ issues de la coalescence de bâtonnets. On note que la densité des bâtonnets diminue encore avec l'épaisseur d'InAs déposée comme cela a déjà été mentionné dans des travaux antérieurs [Alen 06, Fuster 07]. Pour 1,4 MC déposée, la densité moyenne des bâtonnets est d'environ $100 \mu\text{m}^{-2}$. Un dépôt d'InAs et un temps de recuit encore plus faibles permettraient probablement de réduire encore leur densité. L'intérêt de ce résultat est qu'il ouvre la possibilité d'obtenir des bâtonnets en faible densité et par conséquent d'étudier leurs propriétés optiques individuelles. Les bâtonnets présentent un intérêt particulier car ils sont susceptibles de conduire à un écart de structure fine de l'exciton nul ($FSS=0$) du fait de leur anisotropie de forme, et ainsi être utilisés comme élément actif dans des sources de photons intriqués.

3.5.3 Voie C : Croissance directe de boîtes

Une dernière série d'échantillons a été fabriquée pour étudier l'influence de l'épaisseur

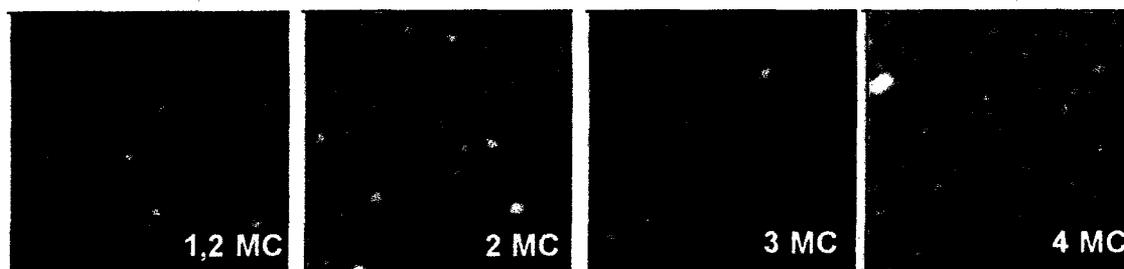


Figure 3.32. Images AFM ($500 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$) montrant l'évolution des boîtes fabriquées selon la voie C en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée : 1,2 MC, 2 MC, 3 MC et 4 MC.

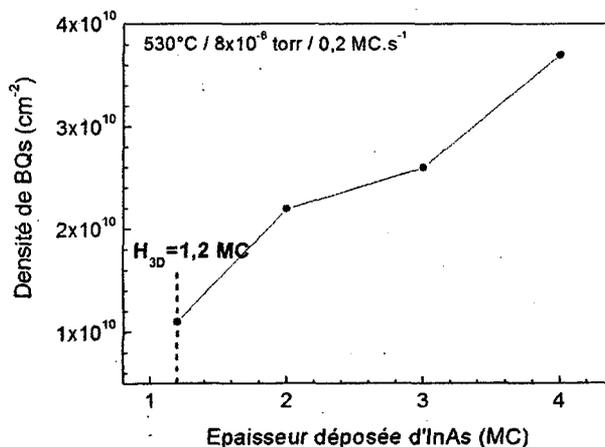


Figure 3.33. Evolution de la densité des boîtes fabriquées selon la voie C en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée.

d'InAs déposée sur la densité des boîtes formées directement lors de la croissance à hautes T_C . Les conditions de croissance de l'InAs étaient les suivantes : $T_C = 530^\circ\text{C}$ et $P_{\text{As}} = 8 \times 10^{-6}$ torr. L'épaisseur critique H_{3D} mesurée par RHEED dans ces conditions est voisine de 1,2 MC. La densité diminue là aussi avec l'épaisseur d'InAs déposée (Figure 3.32) mais elle reste cependant relativement élevée puisque toujours située dans la gamme des 10^{10} cm^{-2} (Figure 3.33). L'obtention de très faibles densités par ce mode de croissance directe n'a pas pu être obtenue même pour une épaisseur d'InAs déposée inférieure à H_{3D} , certainement à cause des conditions de température de croissance et de pression d'arsenic élevées qui conduisent à une épaisseur importante d'InAs fabriquée par réaction d'échange P/As.

3.5.4 Discussion

Cette étude nous a permis de trouver les conditions conduisant à des faibles densités de boîtes voisines de 10^8 cm^{-2} selon les deux voies impliquant un procédé post-croissance, en déposant une épaisseur d'InAs inférieure à H_{3D} .

Une explication faisant intervenir les réactions d'échange P/As, déjà évoquées en début de chapitre, peut être avancée pour interpréter la formation d'îlots lors du procédé post-croissance. Nous avons montré expérimentalement que l'épaisseur critique H_{3D} pour de l'InAs épitaxié sur une couche buffer de InAlAs accordée en maille sur InP(001) était égale à 2,5 MC. Dans ce système, l'épaisseur de l'InAs ne peut être produite que par les flux incidents d'In et d'As. Par contre, en raison des réactions d'échange P/As, dans le système InAs/InP, cette épaisseur d'InAs peut être produite de trois façons : 1- E_{surf} , l'épaisseur de la couche d'InAs produite à la surface d'InP lorsque celle-ci est exposée au flux d'arsenic pendant les 10 s qui précèdent la croissance d'InAs ; cette épaisseur peut être évaluée à 1 MC pour une température de 510°C , 2- E_{flux} , l'épaisseur de la couche déposée par les flux incidents d'In et d'As et 3- E_{interf} , l'épaisseur de la couche d'InAs qui peut être produite, en post-croissance, à l'interface InAs/InP lorsque cette surface est exposée à un flux d'arsenic. Cette réaction d'interface est d'autant plus importante que la température de l'échantillon est élevée. Nous pensons donc que l'épaisseur critique H_{3D} peut ne pas être atteinte au moment de la croissance avec la somme des épaisseurs E_{surf} et E_{flux} , et qu'elle puisse être atteinte lors d'un procédé post-croissance par l'ajout de l'épaisseur E_{interf} .

3.6 Encapsulation des boîtes quantiques d'InAs/InP(001)

3.6.1 Contexte de l'étude

L'étape d'encapsulation d'îlots d'InAs par une couche d'InP est bien connue pour modifier considérablement leur morphologie [Ulloa 07]. Il a aussi été montré que l'exposition des îlots d'InAs à un flux de phosphore modifie fortement la morphologie et la taille des îlots [Frechengues 99a, Zhuang 01, Gutiérrez 02] et ainsi leurs propriétés optiques. Ces effets peuvent être exploités judicieusement pour contrôler la taille des îlots par une procédure dite de « double-cap ». Cette technique a été particulièrement développée au Laboratoire FOTON de l'INSA de Rennes pour contrôler la taille des îlots d'InAs formés sur les surfaces d'InP(311)B et pour en diminuer la dispersion en taille [Paranthoen 01, Caroff 05b]. Si cette procédure est bien adaptée à des îlots relativement hauts, il avait été démontré à l'INL qu'elle était beaucoup moins efficace pour les bâtonnets d'InAs de hauteur assez faibles [Monat 03]. Par contre, vues les grandes tailles des îlots formés par les différentes voies A, B et C de ce travail, il est apparu nécessaire d'exploiter cette procédure double-cap pour en contrôler la hauteur et donc leur longueur d'onde d'émission. Cette étude a été principalement menée sur la base de mesures de photoluminescence (PL) à température ambiante.

3.6.2 Procédure d'encapsulation « simple-cap »

La Figure 3.34 illustre par des images TEM en coupe transverse l'effet d'une encapsulation « simple-cap », c'est-à-dire avec une épitaxie directe en une seule étape, d'îlots « hexagonaux » fabriqués selon la voie C. Avant l'encapsulation, les îlots ont typiquement les dimensions suivantes : une longueur, $L = 40$ nm suivant $[110]$, une largeur $l = 30$ nm suivant $[1\bar{1}0]$ et une hauteur $h = 9$ nm (Figure 3.34(a) et (b)). Après l'encapsulation, les dimensions sont réduites principalement pour la hauteur: $L = 38$ nm, $l = 29$ nm et $h = 6$ nm (Figure 3.34(c) et (d)). On voit très bien que les sommets des îlots sont plats et très "rabortés" par rapport aux mêmes îlots "non-encapsulés". Les facettes des îlots semblent néanmoins bien conservées. La réduction de la taille est donc observée mais reste insuffisante pour atteindre les longueurs d'onde voisines de $1,55 \mu\text{m}$ pour lesquelles des îlots de 2 à 3 nm de hauteur sont généralement requis.

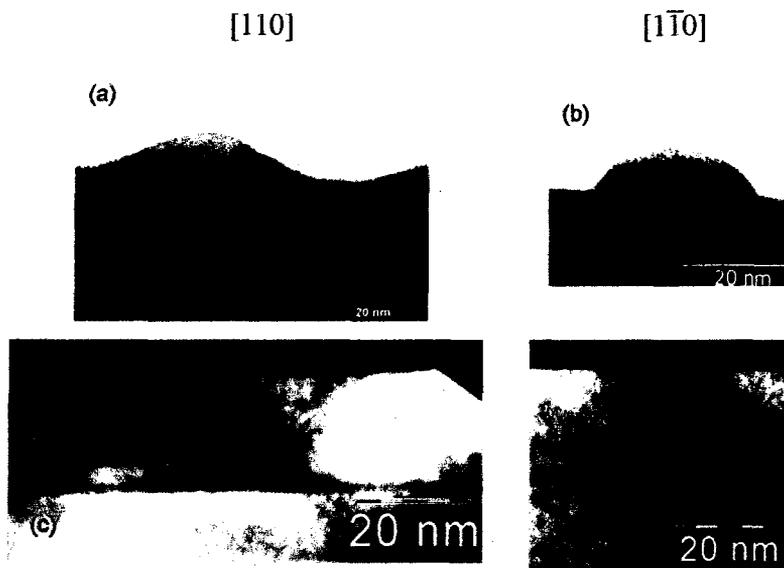


Figure 3.34. Images TEM en coupe transverse suivant $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ montrant les dimensions typiques de boîtes issues de la « voie C » avant (a)-(b) et après (c)-(d) l'encapsulation par une couche d'InP « simple-cap ».

La Figure 3.35 montre ainsi que même pour les plus faibles épaisseurs d'InAs déposées, la longueur d'onde d'émission de ces boîtes reste voisine ou supérieure à $1,8 \mu\text{m}$. Les largeurs à mi-hauteur des spectres qui sont aussi très grandes démontrent une forte dispersion en taille de ces boîtes formées selon la voie C.

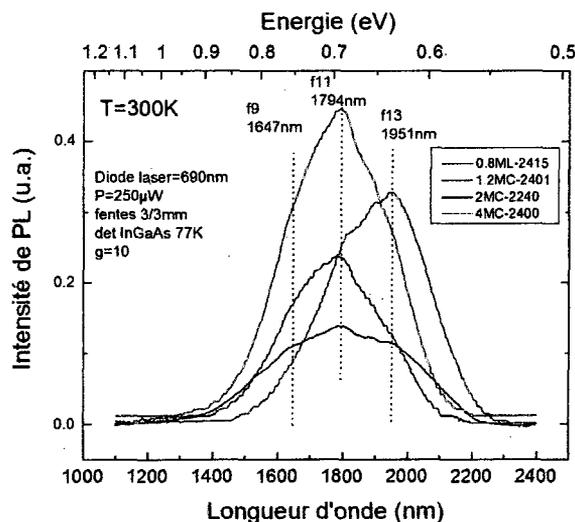


Figure 3.35. Spectres de PL à 300 K des boîtes de type « voie C » avec une encapsulation d'InP « simple-cap » de 40 nm. Les épaisseur d'InAs déposées sont : 0,8 MC, 1,2 MC, 2 MC et 4 MC.

La Figure 3.36 montre les spectres obtenus pour l'étude menée sur les boîtes fabriquées selon les voies A et B. Il ressort de ces spectres que si la procédure « simple-cap » n'est pas suffisante pour les boîtes de type « voie B » pour émettre vers 1,55 μm , elle l'est par contre pour les boîtes de type « voie A » lorsque l'épaisseur déposée d'InAs est dans la gamme de 1,6 à 2 MC avec un refroidissement jusqu'à 430°C.

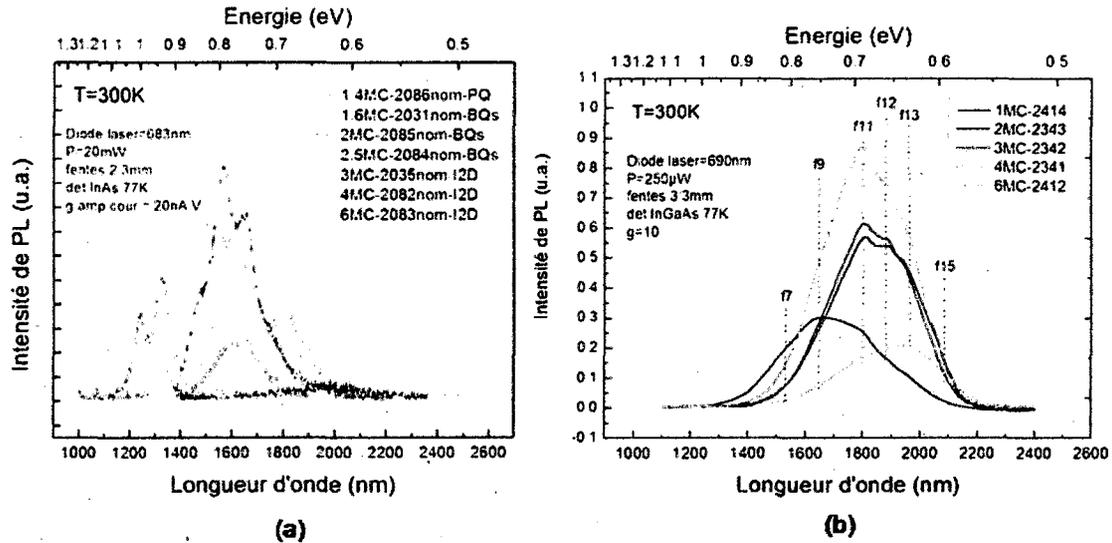


Figure 3.36. Spectres de PL à 300 K des boîtes de type (a) « voie A » et (b) « voie B » avec une encapsulation d'InP « simple-cap ».

La Figure 3.37 montre des images TEM en coupe transverse d'une structure à boîtes de type « voie A » réalisée avec une procédure d'encapsulation « simple-cap » et pour une épaisseur d'InAs déposée de 1,5 MC et un refroidissement jusqu'à 430°C. Les hauteurs de ces boîtes sont typiquement de l'ordre de 2,5 nm et sont donc tout à fait bien adaptées pour une

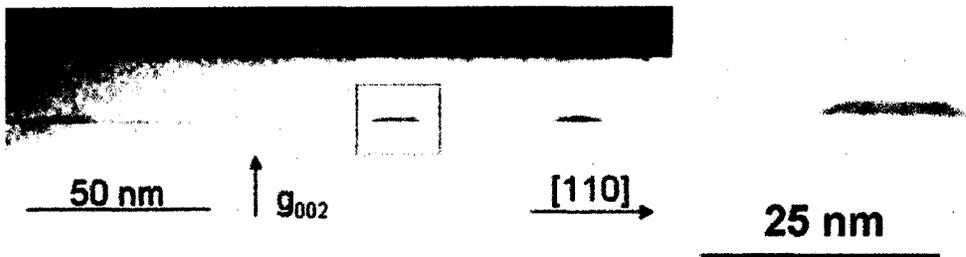


Figure 3.37. Images TEM en coupe transverse d'une structure à boîtes de type « voie A » avec une procédure d'encapsulation « simple-cap ». L'épaisseur d'InAs déposée est de 1,5 MC.

émission autour de $1,55 \mu\text{m}$ comme le montrent les spectres de PL précédents.

3.6.3 Procédure d'encapsulation « double-cap »

Principe de la procédure « double-cap »

Le principe de la procédure « double-cap » est illustré sur la Figure 3.38. Il s'appuie sur une encapsulation en deux étapes. Un premier cap d'InP de faible épaisseur est tout d'abord déposé sur les îlots d'InAs. Un « recuit » sous phosphore est ensuite effectué pendant 2 minutes afin de rogner par des échanges As/P les gros îlots qui n'ont pas été recouverts. Enfin, un second cap d'InP est déposé pour encapsuler les îlots. Cette procédure permet à la fois de réduire la hauteur des îlots et leur dispersion en taille.

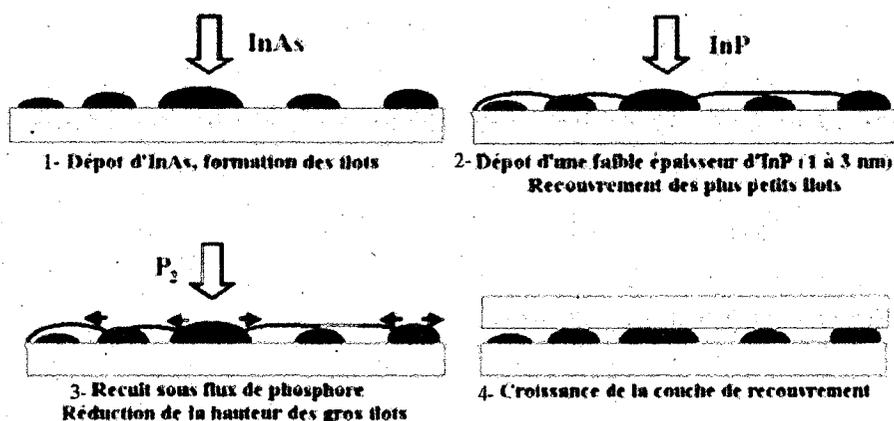


Figure 3.38. Etapes successives de l'encapsulation des boîtes d'InAs/InP par la méthode du « double-cap ». D'après [Paranthoen 01].

Résultats : Voie B / Voie C

La procédure « double-cap » a été étudiée pour les 2 types de boîtes fabriqués selon les voies B et C. L'étude a aussi été faite sur les boîtes de la «voie A », mais n'a pas amené de résultats probants et ne sera donc pas présentée. L'objectif d'une telle étude est de trouver expérimentalement la bonne épaisseur du premier cap pour atteindre la longueur d'onde visée. La Figure 3.39 montre l'effet attendu de cette procédure sur des boîtes de type « voie C » en fonction de l'épaisseur du premier cap. L'épaisseur d'InAs déposée pour cette étude est de 2 MC. Avec une encapsulation « simple-cap », ces boîtes émettent autour de $1,8 \mu\text{m}$ à température ambiante. Son émission peut être contrôlée autour de $1,55 \mu\text{m}$ grâce à l'encapsulation « double-cap » avec une épaisseur du premier cap de 2,5 nm.

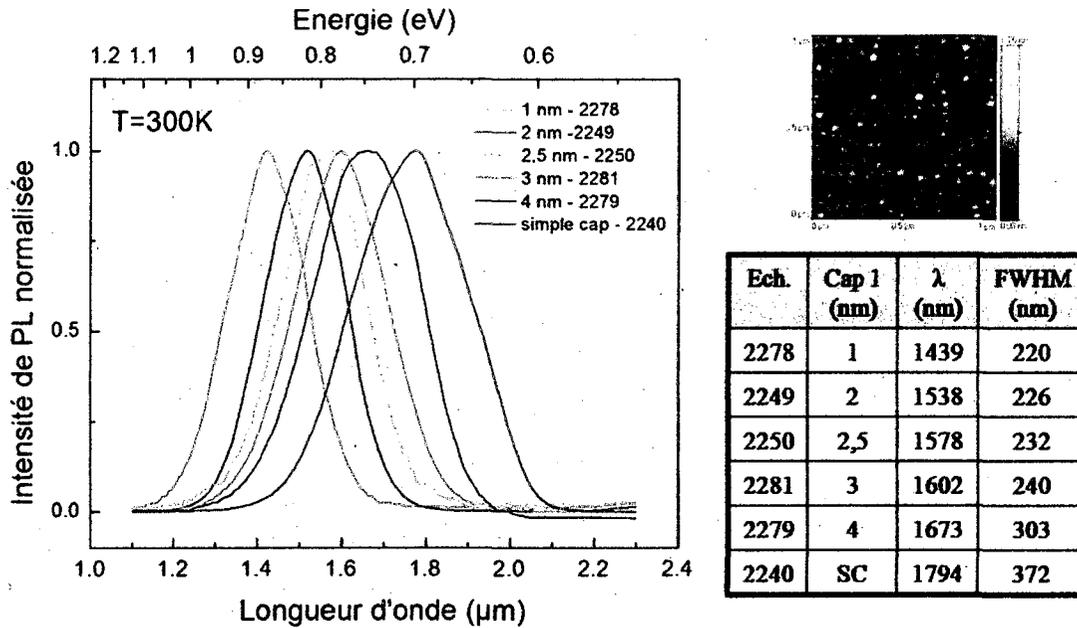


Figure 3.39. Spectres de PL à 300 K des boîtes formées selon la « voie C » avec une encapsulation d'InP « double-cap » en fonction de l'épaisseur du premier cap d'InP comparé à une encapsulation simple cap (SC).

L'autre résultat remarquable est la très forte diminution de la largeur à mi-hauteur (FWHM) de ces spectres. A 1,55 μm, la largeur à mi-hauteur est de l'ordre 230 nm (environ 120 meV). Cela montre l'effet très positif de la procédure « double-cap » sur la réduction de la dispersion en taille des îlots. Toutefois, ce résultat est à mettre en perspective avec les valeurs nettement inférieures obtenues pour des boîtes d'InAs sur d'autres substrats. Des largeurs à mi hauteur de 45-70 meV sur InP(311)B [Caroff 05a] et d'environ 20 meV sur GaAs(001) [Celibert 05] sont en effet reportées.

La Figure 3.40 montre la même étude menée sur des boîtes de type « voie B » pour différentes épaisseurs d'InAs déposées dans le cas de structures à 1 plan de boîtes et de structures empilées à 7 et 20 plans de boîtes séparés de 40 nm d'InP. Dans tous les cas, ces spectres montrent que la procédure « double-cap » est bien adaptée pour le contrôle de la longueur d'onde d'émission et de la dispersion en taille des boîtes de type « voie B ».

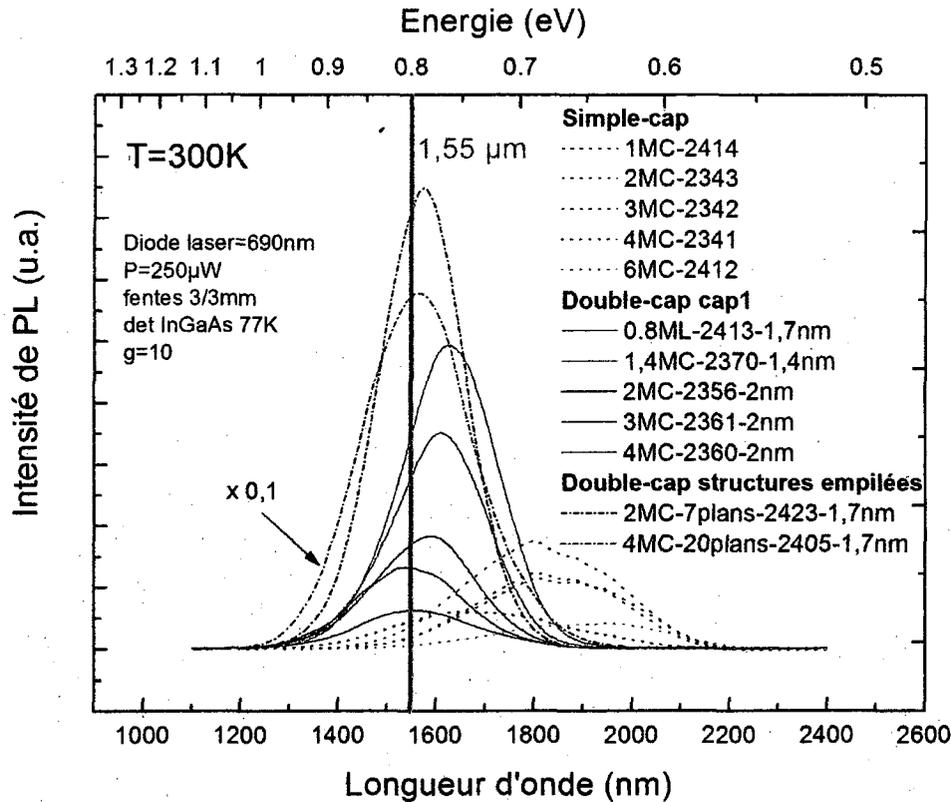


Figure 3.40. Spectres de PL à 300 K des boîtes formées selon la « voie B » avec une encapsulation d'InP soit « simple-cap », soit « double-cap » pour des structures à 1 plan de boîtes et des structures empilées à 7 et 20 plans de boîtes. La densité de boîtes est modifiée avec l'épaisseur d'InAs déposée entre 0,8 et 6 MC. La longueur d'onde d'émission visée est 1,55 μm et l'épaisseur du premier cap est d'environ 1,7 nm.

3.7 Conclusion

Nous avons montré qu'il est possible de contrôler la forme, la densité et l'émission des îlots quantiques d'InAs/InP(001) par un contrôle précis des paramètres de croissance. La forme des nanostructures dans ce système peu contraint dépend du rôle dominant des reconstructions de surface d'InAs et de leur symétrie. La formation de fils ou de bâtonnets allongés suivant $[1\bar{1}0]$ a ainsi été corrélée à la reconstruction $\beta(2\times 4)$ et à sa grande compatibilité avec les facettes de type $\{114\}$.

Nous avons aussi démontré pour la première fois qu'il était possible de former directement des boîtes d'InAs lors de la croissance par MBE à sources solides sur une surface d'InP(001), lorsque la reconstruction de surface de l'InAs est une (2×1) . Par ailleurs, une transition de forme de bâtonnets à boîtes a aussi été démontrée par des traitements post-

croissance sous arsenic confirmant que les bâtonnets fabriqués dans ce système ne sont des nanostructures stables que sous certaines conditions.

La Figure 3.41 récapitule l'ensemble des îlots obtenus par une vue synthétique des différentes formes en fonction des reconstructions de surface de l'InAs et des différents procédés utilisés : croissance directe et « post-croissance ».

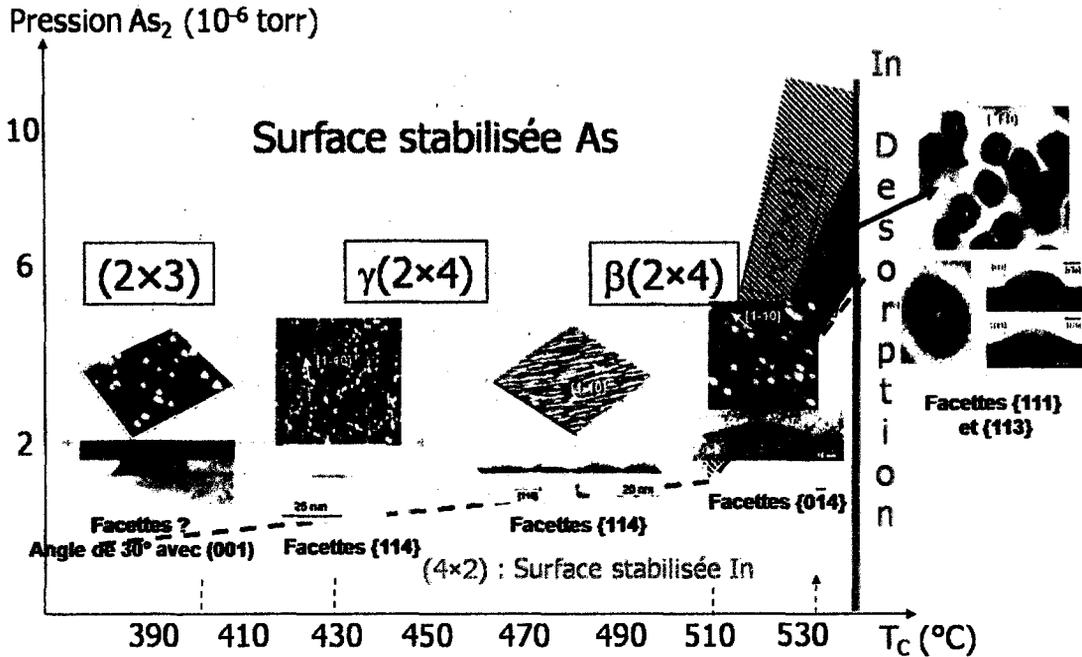


Figure 3.41. Diagramme de « phases » montrant les différentes formes d'îlots généralement obtenues en fonction des différents procédés (croissance directe ou « post-croissance ») utilisés et des reconstructions de surface associées de l'InAs.

Les études structurales réalisées par TEM montrent que les îlots isotropes fabriqués en croissance directe ou selon un procédé post-croissance sont cohérents mais de relativement grandes tailles. La densité de ces îlots (boîtes) a été contrôlée sur une plage de 0,7 à 500 μm⁻² en jouant sur l'épaisseur d'InAs déposée. Les faibles densités de boîtes (1-5 boîtes.μm⁻²) ont été obtenues de manière reproductible par ces procédés « post-croissance » avec de faibles épaisseurs d'InAs déposées. Enfin une procédure d'encapsulation des boîtes en deux étapes (double cap) a permis d'ajuster leur taille, en particulier la hauteur, et ainsi contrôler leur longueur d'onde d'émission à 1,55 μm.

Chapitre 4

Propriétés de boîtes quantiques

uniques d'InAs/InP(001):

Structure électronique et transport

Equation Chapter (Next) Section 1L'utilisation d'une seule boîte comme émetteur de lumière quantique dans des applications telles que des sources de photons uniques ou intriqués (cf. chapitre 1) nécessite au préalable une étude approfondie de leurs propriétés intrinsèques individuelles, notamment leurs propriétés électroniques et optiques. La petite taille (20-40 nm), le caractère discret des états d'énergie et la forte densité ($\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) de ces nanostructures requièrent l'utilisation de techniques spectroscopiques à haute résolution spatiale et spectrale et une grande sensibilité de détection. Les techniques de spectroscopie de fluorescence telles que la microphotoluminescence (μPL), la microscopie optique en champ proche à balayage (SNOM), la microscopie de luminescence à effet tunnel (STL) ou encore la cathodoluminescence (CL) sont particulièrement adaptées à ce type de spécifications [Gustafsson 98].

Dans ce chapitre, nous présentons quelques propriétés de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001) sondées par deux de ces techniques. La première partie est consacrée à l'étude de la structure électronique de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001) par μPL . Nous exposons les résultats préliminaires, obtenus dans le cadre de la thèse de doctorat de N.

Chauvin, mais néanmoins prometteurs concernant quelques unes de ces boîtes [Chauvin 06d]. Cette étude a notamment permis de déterminer expérimentalement les énergies de transitions interbandes des états fondamentaux et excités (exciton, biexciton et multi-excitons neutres), l'énergie de liaison du biexciton ainsi que l'écart énergétique entre le niveau fondamental et les niveaux excités [Chauvin 06c]. La seconde partie est consacrée à l'étude du transport de porteurs de charge autour de boîtes uniques par CL. Elle a été réalisée sur des structures à boîtes en très faible densité, au sein du Centre de Recherche de Nanofabrication et Nanocaractérisation (CRN2) de l'Université de Sherbrooke en collaboration avec Nicolas Pauc et Dominique Drouin. Nous présentons pour la première fois une mesure directe de la longueur de diffusion des porteurs dans la couche de mouillage aux alentours d'une boîte unique à partir de cartographies d'intensité de CL.

4.1 Structure électronique de boîtes quantiques uniques

Comme nous l'avons vu au chapitre 3, la croissance par MBE d'InAs sur un substrat d'InP(001) nominal conduit généralement à une forte densité de boîtes ou de bâtonnets. Afin d'obtenir le spectre de boîtes uniques, un contrôle de la forme des îlots, une réduction de la densité ainsi qu'une technique d'isolation de quelques boîtes sont indispensables pour des études en μ PL. Au cours de ce doctorat, de nouvelles conditions de croissance ont été mises au point à partir de l'exploitation du processus de coalescence des bâtonnets quantiques (BaQs) en forte densité (voie A). Ce processus aboutit à la disparition des bâtonnets lors de leur descente en température sous un flux d'arsenic et à l'émergence d'îlots de formes isotropes en plus faible densité. Nous présentons dans cette partie les résultats de μ PL sur ce type de boîtes qui ont fait l'objet de plusieurs articles [Dupuy 06, Chauvin 06a, Chauvin 06c]. L'évaluation des boîtes obtenues par les autres voies de croissance est en cours d'étude à l'INSA de Lyon.

4.1.1 Echantillon et spectres de μ PL

Cette étude a été menée sur des boîtes diluées obtenues selon la voie A par refroidissement sous flux d'arsenic jusqu'à 430°C, avant d'être encapsulées par une couche d'InP « simple cap » épitaxiée en remontant la température de l'échantillon de 430°C à 480°C. La Figure 4.1(a) montre une image AFM caractéristique de ces îlots, obtenue sur un échantillon élaboré dans des conditions identiques mais pour lequel les îlots n'ont pas été encapsulés. On constate que les îlots obtenus sont bien isotropes et ont un diamètre moyen et

une hauteur moyenne respectivement de 35 nm et 4 nm. Toutefois, quelques structures allongées suivant $[1\bar{1}0]$ associées à des BaQs résiduels sont encore observées. Leur présence s'explique par un processus de « coalescence » non achevé (refroidissement à 430°C) pour cet échantillon. La densité de boîtes isotropes est de l'ordre de 130 boîtes/ μm^2 . La Figure 4.1(b) montre une image TEM en coupe transverse suivant $[1\bar{1}0]$ d'une des boîtes de l'échantillon étudié par μPL . Ces boîtes ont typiquement une forme de pyramide ou de lentille tronquée avec une hauteur comprise entre 1,4 et 4 nm et un diamètre compris entre 15 et 25 nm. Cet échantillon a été analysé par PL et μPL à une température voisine de 10 K (refroidissement par hélium liquide) à travers une ouverture submicronique dans un masque métallique déposé en surface.

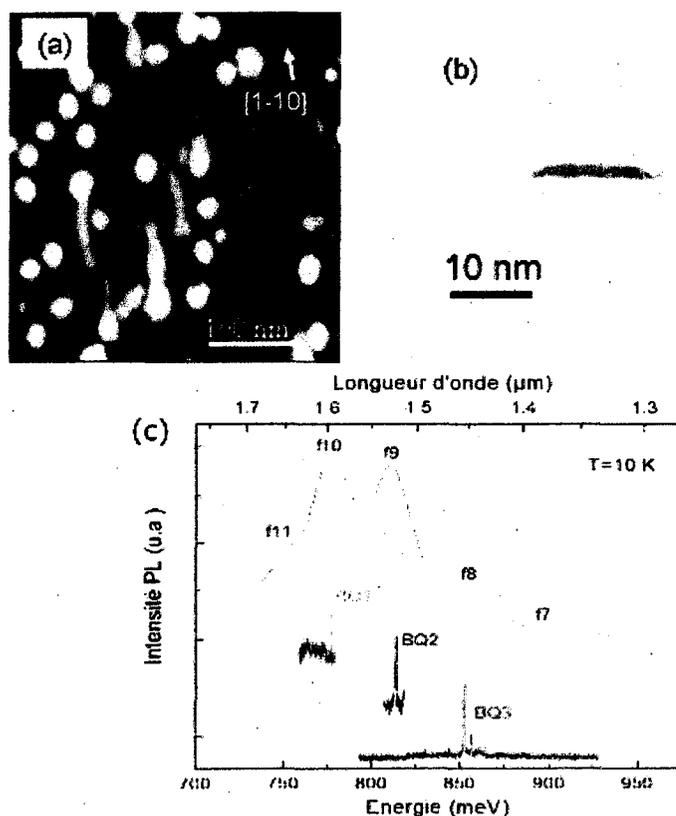


Figure 4.1. (a) Image AFM de boîtes diluées non cappées. (b) Image TEM en coupe transverse suivant $[1\bar{1}0]$ montrant une boîte caractéristique de l'échantillon étudié. Cette image révèle aussi la présence d'une couche de mouillage. (c) Spectre de macroPL d'un ensemble de boîtes (en noir) dont la distribution correspond à des fluctuations de monocouches de la hauteur (f7-f11). Le pic de la couche de mouillage (CM) à 1140 meV n'est pas montré. En dessous, les spectres de μPL de trois boîtes uniques acquis à travers une ouverture submicronique.

Nous observons en macro-PL de larges raies d'émission gaussiennes traduisant la contribution de différentes familles de boîtes ayant des hauteurs variables à la monocouche près (f7 à f11). Par contre, nous obtenons en μ -PL (Figure 4.1(c)) de fines raies d'émission de 200 μ eV de largeur à mi-hauteur ; soit la limite de résolution du système de détection. Ces résultats ont servi à valider à la fois la méthode de croissance de boîtes diluées d'InAs/InP(001) par coalescence de bâtonnets selon la voie A ainsi que la technique d'isolation d'un nombre réduit de boîtes pour la μ PL [Chauvin 06c].

4.1.2 Influence de la puissance d'excitation

La Figure 4.2 présente les spectres de μ PL d'une boîte unique d'InAs/InP(001) de cet échantillon en fonction de la puissance d'excitation. L'évolution des spectres de μ PL d'une boîte unique en fonction de la puissance d'excitation donne des informations sur leurs propriétés physiques intrinsèques telles que l'énergie de quantification des états électroniques, l'énergie de liaison du biexciton, etc... A faible puissance d'excitation, un seul pic est d'abord observé à 838.2 meV (1479 nm). Puis, lorsque la puissance d'excitation augmente un deuxième pic apparaît à 834.2 meV (1486 nm) suivi par d'autres pics à plus basses ou plus hautes énergies.

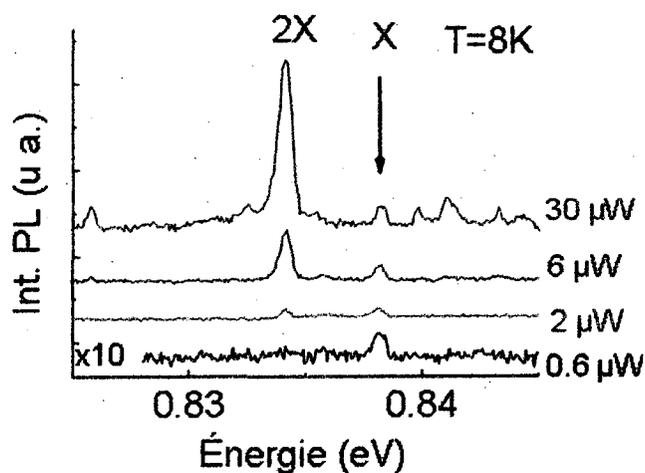


Figure 4.2. (a) Spectres de μ -PL à 8K d'une boîte unique en fonction de la puissance d'excitation. L'émission de l'exciton (X) apparaît d'abord à 838,2 meV suivie de celle du biexciton (2X) à 834,2 meV.

Le premier et le second pic sont attribués respectivement à la recombinaison de l'exciton (X) et du biexciton (2X) neutre de l'état fondamental d'une boîte unique. Les autres raies observées à plus fortes puissances d'excitation proviennent probablement d'états chargés et

multi-excitoniques [Cade 06]. L'attribution de ces deux raies est justifiée par les raisons présentées ci-dessous [Michel 97].

Pour le premier pic associé à la recombinaison de l'exciton:

- i) L'absence d'autres raies fines d'émission à basses puissances d'excitation
- ii) La persistance de cette raie à des températures plus élevées
- iii) La dépendance linéaire de l'intensité intégrée de cette raie avec la puissance d'excitation.

Pour le second pic associé à la recombinaison du biexciton:

- i) A partir de la position en énergie relative à l'exciton.
- ii) La dépendance quadratique de l'intensité intégrée de cette raie avec la puissance d'excitation.

L'énergie de liaison du biexciton, i.e. l'écart énergétique entre les émissions de l'exciton et du biexciton pour une boîte est définie par $\Delta E_{X-2X} = E_X - E_{2X}$. La liaison est dite liante si ΔE_{X-2X} est positive et anti-liante si ΔE_{X-2X} est négative [Cade 06]. Pour cette boîte, elle est liante et estimée à 4 meV. A plus fortes puissances d'excitation, de nouvelles raies apparaissent à environ 90 meV au dessus du niveau fondamental dénommé « s-shell » ou orbital s (Figure 4.3). Ces pics correspondent à l'émission du premier niveau excité indiqué « p-shell » ou orbital p et apparaissent après le remplissage et la saturation des états du niveau fondamental [Hessman 96]. Le premier pic à 930 meV est associé au triexciton neutre indiqué 3X sur la figure. A plus fortes puissances d'excitation, un autre pic apparaît 5,9 meV plus bas

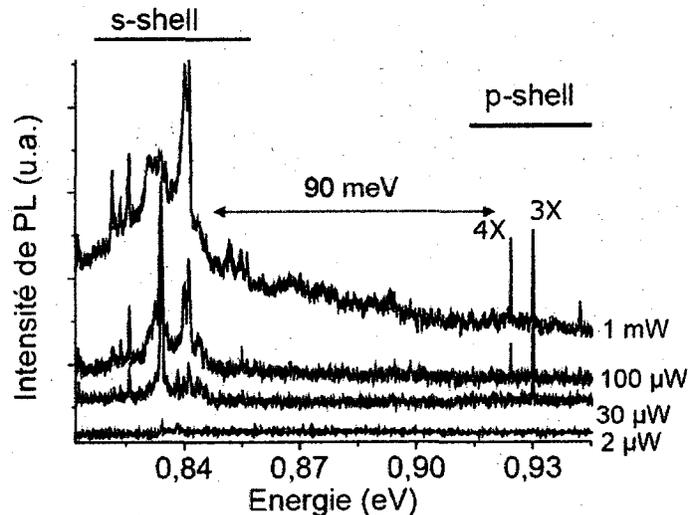


Figure 4.3. Emissions de l'état fondamental (s-shell) et du premier état excité (p-shell) séparées de 90 meV. Les pics 3X et 4X correspondent à la recombinaison du 3^{ème} et 4^{ème} exciton neutre séparés de 5,9 meV.

et est associé à la transition du 4^{ème} exciton neutre indiqué 4X [Chauvin 06c].

De toutes les boîtes sondées, nous n'avons pas observé la recombinaison de plus de quatre excitons. Cela contraste avec le système InAs/GaAs où une dizaine d'excitons (f-shell) ont pu être observés [Awirotananon 08]. Cette différence provient du plus faible confinement des électrons dans la bande de conduction pour le système InAs/InP. Ceci a été mis en évidence expérimentalement par des mesures d'absorption et de spectroscopie de capacitance [Pettersson 99] et plus récemment par des calculs de raccords de bande d'énergie [Pryor 05] et de structure électronique de boîtes d'InAs/InP [Gong 08, He 08].

4.1.3 Influence de la taille et de la forme des boîtes sur la structure électronique

Des mesures sur d'autres boîtes du même échantillon montrent un comportement similaire du système exciton-biexciton avec des valeurs d'énergie de liaison du biexciton ΔE_{X-2X} toujours positives variant entre 0.5 et 5,5 meV et une valeur moyenne autour de 4,5 meV. L'écart entre l'état fondamental et le premier niveau excité ΔE_{S-P} varie entre 20 et 90 meV. Ces fluctuations importantes doivent être la conséquence directe de l'inhomogénéité en taille (hauteur et extension latérale), en forme (quelques bâtonnets ont probablement été sondés) et peut-être aussi en composition de ces boîtes, inhérente à la technique de fabrication par coalescence. La structure électronique des boîtes étant fortement dépendante de ces paramètres, il n'est donc pas étonnant de trouver des résultats aussi variés.

En termes de valeurs, ces résultats expérimentaux diffèrent de ceux trouvés généralement dans la littérature. Le Tableau 4.1 rassemble les résultats de quelques groupes travaillant sur ce système. Le type de structure, la technique de croissance, la géométrie des îlots ainsi que leurs dimensions sont rapportés. Sur des surfaces d'InP(001) nominal, la plupart des auteurs ont obtenu des valeurs d'énergie de liaison du biexciton variant entre 0,6 et 2 meV et une énergie de séparation entre le niveau fondamental et le premier niveau excité variant entre 10 et 35 meV avec une valeur moyenne autour de 20 meV. Ces résultats ont été obtenus respectivement pour une boîte localisée précisément au sommet d'une pyramide tronquée d'InP [Chithrani 04, Kim 05] et pour des boîtes d'InAs/InP(001) auto-assemblées fabriquées par MOVPE [Saint-Girons 06a] et par CBE [Kim 06]. Ces faibles valeurs peuvent être expliquées par une forte dimension latérale des boîtes sondées comme en atteste un calcul théorique sur des boîtes à base carrée de 36 nm de côté et 2 nm de haut au sommet d'une pyramide tronquée où il a été trouvé des valeurs similaires (1,4 meV et 20 meV) [Sheng 05].

Les valeurs du même ordre pour les BaQs semblent confirmer cette hypothèse.

Tableau 4.1 Comparatif des énergies d'exciton (E_X), de liaison du biexciton (ΔE_{X2X}) et de séparation entre le 1^{er} niveau excité et le niveau fondamental (ΔE_{S-P}) pour différents îlots d'InAs crus sur substrat d'InP(001) planaire ou nanostructuré. (* : tailles mesurées par AFM; <...> : moyenne ; n.r. = non renseigné)

Structure	Technique de croissance	Géométrie des îlots	Taille (nm)	E_X (meV)	E_{X-2X} (meV)	ΔE_{S-P} (meV)	Réf.
Planaire							
InP(001)	SSMBE	bâtonnet	$L_{[110]}=50-200$ $l_{[110]}=22$ $h=2,2-2,4$	750-920	-0,5-2 -0,4-1,5 <0,7>	~ 25 n.r.	[Chauvin 05] [Salem 05] [Chauvin 06a]
InGaAlAs/InP(001)	SSMBE	bâtonnet et lentille	$L_{[110]}=50-200$ $l_{[110]}=20-30$ $h = \text{n.r.}$	800-920	~3,5 ~ 0,4	n.r.	[Mensing 03] [Sek 09]
InP(001)	MOCVD	lentille	*D = 35-70 *h = 3-12	775-950	n.r.	n.r.	[Takemoto 04a]
InP(001) vicinal	SSMBE	lentille	*D = 30-35 *h = 0,6	880-1050	0,4-3,4 <2,4>	n.r.	[Chauvin 06b]
InGaAsP/InP(001) vicinal	MOCVD	lentille	*D = 35-65 *h = 3,1-6	785-813	-5-2	n.r.	[Cade 06]
InP(001)	MOCVD	pyramide base losange	$L_{[110]}=43$ $l_{[110]}=23$ $h=2,1\pm 0,8$	775-1030	n.r.	n.r.	[Kleemans 09]
InP(001)	SSMBE Voie A	pyramide ou lentille tronquée	D = 15-25 h = 1,3-4	750-900	0,5-5,5 <4,5>	20-90	Ce travail
InP(001)	CBE	pyramide tronquée base carrée	a = 25-35 h ~ 1-3	850-1025	n.r.	10-35 <21>	[Kim 06] [Kim 09]
Template							
Pyramide InP(001)	CBE	n.r.	n.r.	~ 852 ~ 824	~ 1 n.r.	~ 19 n.r.	[Chithrani 04] [Reimer 09]
Trous InP(001)	MOCVD	lentille	D = 20-100 h = 2-9	580-900	n.r.	n.r.	[Song 05] [Song 06a]
Pyramide InP(001) vicinal	MOCVD	n.r.	n.r.	~ 803	n.r.	n.r.	[Wang 09]

Sur des substrats d'InP vicinaux (désorientation selon [001]), les énergies reportées du biexciton sont plus fortes en moyenne à cause d'une réduction en taille de ce type de boîtes [Chauvin 06a] et sont mêmes négatives (anti-liantes) pour les boîtes crues sur une couche tampon de quaternaire [Cade 06]. Les fortes énergies de liaison du biexciton (4 meV) et la différence en énergie entre le niveau fondamental et le niveau excité (90 meV) mesurée pour quelques-unes de nos boîtes s'expliquent aussi par leurs plus petites tailles dont le diamètre est estimé entre 15 et 25 nm. En effet, il est bien connu que la réduction du rayon augmente l'écart énergétique entre les niveaux électroniques par interactions coulombiennes [Takagahara 89]. De plus, nos valeurs coïncident précisément avec les calculs théoriques de Gong et al. où ils ont calculé une énergie d'exciton de 857,8 meV, un écart d'énergie $\Delta E_{S,P}$ d'environ 90 meV et un écart entre les transitions 3X et 4X de 5,7 meV pour des boîtes en forme de lentille tronquée de 20 nm de diamètre et de 3,5 nm de haut [Gong 08].

4.1.4 Bilan

L'émission de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001) a été observée autour de 1,5 μm à basses températures validant ainsi le procédé de fabrication de boîtes en faible densité. L'analyse en puissance d'excitation a permis la détermination expérimentale de propriétés intéressantes notamment une forte énergie de liaison du biexciton (jusqu'à 5,5 meV) ainsi qu'un grand écart entre le niveau fondamental et le premier niveau excité (jusqu'à 90 meV) pour quelques boîtes, suggérant un fort confinement spatiale des porteurs. Ces valeurs varient de manière importante en fonction de la forme et de la taille des boîtes. Comme on pouvait s'y attendre, la tendance est à leur augmentation lorsque le diamètre de la boîte et sa hauteur sont réduits.

Ces résultats préliminaires suggèrent que les boîtes fabriquées par cette technique de croissance sont potentiellement utilisables dans des sources de photons uniques émettant autour de 1.55 μm pour des systèmes d'information et de cryptographie quantiques. D'autres études seraient nécessaires afin d'étudier plus précisément l'influence de la forme, de la taille, de la température, des champs magnétique et électrique sur les propriétés électroniques et optiques de telles boîtes. Il serait même particulièrement intéressant de déterminer la structure fine de l'exciton (de l'ordre du μeV) par des techniques de spectroscopie résolue en polarisation afin de valider expérimentalement les calculs fait par He et coll. et la possibilité d'utiliser ces boîtes comme émetteurs de photons intriqués [He 08].

4.2 Propriétés de transport autour de boîtes quantiques uniques

Cette partie a fait l'objet d'un article dans Applied Physics Letters [Dupuy 09].

4.2.1 Contexte de l'étude

Avec le développement des nouveaux dispositifs optoélectroniques utilisant une seule boîte comme élément actif, notamment dans des sources à photons uniques ou dans des nanolasers, le besoin d'évaluer leurs propriétés individuelles est crucial. Nous avons vu dans la section précédente que la spectroscopie de boîtes quantiques uniques permettait de caractériser les niveaux électroniques discrets de ces systèmes quasi-0D grâce à l'émission de photons associée à chaque transition radiative permise. Ces premières informations sont en effet fondamentales pour comprendre la physique à ces échelles et nécessaires à la conception des dispositifs quantiques. De même, l'étude du transport des porteurs de charge depuis leur point de génération jusqu'à leur capture et relaxation dans les boîtes est d'un fort intérêt pour optimiser les performances de ces dispositifs. Les propriétés temporelles de transport de charges telles que le temps de capture et le temps de relaxation sur un ensemble de boîtes ont été largement étudiées par des techniques optiques résolues en temps [Leon 99, Lobo 99, Peronne 01, Marcinkevicius 08]. Quelques groupes seulement, présentent des mesures de temps de capture et recombinaison ultrarapide d'une boîte quantique unique avec des techniques résolues spatialement et temporellement [Ono 99, Zwiller 99, Merano 05]. La longueur de diffusion est aussi un paramètre d'une extrême importance puisqu'il décrit la distance moyenne entre le point de création et le point de recombinaison d'un porteur en excès. Afin de déterminer la longueur de diffusion avant la capture par une boîte, ces techniques nécessitent de connaître localement la constante de diffusion ou la mobilité des porteurs du matériau. En conséquence, une mesure directe est plus attractive. De nombreuses techniques ont déjà été utilisées pour déterminer directement ces propriétés dans des structures semi-conductrices de faibles dimensionnalités [Gustafsson 98] notamment pour les puits quantiques [Zarem 89, Araujo 93, Haegel 04, Malyarchuk 02] et les boîtes auto-assemblées [Popescu 03, Monte 03, Fiore 04]. Cependant, dans le cas des boîtes, la taille de la sonde excitatrice est dans la plupart des cas largement supérieure à la distance inter-boîtes empêchant toute mesure locale autour d'une boîte unique.

Nous proposons dans cette section une méthode pour mesurer directement la longueur de diffusion des porteurs avant leur capture dans une boîte unique au moyen d'une technique de

cathodoluminescence à basse tension au sein d'un MEB. Cette technique nous permet pour la première fois de déterminer la longueur de capture des porteurs d'une boîte unique. Après une présentation de cette technique et de sa spécificité pour l'étude de boîtes uniques, nous décrirons le principe de mesure ainsi que le modèle théorique qui nous ont permis d'extraire la longueur de diffusion des porteurs en excès autour d'une seule boîte sur une cartographie de CL. Les influences de la densité d'excitation, de la température ainsi que du dopage sur la longueur de diffusion seront évaluées par la suite.

4.2.2 La Cathodoluminescence à basse tension d'accélération

Haute résolution spatiale

L'intérêt de cette technique repose sur sa grande résolution spatiale latérale. Comme évoqué au chapitre 2, la résolution en CL dépend non seulement de la taille du faisceau d'électrons et de l'étalement des électrons primaires dans le matériau, autrement dit de l'extension du volume d'interaction, mais également de la capacité des paires e-h à diffuser au delà de leur point de création. La résolution effective en CL est définie par la distance d_{CL} dont l'expression est généralement donnée par :

$$d_{CL} = \sqrt{\phi_s^2 + R_e^2 + L_d^2} \quad (4.1)$$

où ϕ_s est la taille de sonde électronique, R_e est la dimension latérale du volume de génération des paires électrons-trous et L_d est la longueur de diffusion des porteurs en excès qui dépend du matériau sondé [Pennycook 81, Petrov 92]. En travaillant avec un microscope électronique à effet de champ récent et une faible tension d'accélération, typiquement 1 kV, on est capable de réduire ϕ_s et R_e à une source quasi ponctuelle en comparaison à la longueur de diffusion dans les semi-conducteurs III-V qui est de l'ordre du micromètre. En effet, dans les microscopes à effet de champ récents, le diamètre du faisceau d'électrons reste très petit, de l'ordre de 1-3 nm, quelles que soient la tension d'accélération et l'intensité du courant utilisées. Pour une tension d'accélération de 1 kV, le rayon du volume d'interaction se réduit à moins de 10 nm dans l'InP (cf. chapitre 2). La résolution effective de CL ne dépend alors que de la longueur de diffusion des porteurs en excès.

Etude de nanostructures uniques

Cette grande résolution spatiale permet d'envisager l'étude de nanostructures semi-conductrices uniques comme les boîtes quantiques. Considérons maintenant une structure contenant un plan de boîtes semi-conductrices auto-assemblées. La taille de sonde dans ces conditions expérimentales étant plus petite que la distance inter-boîtes, on peut envisager de mesurer la longueur de diffusion avant capture par une boîte. Si l'intensité de CL provient uniquement de l'émission d'une boîte unique, la distance limite de résolution devient la longueur de diffusion des porteurs en excès avant leur capture par celle-ci. Chaque boîte joue alors le rôle d'un piège dans lequel les porteurs sont capturés de la même manière que des dislocations le feraient dans un semi-conducteur massif [Pauc 06] mais à la différence qu'ils se recombinaient de manière radiative dans les boîtes.

Outre la grande résolution spatiale, cette technique présente l'avantage d'être sans contact, versatile et facile d'utilisation. Aucune préparation de l'échantillon comme la micro-fabrication de mesas ou d'ouvertures submicroniques en μ PL, la déposition d'un masque métallique [Zarem 89] ou encore de contacts en EBIC n'est nécessaire. L'échantillon est directement inséré dans le MEB. Les observations peuvent se faire sur toute sa surface avec une grande facilité sur des zones de quelques nanomètres à plusieurs millimètres carrés contrairement au SNOM.

4.2.3 Cartographie de boîtes quantiques uniques

Pour obtenir une cartographie de boîtes uniques, le plus simple est de faire une image de la surface à la longueur d'onde de la raie d'émission d'une boîte unique observée sur le spectre de CL [Grundmann 95, Leon 95, Saiki 98]. Ceci n'est possible qu'à cause de la distribution en énergie des boîtes relative à leur distribution en taille (« CL wavelength imaging »). En effet, si toutes les boîtes émettaient à la même énergie, on serait incapable de les résoudre car la distance inter-boîtes serait plus petite que la résolution de CL. Malheureusement, la sensibilité trop faible de notre système de détection (monochromateur inadéquate pour ce type de mesure) ne nous a pas permis d'effectuer une telle mesure sur nos échantillons même à forte énergie et fort courant de faisceau d'électrons. La cartographie de boîtes n'a pu être réalisée seulement qu'en mode panchromatique sur des échantillons présentant une très faible densité afin de pouvoir résoudre spatialement l'émission d'une boîte unique.

Spécification de l'échantillon

La haute résolution spatiale en CL impose de travailler à basse tension d'accélération. Or, dans ces conditions, l'intensité de CL est plus faible, ce qui pose des problèmes de sensibilité de détection du signal surtout lorsque les structures sondées émettent peu. En effet, à 1 kV, l'énergie injectée dans le semi-conducteur est plus faible. Elle génère ainsi beaucoup moins de paires électron-trou. D'autre part, le volume de génération de paires électron-trou est situé juste sous la surface, lieu où les recombinaisons non-radiatives par les défauts de surface sont dominantes. Une faible épaisseur de couche de recouvrement (cap) au dessus des boîtes est donc requise afin que les porteurs générés près de la surface puissent rejoindre la couche de mouillage (CM) et les boîtes et ainsi collecter suffisamment de signal pour la détection. Cette couche doit être aussi suffisamment épaisse afin d'éviter l'influence des pièges en surface sur le transport des porteurs capturés par la CM.

Un échantillon a donc été fabriqué spécialement pour les mesures de CL avec un cap mince de 20 nm d'épaisseur. La Figure 4.4 présente le détail de la structure à boîtes en faible densité. Elle a été préparée sur un substrat semi-isolant d'InP(001) suivant la voie B décrite au chapitre 3. Une faible densité de boîtes est obtenue avec une épaisseur d'InAs déposée de 1 MC.

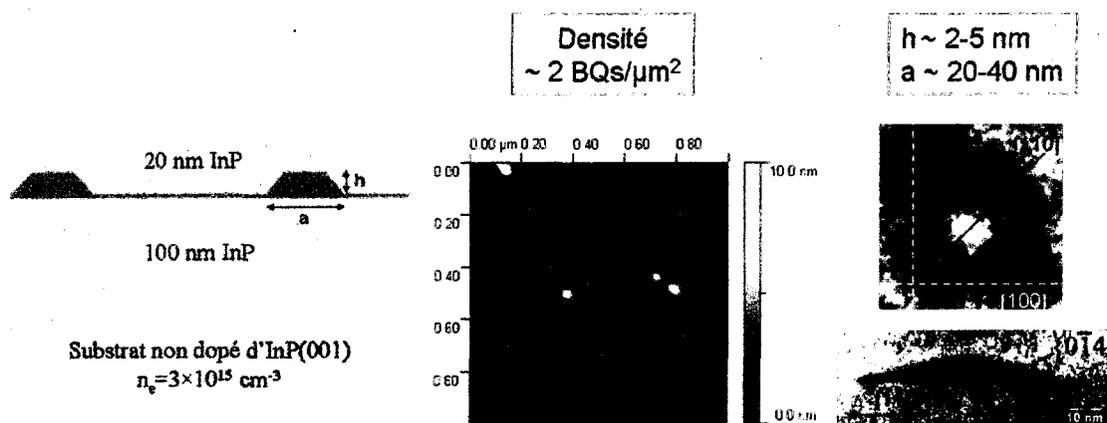


Figure 4.4. A gauche, schéma de la structure préparée par MBE. Au centre, image AFM des boîtes non capées en faible densité. A droite, images TEM en vue plane et coupe transverse des boîtes obtenues par ce procédé.

D'après l'étude de microscopie électronique en transmission, les boîtes obtenues ont une forme de pyramide à base carrée et tronquée après encapsulation par de l'InP. Les cotés de la base carrée sont orientés suivant [100] et les facettes sont de type {014}. Les dimensions

mesurées montrent une longueur variant entre 20 et 40 nm et une hauteur entre 2 et 5 nm. Une couche de mouillage d'InAs d'environ 2 MC d'épaisseur ($\sim 0,6$ nm) est présente et confirmée par une émission à 980 nm à 5 K. La longueur d'onde d'émission a été centrée sur $1,5 \mu\text{m}$ à température ambiante en contrôlant la hauteur des boîtes par la procédure du « double cap ».

Cartographie

La Figure 4.5 montre une cartographie de CL de l'échantillon obtenue en mode panchromatique avec un filtre passe haut à partir de $1,1 \mu\text{m}$. Dans le mode panchromatique, le monochromateur est contourné et la lumière collectée est directement envoyée au photomultiplicateur (PM). Un filtre passe-haut en silicium a été inséré au préalable entre le miroir et le PM afin de bloquer l'émission provenant de la couche de mouillage et de la barrière d'InP. Ainsi, seulement l'émission de boîtes entre $1,1$ et $1,65 \mu\text{m}$, qui correspond à la longueur d'onde de coupure du détecteur, est mesurée et représentée sur l'image.

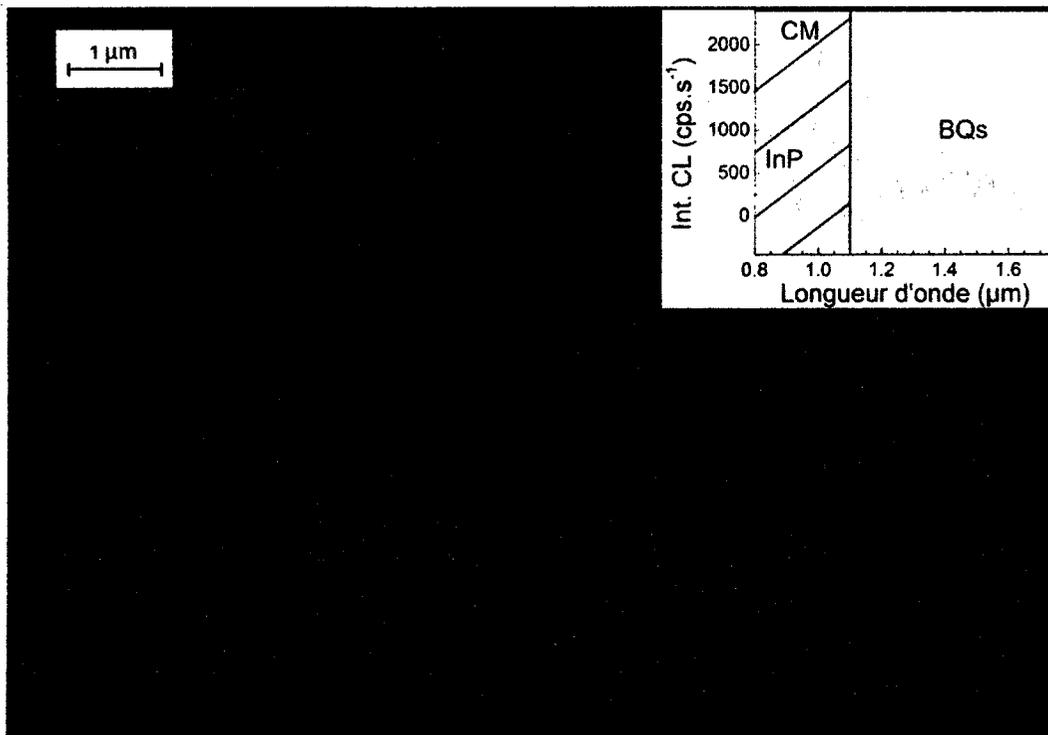


Figure 4.5. Cartographie de CL d'un échantillon de boîtes d'InAs/InP(001) en faible densité obtenue à 1 kV et 300 K en mode panchromatique avec un filtre passe haut coupant à $1,1 \mu\text{m}$. L'intensité de luminescence sur l'image correspond aux boîtes émettant entre $1,1$ et $1,65 \mu\text{m}$ tel que mentionné par le spectre de CL en insert.

Cette image de CL a été réalisée avec un faisceau focalisé sur la surface, une faible tension d'accélération de 1 kV et un courant d'excitation d'environ 3 nA. Toutes les images

sont enregistrées avec une résolution de 1024×768 pixels et une vitesse de balayage d'environ 20 s par image quel que soit le grossissement. L'intensité sur chaque pixel correspond à l'intensité intégrée de la lumière détectée pendant le temps de passage du faisceau par pixel ($\sim 26 \mu\text{s}$) moyennée sur plusieurs balayages par ligne, généralement 10. La durée typique d'acquisition d'une image dans ces conditions est d'environ 3,5 min. Chaque pixel est codé sur 256 niveaux d'intensité, soit 8 bits. A cause d'un manque de sensibilité de détection, l'acquisition des spectres a été faite avec un faisceau d'électrons accélérés à une énergie de 5 keV, focalisé à la surface et balayant de grandes zones ($100 \times 75 \mu\text{m}^2$) à la vitesse de 330 ms/image afin de maximiser le signal. Le temps d'intégration du signal à chaque longueur d'onde est de 2 secondes pour des questions de rapport signal sur bruit. Dans ces conditions, la durée typique d'acquisition d'un spectre est d'environ 17 min ce qui est plutôt long et dommageable pour l'échantillon.

Corrélation boîtes/taches

On peut voir sur l'image des taches lumineuses ponctuelles de forme circulaire que l'on associe à l'émission de boîtes uniques. Cette corrélation a été confirmée tout d'abord de manière quantitative par une bonne correspondance des valeurs de la densité surfacique des spots estimée à $9,3 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ sur cette image avec celle des boîtes, $1,5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$, obtenues par des mesures AFM sur un échantillon non capé cru dans des conditions identiques. Cette petite différence est expliquée par des fluctuations locales de densité mais surtout par le fait que la détection du PM est limitée à 1650 nm alors que les boîtes émettent jusqu'à 1900 nm, d'après un spectre de PL effectué avec un détecteur plus étendu. Un certain nombre de boîtes les plus grosses en taille, ne sont donc pas sondées et observables sur l'image.

Une autre méthode, plus qualitative consiste à comparer la distribution spatiale de luminescence de la CM et des boîtes afin d'observer des complémentarités et tirer des corrélations. En effet, les boîtes sont considérées idéalement comme des pièges efficaces où les porteurs sont complètement localisés et où ils se recombinent de manière radiative. Par conséquent, on ne devrait pas voir d'émission de la CM, là où les boîtes se trouvent. La Figure 4.6(a) montre des images de CL de la CM en mode monochromatique à 980 nm et des boîtes en mode panchromatique. Elles ont été réalisées à 5 K pour obtenir suffisamment de signal de la CM en mode monochromatique. Les deux images sont obtenues en sondant la même zone avec des conditions expérimentales identiques. En comparant ces images, on remarque tout d'abord que celle de la CM est très différente de celle associée à l'émission des

boîtes au niveau de la localisation spatiale de la luminescence. La distribution des taches claires et sombres varie fortement entre l'image de la CM et celles des boîtes. Afin de mieux mettre en évidence une corrélation spatiale, nous avons utilisé le logiciel de traitement d'image: ImageJ⁵.

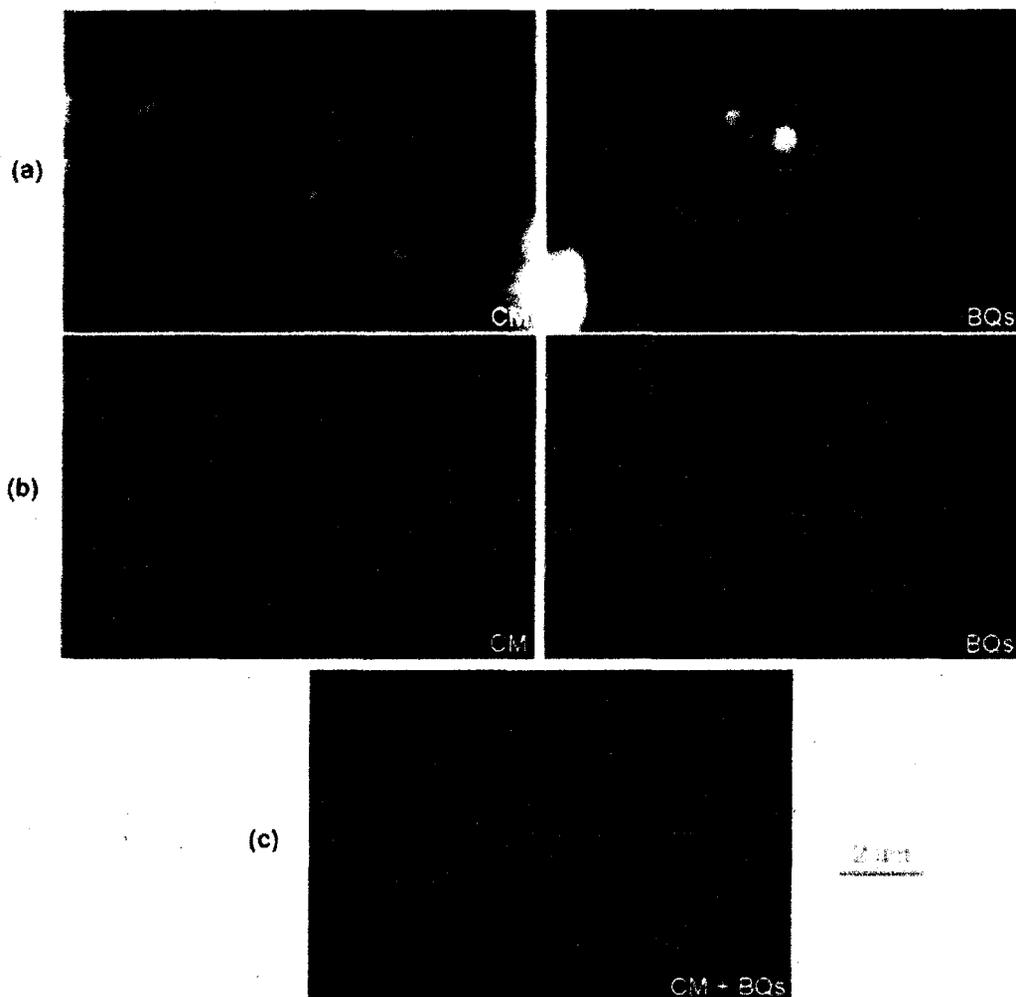


Figure 4.6. (a) Images CL de la couche de mouillage (CM) à 980 nm (fentes 20/40 μm), et de toutes les boîtes détectables en mode panchromatique + filtre, obtenues à 5K. (b) Ces mêmes images colorisées en bleu et rouge respectivement avec un contraste rehaussé afin de mieux distinguer les zones luminescentes. (c) Superposition des images de la CM et des boîtes montrant des anti-corrélations spatiales.

⁵ Logiciel libre, disponible gratuitement en téléchargement : <http://www.rsweb.nih.gov/ij/download.html>

Il permet entre autres d'effectuer des ajustements de contraste, de brillance et couleur sur chaque image (Figure 4.6(b)) ainsi que de superposer plusieurs images (Figure 4.6(c)). Le but est de bien identifier toutes les régions luminescentes en les rendant bien distinctes, ensuite de les superposer puis de comparer. La superposition des deux images met en évidence une relation de complémentarité entre la CM et les boîtes pour la plupart des endroits. Certaines taches claires, notamment les plus grosses dans l'image boîtes, sont sombres dans l'image CM et vice versa. On peut expliquer cette anti-corrélation par une bonne efficacité de capture des paires électron-trou par les boîtes qui ne laisse ainsi pas le temps aux porteurs de se recombiner de manière radiative dans la CM sous jacente. Inversement, les endroits où la luminescence sur la CM est importante correspondent à ceux où il n'y pas de boîtes. Néanmoins, quelques taches claires de la CM et des boîtes se superposent montrant clairement une compétition entre ces deux voix de relaxation des porteurs. L'efficacité radiative dans la CM est très bonne à basse température. Enfin, on remarque un certain nombre de zones sombres à la fois dans la CM et les boîtes. Plusieurs raisons peuvent les expliquer. Tout d'abord, comme évoqué précédemment, les plus grosses boîtes ne sont pas observables sur l'image faute de limite de détection. Deuxièmement, la couche de mouillage n'est pas uniforme en taille (fluctuations de monocouche), en composition chimique (interdiffusion As/P) et en champ de contrainte au niveau locale même si au niveau macroscopique elle apparaît homogène [Warwick 92, Gustafsson 94]. Ces moindres variations se répercutent sur la structure électronique et le confinement des porteurs dans la couche de mouillage et ainsi sur l'émission de lumière au niveau microscopique.

Taille et brillance des taches

On constate aussi que la taille et l'intensité des taches sont différentes d'une boîte à l'autre. La taille typique est d'environ 700 nm de diamètre mais certaines font plusieurs micromètres de large et sont très intenses. Ces grosses taches s'expliquent facilement par la convolution d'émission de plusieurs boîtes trop proches pour être résolues spatialement puisque les images de CL sont enregistrées en mode panchromatique. Pour les autres, l'explication est plus complexe étant donné que l'intensité sur les images de CL dépend de nombreux facteurs [Yacobi 90, Runge 95]. Dans notre cas, ces facteurs sont le taux de capture des porteurs par la boîte, la densité de porteurs injectés par boîte, l'efficacité de recombinaison radiative de chaque boîte, l'efficacité d'extraction des photons de la structure et enfin l'efficacité du système de détection. Cependant, les images de CL réalisées en fonction de la température et à faible injection (cf. sous section 4.2.6) montrent que les

fluctuations de taille et d'intensité sont liées au transport des porteurs avant capture par les boîtes c'est-à-dire dans la barrière d'InP et la CM d'InAs. La taille des taches reflète donc les propriétés locales de transport autour d'une boîte. La longueur de diffusion des porteurs avant capture par une boîte peut être ainsi déduite et donner des informations sur les origines et les possibles mécanismes de diffusion des porteurs.

4.2.4 Détermination de la longueur de diffusion des porteurs avant capture par une boîte quantique unique

Principe de la mesure

A partir des cartographies en intensité de CL, on peut entreprendre de mesurer la longueur de diffusion des porteurs avant capture par une boîte unique. Le principe de la mesure est illustré par la Figure 4.7 et énoncé ci-dessous.

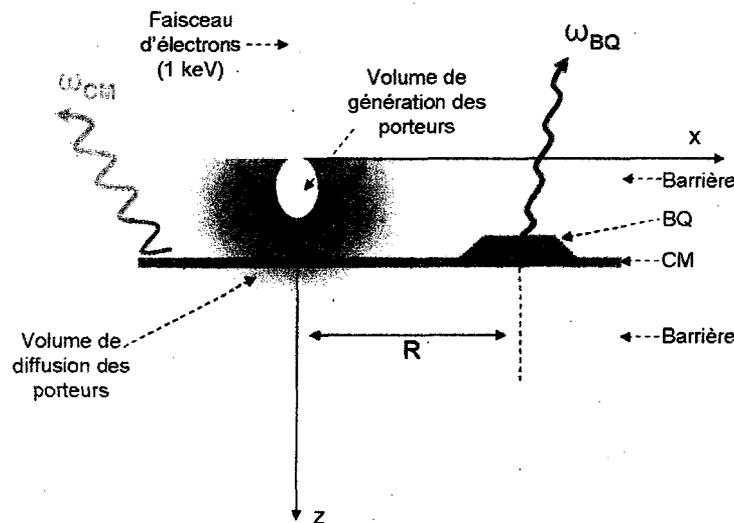


Figure 4.7. Représentation schématique de la mesure de longueur de diffusion des porteurs par une boîte unique.

Le faisceau d'électrons de faible énergie (1 keV) est focalisé à la surface. Il crée des paires électron-trou en dessous du point d'impact dans un volume restreint de la barrière. La plupart de ces porteurs relaxent dans la CM assez rapidement, de l'ordre de la picoseconde [Siegert 05] puis diffusent dans celle-ci [Araujo 94] avant finalement d'être capturés dans la boîte où finalement ils peuvent se recombiner et émettre de la lumière. Les autres porteurs sont soit capturés par les défauts de surface proches du point d'impact du faisceau

[Warwick 91], soit se recombinent dans la barrière ou la CM. Ces différents mécanismes de transport dans la structure à boîtes sont symbolisés sur le schéma par les flèches vertes. Dans ces conditions, la diffusion des porteurs en excès a lieu principalement dans la CM lorsque le faisceau balayant la surface est loin de la boîte. Si on suppose que l'intensité d'émission est proportionnelle à la densité de porteurs capturés dans la boîte, le profil d'intensité de CL d'une boîte : $I(R)$ avec R la distance séparant le faisceau de la boîte, permet de déterminer la longueur de diffusion latérale des porteurs en excès. La boîte unique est utilisée ici comme un détecteur mesurant la concentration de porteurs qui ont diffusé de leur point de génération jusqu'à leur capture. On mesure donc la longueur de diffusion des porteurs en excès avant capture par une boîte. Cette méthode donne ainsi accès à une valeur locale de longueur de diffusion près d'une boîte.

Formulation du modèle de diffusion

La Figure 4.8 montre une image de CL d'une boîte unique à température ambiante prise à

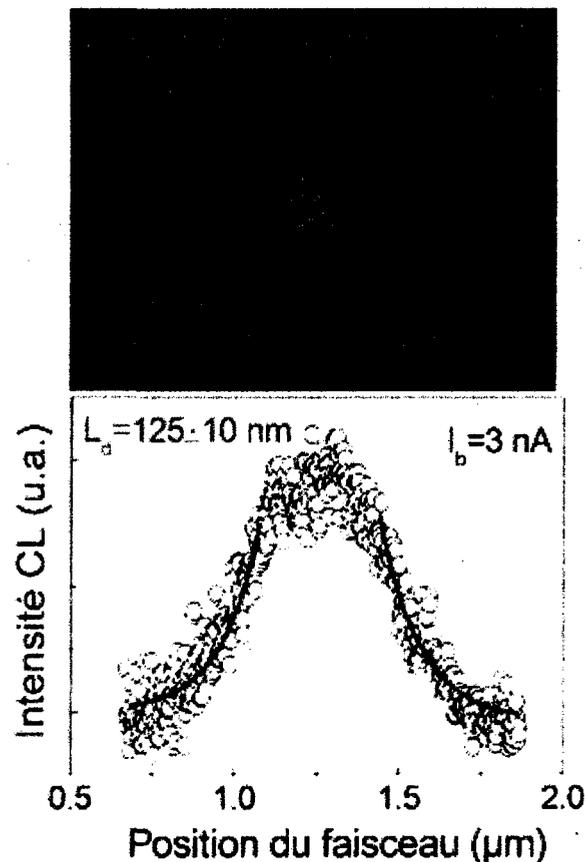


Figure 4.8. (a) Image CL d'une boîte unique en mode panchromatique à 1 keV, 3 nA, 300K . La zone balayée fait environ $1,6 \times 1,2 \mu\text{m}^2$. (b) Profil d'intensité suivant [100] lissé par la fonction en $1/\text{csch}(R/L_d)$ qui permet d'extraire L_d .

plus fort grossissement dans les mêmes conditions expérimentales que précédemment ($E_b=1\text{keV}$, $I_b \sim 3 \text{ nA}$, $T = 300 \text{ K}$). L'image correspond à une surface d'environ $1,6 \mu\text{m}$ de longueur et $1,2 \mu\text{m}$ de large. On y voit une tache brillante relativement isotrope dont l'intensité diminue progressivement à mesure que l'on s'éloigne du centre. Sa taille, beaucoup plus grosse que la dimension de la boîte est directement reliée à la longueur de diffusion des porteurs. A l'aide d'un logiciel de traitement d'image, on peut extraire le profil en intensité au dessus de la boîte suivant une direction quelconque. La Figure 4.8 représente celui suivant $[100]$ moyenné sur huit lignes.

Lorsque le faisceau balaie au-dessus de la boîte, le signal de CL est pratiquement constant puisque les porteurs sont capturés efficacement depuis la barrière et saturent les états d'énergie confinés de la boîte. Dans cette région d'environ 100 nm de rayon depuis le centre de la boîte, la relation entre l'intensité d'émission et la densité de porteurs n'est plus linéaire et donc pas exploitable pour une mesure. Par contre, lorsque le faisceau s'éloigne de la boîte, l'intensité de CL décroît puisque une partie des porteurs en excès se recombinent dans la CM. La densité locale des électrons et trous est obtenue par la résolution de l'équation de continuité en régime quasi-stationnaire. Pour un semi-conducteur de type n, elle est donnée par l'équation différentielle du second ordre:

$$D_p \nabla^2 [\Delta p(r)] - \frac{\Delta p(r)}{\tau} + g(r) = 0 \quad (4.2)$$

avec Δp est la densité de porteurs minoritaires en excès, des trous, D_p est le coefficient de diffusion des trous ; τ : le temps de vie des porteurs, et enfin $g(r)$ est le taux de génération.

Si on suppose que les boîtes agissent comme des absorbeurs parfaits, le courant de diffusion sera plus prononcé dans la direction de la boîte la plus proche. Le problème de diffusion peut alors se réduire à 1D pour obtenir la distribution approximée des porteurs du point de génération à $x=0$ jusqu'à la boîte à $x=R$. De plus, à 1 keV , le diamètre du faisceau d'électron est d'environ 3 nm et d'après les simulations Monte-Carlo (chapitre 2), les paires électron-trou sont injectées dans des volumes inférieurs à 10 nm de rayon dans la barrière d'InP. La source peut être ainsi considérée comme quasi-ponctuelle. D'après ces considérations, l'équation (4.2) se réduit sous la forme suivante :

$$\frac{\partial^2 \Delta p(x)}{\partial x^2} - \frac{\Delta p(x)}{L_d^2} = 0, \text{ avec } L_d = \sqrt{D_p \tau} \quad (4.3)$$

En utilisant les conditions frontières :

- A $x=0$, $\Delta p(x=0) = G.\Delta p_0 = G\tau$, la densité de porteurs en excès est égale à la densité de porteurs générés dans la CM
- A $x=R$, $\Delta p(x=R)=0$, tous les porteurs sont capturés par la boîte donc la densité de porteurs dans la CM est nulle

la solution à cette équation différentielle est donnée par :

$$\Delta p(x) = \Delta p_0 \left[\frac{\sinh\left(\frac{R-x}{L_d}\right)}{\sinh\left(\frac{R}{L_d}\right)} \right] \quad (4.4)$$

A $x=R$, l'intensité de CL est proportionnelle à la densité de courant des porteurs capturés par la boîte. On a alors

$$I_{CL}(R) \propto J_p(R) = -qD_p \left. \frac{\delta \Delta p}{\delta x} \right|_R \quad (4.5)$$

Finalement, l'intensité de CL en fonction de la distance séparant le faisceau de la boîte est donnée simplement par

$$I_{CL}(R) \propto \operatorname{csch}\left(\frac{R}{L_p}\right) \quad (4.6)$$

qui est valide tant que R est très grand devant ϕ_p , R_e et r_0 , le rayon de la boîte.

La valeur de L_d est directement extraite du lissage des points expérimentaux par la fonction (4.6). La Figure 4.8(b) présente le résultat d'un lissage, la valeur de longueur de diffusion extraite ainsi que l'erreur commise.

L'analyse des profils d'intensité de CL sur plusieurs taches lumineuses nous donne une mesure directe de la longueur de diffusion effective des porteurs dans la couche de mouillage avant capture par les boîtes. Une valeur moyenne de longueur de diffusion d'environ 120 ± 45 nm a été obtenue à température ambiante sur une quinzaine de profils pris à différentes régions de l'échantillon à 300 K et $I_b=3$ nA.

4.2.5 Influence de la densité d'excitation

Du fait des très faibles volumes d'excitation en CL à basse tension, une forte densité de paires électron-trou est générée proche de la surface pouvant modifier le processus de

diffusion. Un calcul rapide montre qu'un électron primaire d'1 keV génère environ 120 paires électron-trou dans une sphère de 10 nm de rayon en dessous de la surface d'InP. Si on considère un temps de vie totale des porteurs d'environ 1 ns [Gustafsson 98, Mitsui 05] et un courant de sonde de 3 nA, cela correspond à une densité d'excitation énorme de $5.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ bien supérieure à la concentration de porteurs majoritaires dans la barrière d'InP. Dans ces conditions, la technique permet seulement de mesurer des longueurs de diffusion ambipolaires des porteurs, c'est-à-dire les longueurs de diffusion combinées des électrons et trous créés. Dépendamment des conditions d'excitation et du dopage de l'échantillon, la diffusion des porteurs minoritaires pourrait être mesurée. Par exemple, à 5 kV et $I_b = 100 \text{ pA}$, $R_e = 100 \text{ nm}$ et $G = 9,43 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{ns}^{-1}$. En pratique, elle est limitée par la sensibilité de détection du système optique et par la distance inter-boîtes.

La Figure 4.9 présente les valeurs moyennes de longueurs de diffusion en fonction du courant de sonde et du taux de génération de porteurs associé à 300 K. Pour la plus faible injection de porteurs obtenue à 3 kV et $I_b = 0,42 \text{ nA}$, nous avons trouvé une valeur de $300 \pm 50 \text{ nm}$ qui est en accord avec des mesures trouvées sur des puits quantiques par d'autres groupes prises dans des conditions de faibles injections [Gustafsson 95, Walters 01, Troyon 07]. Elle décroît jusqu'à environ $120 \pm 30 \text{ nm}$ puis augmente légèrement pour de plus fortes injections. A plus fort courant d'excitation, les mécanismes Auger favorisent les recombinaisons interbandes (taux proportionnel à $n^2 \cdot p$ ou $n \cdot p^2$) de même que la capture par les boîtes [Morris 99] ;

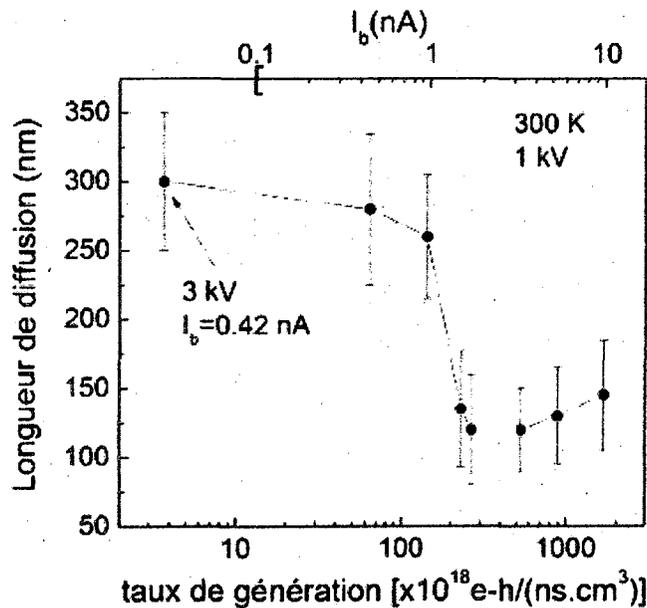


Figure 4.9. Longueur de diffusion en fonction du taux de génération et du courant sonde à 1 kV et 300 K. Une mesure a été faite à 3 kV et 0,42 nA. Les barres d'erreurs correspondent à la déviation standard à la moyenne.

ceci se traduit par une réduction de la longueur de diffusion des porteurs dans la couche de mouillage. Le faible accroissement peut être attribué à une meilleure diffusion des porteurs dans la barrière d'InP à mesure que le remplissage des états dans la CM devient plus important et sature.

A noter que la déviation standard ($\Delta L_a = 50$ nm) est bien plus grande que la déviation standard de la taille latérale des boîtes (environ 15 nm). Cette haute valeur de ΔL_a suggère qu'il existe des inhomogénéités locales de transport de porteurs de charge dans la CM, la plupart résultant des effets de rugosités d'interface, de composition d'alliage $\text{InAs}_x\text{P}_{(1-x)}$ et probablement de contraintes induites par la taille des différentes boîtes dans la CM.

Estimation de la mobilité et du temps de recombinaison Auger

La longueur de diffusion est reliée à la mobilité des porteurs par l'expression suivante :

$$L_d = \sqrt{\frac{k_B T \cdot \mu \cdot \tau}{e}} \quad (4.7)$$

où τ est le temps de vie des porteurs dans la CM en l'absence de boîtes (la recombinaison dans la boîte est prise en compte dans les conditions aux frontières). A partir de mesures de PL résolue en temps réalisées dans des conditions de faible excitation, Raymond et coll. ont déterminé une valeur de τ d'environ 330 ps pour un puits quantique d'InAs ultramince (2 MC) comparable en épaisseur à notre CM [Raymond 00]. Bien que cette couche plus contrainte ait été crue sur du GaAs, on peut considérer que la valeur de τ est du même ordre pour InP. Si on considère cette valeur pour notre mesure de longueur de diffusion obtenue à 300 K, nous obtenons une valeur de mobilité ambipolaire d'environ 110 ± 10 $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. De plus, si on suppose la même mobilité de porteurs à mesure que l'on augmente I_b jusqu'à 3 nA, nous obtenons un temps de recombinaison Auger d'environ 50 ps. Cette valeur est en bon accord aussi bien avec les études théoriques [Uskov 98] qu'expérimentales [Ohnesorge 96].

4.2.6 Influence de la température

Afin d'étudier l'efficacité de capture et le confinement des porteurs dans les boîtes, la longueur de diffusion et la luminescence des boîtes ont été mesurées en fonction de la température. La Figure 4.10 montre, tout d'abord la dépendance en température de la longueur de diffusion des porteurs entre 5 K et 300 K pour $I_b = 3$ nA. Ces résultats ont été obtenus en utilisant le même type d'analyse que précédemment. Des incertitudes importantes indiquées par les barres d'erreurs sont obtenues pour les plus fortes valeurs de L_d . Une erreur

standard de 110 nm est observée à 120 K pour la plus grande longueur de diffusion soit 37 % d'erreur. Cette valeur est supérieure à la variation en taille des boîtes. L'explication vient du fait que la longueur de diffusion devient comparable à la distance moyenne inter-boîtes estimée à 500 nm. La plupart des boîtes ne sont plus résolues spatialement sur les images et l'intensité de chaque pixel ne correspond plus à l'émission d'une seule boîte. La mesure de L_d près d'une boîte unique devient alors difficile à déterminer. Heureusement, la distribution surfacique des boîtes étant non homogène, quelques boîtes sont isolées des autres par des distances bien supérieures au micromètre. Les mesures ont donc été faites sur ces quelques taches lumineuses bien définies et symétriques.

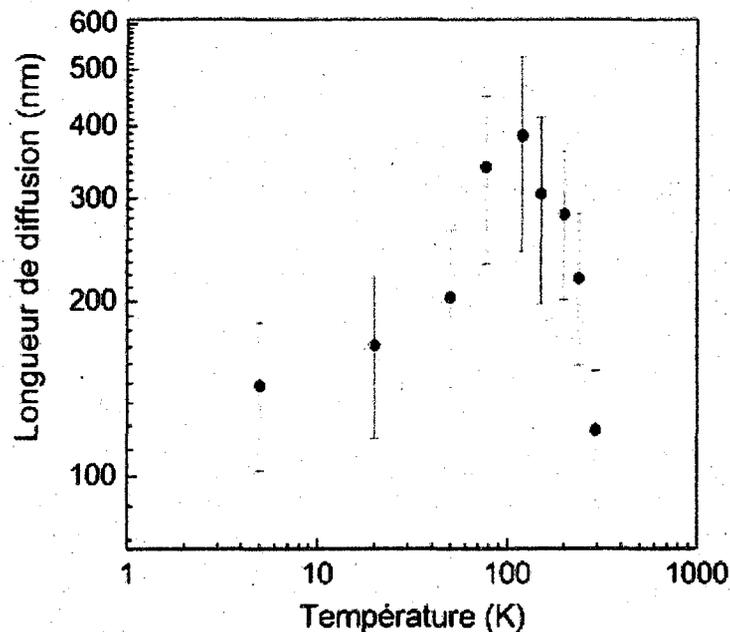


Figure 4.10. Longueurs de diffusion des porteurs L_d avant capture par les boîtes en fonction de la température. Le graphique donne la valeur moyenne sur plusieurs mesures de boîtes ainsi que la déviation standard représenté par les barres d'erreurs.

La longueur de diffusion augmente en partant de 5 K jusqu'à environ 120 K puis décroît pour de plus fortes températures. Des valeurs moyennes de 140 nm à 5 K, 390 nm à 120 K et 120 nm à température ambiante ont été mesurées. Ce comportement de la longueur de diffusion en fonction de la température n'a rien de surprenant puisque la mobilité et le temps de vie des porteurs (trous et électrons) atteint un maximum aux alentours de 100 K dans la plupart des semi-conducteurs III-V [Hillmer 89]. En effet, la longueur de diffusion des porteurs est définie par $L_d = \sqrt{D \cdot \tau}$ où D est le coefficient de diffusion et τ est le temps de recombinaison des porteurs dans la CM. Ce coefficient de diffusion est relié à la mobilité μ

des porteurs par la relation d'Einstein donnant $D = \mu(k_B T/e)$ avec k_B la constante de Boltzmann, T la température du cristal et e la charge de l'électron. La mobilité des porteurs, paramètre intrinsèque au matériau est exprimée par $\mu = e\tau_v/m^*$, où m^* est la masse effective de conduction du type de porteurs et τ_v est le temps de vol moyen entre chaque collision subie par les porteurs qui dépend de la température. En conséquence, la dépendance en température de la longueur de diffusion des porteurs peut être vu en terme de dépendance en température de la mobilité des porteurs et du temps de vie telle que :

$$L_d = \sqrt{\frac{k_B T}{e} \mu(T) \tau(T)} \quad (4.8)$$

Puisque la mobilité des porteurs et le temps de vie sont supposés augmenter avec la température à basses températures puis de diminuer à plus hautes températures, la dépendance en température de la longueur de diffusion est supposée se comporter de la même manière. Elle a été observée à de nombreuses reprises dans des puits quantiques de différents systèmes [Chao 99, Lobo 99, Jahn 06]. Nos mesures sont donc en bon accord qualitatif avec la théorie. Par contre, la dépendance en température attendue de L_d n'a pas été observée. Les porteurs en excès subissent différentes sortes de collisions avec les atomes du réseau (phonons), les impuretés ionisées, les défauts cristallins et avec d'autres porteurs du matériau dans lequel ils diffusent. Toutes ces interactions altèrent leur mouvement dans le cristal. Les mécanismes sont également dépendants de la température. Dans les semi-conducteurs massifs, il est bien connu que la dépendance en température de la mobilité des porteurs est dominée par les collisions avec les impuretés ionisées en $T^{3/2}$ à basse température (5 à 100 K) et par les collisions avec les phonons en $T^{-3/2}$ (de 100 à 300 K) [Streetman 99]. Le temps de vie est censé être presque constant à basse température ($T < 120$ K) et décroître au-dessus de 120 K à cause de l'activation thermique des porteurs et leur recombinaison dans la barrière [Matsusue 87]. Selon l'équation (4.6), on devrait obtenir une dépendance de L_d en $T^{-1/4}$ à basse température et $T^{5/4}$ à plus haute température. Mais ce n'est pas ce que l'on observe. De plus, la diffusion augmente seulement d'un facteur 3 entre 5 et 120 K alors qu'une augmentation de 42 $((100/5)^{5/4})$ était attendue si la diffusion des porteurs par des impuretés ionisées dominait la mobilité dans cette gamme de température. Ces résultats montrent donc clairement que d'autres mécanismes contribuent significativement à limiter la mobilité des porteurs dans la couche de mouillage ultramince. On pense bien évidemment aux rugosités d'interface et aux fluctuations de composition d'alliage mais aussi au champ de contraintes autour de la boîte.

Des mesures complémentaires d'intensité de CL ont été réalisées sur cet échantillon en fonction de la température. La Figure 4.11 présente la dépendance en température des spectres de CL et d'intensité intégrée normalisée de la CM et des boîtes. On voit que l'intensité des boîtes augmente de 5 à 120 K puis décroît jusqu'à 300 K. Elle atteint son maximum autour de 120 K comme pour la longueur de diffusion. Pour la CM, l'intensité augmente au fur et à mesure que la température décroît. L'émission de la CM est beaucoup plus intense que celles des boîtes à basses températures et obéit à une loi d'Arrhenius, typique du comportement d'un puits quantique. L'énergie d'activation extraite de ce lissage (Figure 4.11(d)) est de 65 meV correspond à l'énergie de confinement moyenne des porteurs dans la CM.

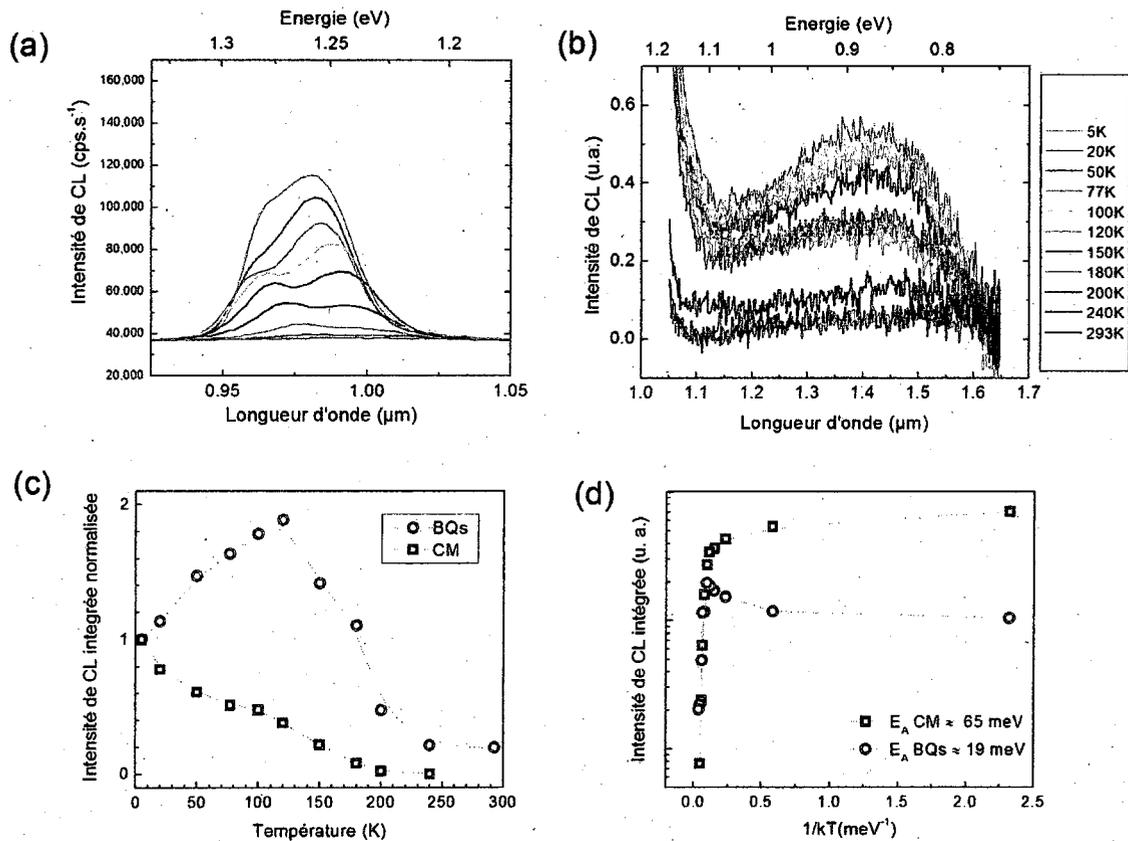


Figure 4.11. Spectres de CL de la couche de mouillage (a) et des boîtes (b) du même échantillon en fonction de la température. (c) Dépendance en température de l'intensité intégrée normalisée de la CM et des boîtes. (d) Evolution en température de type Arrhenius de l'intensité des boîtes et de la CM.

Cette corrélation d'émission des boîtes et de la CM en fonction de la température a déjà été observée précédemment par Lobo et coll. sur un échantillon de boîtes auto-assemblées d'InAs/GaAs similaire au notre en densité [Lobo 99]. Dans le cas d'un échantillon en faible

densité, le transfert des porteurs dans les boîtes se fait majoritairement via la CM [Fafard 94, Leon 98]. L'intensité d'émission des boîtes, proportionnelle au nombre de porteurs capturés est donc directement dépendante des mécanismes de transfert latéral des porteurs dans la CM qui sont fonction de la température. L'augmentation de la longueur de diffusion des porteurs dans la CM lorsque T passe de 5 à 120 K, se traduit par un taux de capture des porteurs plus grand dans les boîtes. Par conséquent, l'intensité des boîtes sur cette gamme de température va en augmentant. Au-delà de 120 K, l'émission thermique de porteurs par les boîtes devient le mécanisme dominant. Et l'intensité des boîtes suit approximativement une décroissance exponentielle jusqu'à la température ambiante. Une énergie d'activation de 19 ± 3 meV a été extraite pour les boîtes (Figure 4.11(d)).

Ces observations confirment que la longueur de diffusion dans la CM est inférieure à la distance moyenne inter-boîtes et que les valeurs estimées par notre modèle sont du bon ordre de grandeur.

4.2.7 Influence du dopage

Afin d'étudier l'influence du dopage sur la diffusion des porteurs, une étude sur un échantillon dopé aux électrons (type n+) a également été effectuée. Ce type d'étude est très important du point de vue applicatif car l'injection de porteurs dans les boîtes se fait par l'intermédiaire de contacts sur une structure dopée de type jonction p-n. La structure a été fortement dopée aux électrons par 10^{19} cm⁻³ d'atomes de silicium lors des étapes de croissance de la couche tampon et du cap d'InP (Figure 4.12). Le substrat d'InP nominal est orienté suivant (001) et dopé à hauteur de 10^{19} cm⁻³ par des atomes de soufre. Une fine couche d'InP de 10 nm d'épaisseur a été déposée au dessus des îlots.

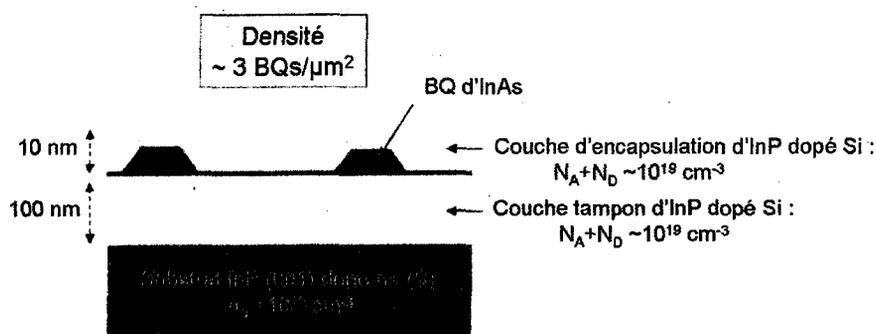


Figure 4.12. Schéma de la structure à boîte dopée aux électrons préparée par MBE.

La Figure 4.13 montre une image de CL à température ambiante de toutes les boîtes émettant entre 1,1 et 1,65 μm . Elle a été réalisée dans les mêmes conditions expérimentales que les précédentes en utilisant toujours un filtre passe-haut à 1,1 μm pour couper l'émission de la couche de mouillage (insert). La densité des taches est encore une fois de l'ordre de celle de boîtes ($\sim 3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$) ce qui nous permet d'associer chaque tache lumineuse résolue spatialement à l'émission d'une boîte unique. Par contre, les taches lumineuses ne sont plus isotropes mais étirées suivant la direction $[1\bar{1}0]$. Ce phénomène a été confirmé sur différentes zones de l'échantillon. Les longueurs de diffusion de plusieurs taches ont été extraites à partir de profils suivant les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ pris sur une vingtaine de boîtes.

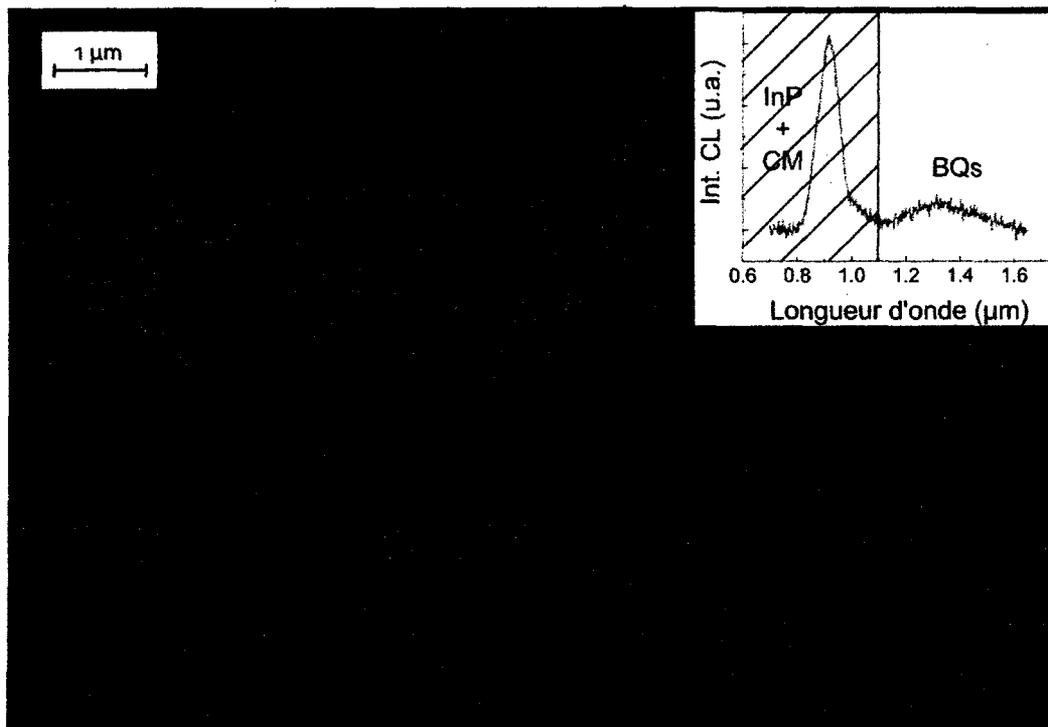


Figure 4.13. Image CL de boîtes d'InAs/InP en faible densité sur un échantillon dopé aux électrons ($\text{Si} : N_A + N_D = 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) obtenue à 1 kV et 293 K en mode panchromatique. Les taches sont étirées suivant la direction $[1\bar{1}0]$ indiquant une anisotropie de diffusion. En insert, le spectre de CL associé où l'émission de la couche de mouillage (CM) est bloquée par un filtre passe haut coupant à 1,1 μm .

La Figure 4.14 présente un exemple typique de mesures. Une longueur moyenne de diffusion de porteurs de $100 \pm 25 \text{ nm}$ suivant $[110]$ et $300 \pm 100 \text{ nm}$ suivant $[1\bar{1}0]$ ont été mesurées à température ambiante. Le ratio $[1\bar{1}0]/[110]$ varie de 1,5 à 3 avec une valeur moyenne de 2,2. Les mesures suivant $[110]$ sont du même ordre de grandeur que celles précédemment trouvées sur un échantillon non dopé. Par contre, elles augmentent de plus du

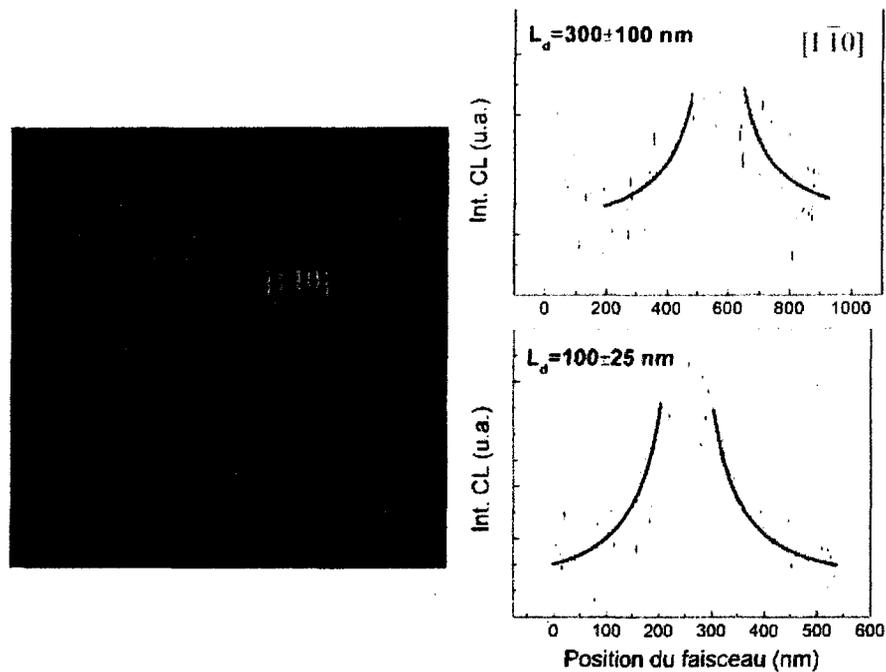


Figure 4.14. Image de CL sur une boîte isolée (à gauche) et profils associés suivant $[1\bar{1}0]$ et $[110]$ (à droite). Les longueurs de diffusion sont évaluées suivant les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$.

double suivant $[1\bar{1}0]$. Ceci montre que les porteurs diffusent plus rapidement suivant cette direction.

Nous avons procédé à plusieurs vérifications afin de savoir si ce comportement est réel ou bien lié à de mauvaises conditions d'acquisition. Il s'est avéré que l'origine de cette élongation n'est pas imputable à un problème d'astigmatisme du faisceau, d'effet de charges en surface ou encore à un effet de balayage du faisceau. La focalisation du faisceau d'électrons à la surface a été faite soigneusement et l'anisotropie persiste quelle que soit l'orientation du balayage. Elle ne semble pas non plus attribuable à la formation involontaire de bâtonnets d'InAs allongés suivant $[1\bar{1}0]$ qui pourrait expliquer l'étirement. Deux arguments viennent étayer cette remarque. Premièrement, la Figure 4.13 présente des clichés de diffraction RHEED pris après 4 min de recuit de la couche d'InAs sous As à 510°C juste avant le dépôt du cap d'InP. Les clichés suivant les azimuts $[1\bar{1}0]$ et $[110]$ montrent clairement des taches de diffraction (taches de Bragg) indiquant la formation de structures 3D à la surface. De plus, la diffraction des facettes caractéristiques de la formation des bâtonnets quantiques est à peine visible suivant la direction $[1\bar{1}0]$ ce qui atteste le caractère plus isotrope des îlots formés. Néanmoins, une étude en TEM serait souhaitable afin de lever toute ambiguïté sur la forme des îlots d'InAs et leur effet sur le transport des porteurs.

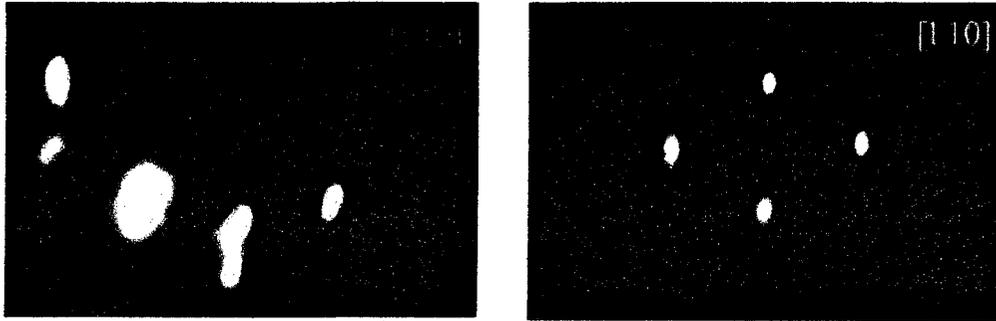


Figure 4.15. Images RHEED suivant $[1\bar{1}0]$ et $[110]$ de la surface d'InAs après 4 min de recuit sous As à 510°C . Les taches lumineuse indiquent clairement la formation de boîtes.

Deuxièmement, Popescu et coll. ont aussi observé une anisotropie de transport des porteurs dans une structure contenant des bâtonnets quantiques d'InAs/InP(001) allongés suivant $[1\bar{1}0]$ et en grande densité [Popescu 06]. Cependant, contrairement à ce que l'on aurait pu s'attendre, une réduction de 20% de la longueur de diffusion a été mesurée suivant la direction allongée $[1\bar{1}0]$ par rapport à la direction perpendiculaire $[110]$. Dans notre cas, l'anisotropie de diffusion suivant $[1\bar{1}0]$ ne semble pas être liée directement à la forme des nanostructures. Il est cependant difficile d'attribuer ce phénomène à un effet du dopage sur le transport des porteurs dans la CM car la longueur de diffusion est censée diminuer lorsque la concentration d'impuretés augmente. Ici, elle ne diminue pas mais au contraire elle augmente suivant $[1\bar{1}0]$. L'origine semble plus complexe et plusieurs hypothèses sont évoquées. D'après Ercolani et coll., l'anisotropie pourrait être expliquée par une relaxation asymétrique de la déformation, une diffusion par rugosité d'interface ou encore des variations spatiales anisotropiques de déformations résiduelles [Ercolani 08]. On peut aussi penser à un recouvrement partiel des boîtes par la fine couche d'InP qui est connue pour se déposer suivant $[1\bar{1}0]$. Une étude plus approfondie en fonction de l'épaisseur, de la concentration et du type de dopant serait nécessaire afin d'en clarifier l'origine.

4.2.8 Bilan

En résumé, nous avons étudié le transport de charges en excès autour de boîtes uniques d'InAs/InP(001) à partir d'images de CL à basse tension d'accélération. Une méthode permettant la mesure directe de la longueur de diffusion des porteurs dans la CM avant capture par une boîte a été proposée. Une longueur de diffusion ambipolaire de 300 nm à température ambiante est mesurée dans la CM pour de faibles conditions d'injection. Cette valeur est réduite à 120 nm à plus fort courant d'excitation par des processus Auger de

relaxation des porteurs. Une mobilité ambipolaire de $110 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$ et un temps de recombinaison Auger d'environ 50 ps ont été estimés à partir de la valeur de L_d à 300 K. La longueur de diffusion augmente d'un facteur 3 à 120 K en accord avec le comportement de la mobilité des trous dans un puits quantique en fonction de la température. La dépendance en température est difficile à modéliser mais nos résultats donnent une idée des mécanismes de diffusion possibles dans le système InAs/InP. Enfin, une anisotropie de diffusion des porteurs a été observée sur un échantillon dopé aux électrons mais son origine n'est pas clairement corrélée et identifiée.

Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse a été consacré à la croissance auto-assemblée de boîtes quantiques diluées d'InAs/InP(001) et à l'étude de quelques propriétés optoélectroniques individuelles. L'objectif était de mettre au point les conditions de croissance pour isoler spatialement et ensuite insérer de telles boîtes dans une cavité optique. Des applications de sources de photons uniques à la longueur d'onde de 1,55 μm accessible avec le système InAs/InP, étaient visées.

L'obtention d'îlots de forme isotrope et en faible densité n'apparaissait pas au début de ce travail comme un objectif facile à atteindre, à la vue des bâtonnets d'InAs en très forte densité classiquement produits sur InP(001) par MBE à sources solides. L'observation d'une transition de forme des bâtonnets vers des boîtes au cours de leur refroidissement sous un flux d'arsenic, a été le point de départ de ce travail.

Le travail a donc d'abord porté sur la compréhension des mécanismes de croissance qui pouvaient conduire à un changement de forme bâtonnets vers boîtes. Nous avons ainsi mis en évidence l'importance des énergies de surface, via les reconstructions de surface, de l'InAs dans ce changement de forme. Ces reconstructions de surface dépendent des conditions de croissance, principalement la température de croissance et la pression d'arsenic. Nous avons ainsi observé que les bâtonnets allongés suivant $[1\bar{1}0]$ sont formés lorsque les conditions de croissance mènent à une couverture d'arsenic compatible avec une reconstruction $\beta(2\times 4)$, typiquement pour une gamme de température 470-510°C et une pression d'arsenic dans la gamme $1-5\times 10^{-6}$ torr. Au contraire, des îlots de forme isotrope sont formés avec une reconstruction (2×1) observée à plus forte température et aussi une plus forte pression d'arsenic. En conséquence, des bâtonnets et surtout des boîtes peuvent être formés directement selon le mode de croissance Stranski-Krastanov par MBE à sources solides. Des traitements post-croissance appliqués aux bâtonnets peuvent induire une transition de forme menant à la formation de boîtes plus stables, dès lors que ces traitements conduisent à sortir du domaine d'observation de la reconstruction de surface $\beta(2\times 4)$, soit par recuit à la température de croissance si la reconstruction est de type $\alpha(2\times 4)$, typiquement pour une température de 515-525°C, soit par descente en température en dessous de 470°C, condition avec laquelle la reconstruction devient alors une $\gamma(2\times 4)$ voir une (2×3) .

La diminution de l'épaisseur d'InAs déposée est ensuite l'autre condition qui a permis de réduire la densité des boîtes d'InAs jusqu'à des valeurs aussi faibles que quelques 10^8 cm^{-2} .

L'exploitation de la procédure d'encapsulation des îlots par la méthode dite de « double cap », bien adaptée à nos îlots qui sont généralement de grandes dimensions, a enfin permis de produire des boîtes émettant autour de $1,55 \mu\text{m}$.

Quelques propriétés de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001) ont ainsi pu être évaluées par des études de micro-photoluminescence et de cathodoluminescence. L'émission de boîtes quantiques uniques d'InAs/InP(001) a été observée autour de $1,55 \mu\text{m}$ à 10 K, validant ainsi nos procédés de fabrication de boîtes diluées. L'analyse en puissance d'excitation a permis la détermination quantitative de propriétés intéressantes, notamment une forte énergie de liaison du biexciton (jusqu'à $5,5 \text{ meV}$) ainsi qu'un grand écart entre le niveau fondamental et le premier niveau excité (jusqu'à 90 meV), suggérant un fort confinement spatial des porteurs. Ces valeurs varient de manière importante en fonction de la forme et de la taille des boîtes. La tendance est à leur augmentation lorsque le diamètre et la hauteur de la boîte sont réduits.

Enfin, nous avons présenté pour la première fois, une méthode directe de la longueur de diffusion des porteurs de charge en excès avant capture par des boîtes quantiques uniques. Des mesures ont été réalisées sur un échantillon de boîtes d'InAs/InP en faible densité émettant autour de $1,5 \mu\text{m}$ par une technique de cathodoluminescence à basse tension d'accélération. Nous avons obtenu des cartographies de CL de boîtes quantiques résolues spatialement qui apparaissent comme des taches lumineuses ponctuelles. L'analyse des profils d'intensité de CL, grâce à un modèle simple que nous avons développé, nous a permis d'extraire la longueur de diffusion des porteurs dans la couche de mouillage avant leur capture par des boîtes quantiques uniques. Cette technique à haute résolution spatiale présente un intérêt fondamental à la fois pour la spectroscopie et pour l'étude du transport de charges autour d'objets de taille nanométrique comme les boîtes quantiques.

Les perspectives à ce travail sont en effet d'exploiter ce savoir-faire sur la production de boîtes quantiques diluées dans le système InAs/InP(001) pour les insérer adéquatement dans une cavité d'un cristal photonique pour aboutir à un couplage optimal du mode optique de la cavité et du mode excitonique de la boîte quantique. Un travail a ainsi été engagé en collaboration avec l'Université de Keio au Japon pour permettre de localiser spatialement de

telles boîtes quantiques par SNOM à basse température, sur un échantillon sur lequel des repères ont été au préalable fabriqués pour pouvoir ensuite aligner la lithographie électronique des cristaux photoniques. Ces technologies pourront alors servir plus globalement un des projets de l'INL qui consistera en la réalisation de sources de photons indiscernables à 1,55 μm pour l'optique intégrée.

Références

- [Akahane 02] Kouichi Akahane, Naoki Ohtani, Yoshitaka Okada & Mitsuo Kawabe. *Fabrication of ultra-high density InAs-stacked quantum dots by strain-controlled growth on InP(3 1 1)B substrate*. J. Cryst. Growth, vol. 245, no. 1-2, pages 31–36, November 2002.
- [Alen 06] B. Alen, D. Fuster, Y. Gonzalez, L. Gonzalez & J. Martinez-Pastor. *InAs/InP single quantum wire formation and emission at 1.5 μm* . Applied Physics Letters, vol. 89, no. 23, page 233126, 2006.
- [Alferov 98] Zh. Alferov. *The history and future of semiconductor heterostructures*. Semiconductors, vol. 32, no. 1, pages 1–14, January 1998.
- [Alloing 05] B. Alloing, C. Zinoni, V. Zwiller, L. H. Li, C. Monat, M. Gobet, G. Buchs, A. Fiore, E. Pelucchi & E. Kapon. *Growth and characterization of single quantum dots emitting at 1300 nm*. Appl. Phys. Lett., vol. 86, no. 10, pages 101908–3, March 2005.
- [Altug 06] Hatice Altug, Dirk Englund & Jelena Vuckovic. *Ultrafast photonic crystal nanocavity laser*. Nat Phys, vol. 2, no. 7, pages 484–488, July 2006.
- [Arakawa 82] Y. Arakawa & H. Sakaki. *Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*. Appl. Phys. Lett., vol. 40, no. 11, pages 939–941, 1982.
- [Araujo 93] D. Araujo, G. Oelgart, J.-D. Ganiere & F. K. Reinhart. *Lateral transport in GaAs/AlGaAs quantum wells*. Applied Physics Letters, vol. 62, no. 23, pages 2992–2994, 1993.
- [Araujo 94] D. Araujo, G. Oelgart, J.-D. Ganiere & F. K. Reinhart. *Comparison of the lateral carrier transport between a GaAs single quantum well and the AlGaAs barrier during cathodoluminescence excitation*. Journal of Applied Physics, vol. 76, no. 1, pages 342–346, 1994.
- [Arthur 68] J. R. Arthur. *Interaction of Ga and As₂ Molecular Beams with GaAs Surfaces*. Journal of Applied Physics, vol. 39, no. 8, pages 4032–4034, 1968.
- [Ashoori 96] R. C. Ashoori. *Electrons in artificial atoms*. Nature, vol. 379, no. 6564, pages 413–419, February 1996.
- [Aspnes 94] D. E. Aspnes, M. C. Tamargo, M. J. S. P. Brasil, R. E. Nahory & S. A. Schwarz. *As capture and the growth of ultrathin InAs layers on InP*. The 40th National Symposium of the American Vacuum Society, vol. 12, no. 4, pages 1180–1185, 1994.
- [Awirothananon 08] S. Awirothananon, S. Raymond, S. Studenikin, M. Vachon, W. Render, A. Sachrajda, X. Wu, A. Babinski, M. Potemski, S. Fafard, S. J. Cheng, M. Korkusinski & P. Hawrylak. *Single-exciton energy shell structure in InAs/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 78, no. 23, pages 235313–8, December 2008.

- [Badolato 05] Antonio Badolato, Kevin Hennessy, Mete Atatüre, Jan Dreiser, Evelyn Hu, Pierre M. Petroff & Atac Imamoglu. *Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes*. Science, vol. 308, no. 5725, pages 1158–1161, 2005.
- [Bauer 92] Günther Bauer & Gunther Springholz. *Molecular beam epitaxy—aspects and applications*. Vacuum, vol. 43, no. 5-7, pages 357 – 365, 1992.
- [Benoit 06] J. M. Benoit, L. Le Gratiet, G. Beaudoin, A. Michon, G. Saint-Girons, R. Kuszelewicz & I. Sagnes. *Nanoepitaxy of InAs/InP quantum dots by metalorganic vapor phase epitaxy for 1.55 μm emitters*. Appl. Phys. Lett., no. 4, pages 041113–3, January 2006.
- [Benson 00] O. Benson, C. Santori, M. Pelton & Y. Yamamoto. *Regulated and entangled photons from a single quantum dot*. Phys. Rev. Lett., vol. 84, pages 2513–2516, 2000.
- [Besombes 01] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal & H. Mariette. *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*. Phys. Rev. B, vol. 63, pages 155307–155307, 2001.
- [Bierwagen 05] O. Bierwagen and W. T. Masselink. *Self-organized growth of InAs quantum wires and dots on InP(001): The role of vicinal substrates*. Appl. Phys. Lett., no. 86, pages 113110–3, March 2005.
- [Bimberg 99] Dieter Bimberg, Marius Grundmann & Nikolai Ledentsov. *Quantum dot heterostructures*. John Wiley & Sons, 1999. ISBN: 0471973882.
- [Brault 98] J. Brault, M. Gendry, G. Grenet, G. Hollinger, Y. Desieres & T. Benyattou. *Role of buffer surface morphology and alloying effects on the properties of InAs nanostructures grown on InP(001)*. Appl. Phys. Lett., vol. 73, no. 20, pages 2932–2934, November 1998.
- [Brault 99] J. Brault, M. Gendry, G. Grenet, G. Hollinger, Y. Desieres & T. Benyattou. *Alloying effects in self-assembled InAs/InP dots*. Journal of Crystal Growth, vol. 201-202, pages 1176–1179, May 1999.
- [Brault 00] Julien Brault. *Croissance auto-organisée de fils et boîtes quantiques d'InAs/InP(001) pour composants optoélectroniques*. PhD thesis, Ecole Centrale de Lyon, 2000.
- [Brault 02] J. Brault, M. Gendry, G. Grenet, G. Hollinger, J. Olivares, B. Salem, T. Benyattou & G. Bremond. *Surface effects on shape, self-organization and photoluminescence of InAs islands grown on InAlAs/InP(001)*. J. Appl. Phys., vol. 92, no. 1, pages 506–510, July 2002.
- [Braun 99] Wolfgang Braun. *Applied rheed: Reflection high-energy electron diffraction during crystal growth*, volume 154 of *Springer Tracts in Modern Physics*. Springer Berlin / Heidelberg, 1999.
- [Cade 06] N. I. Cade, H. Gotoh, H. Kamada, H. Nakano, S. Anantathanasarn & R. Notzel. *Optical characteristics of single InAs/InGaAsP/InP(100) quantum dots emitting at 1.55 μm* . Appl. Phys. Lett., vol. 89, no. 18, pages 181113–3, October 2006.

- [Carlsson 98] N. Carlsson, T. Junno, L. Montelius, M. E. Pistol, L. Samuelson & W. Seifert. *Growth of self-assembled InAs and InAs_xP_{1-x} dots on InP by metalorganic vapour phase epitaxy*. J. Cryst. Growth, vol. 191, no. 3, pages 347–356, July 1998.
- [Caroff 05a] P. Caroff, N. Bertru, A. Le Corre, O. Dehaese, T. Rohel, I. Alghoraibi, H. Folliot & S. Loualiche. *Achievement of High Density InAs Quantum Dots on InP(311)B Substrate Emitting at 1.55 Åµm*. Jpn. J. Appl. Phys., Part 2, vol. 44, no. 34, pages L1069–L1071, January 2005.
- [Caroff 05b] P. Caroff, N. Bertru, C. Platz, O. Dehaese, A. Le Corre & S. Loualiche. *Emission wavelength control of InAs quantum dots in a GaInAsP matrix grown on InP(311)B substrates*. J. Cryst. Growth, vol. 273, no. 3-4, pages 357–362, January 2005.
- [Caroff 05c] P. Caroff, C. Paranthoen, C. Platz, O. Dehaese, H. Folliot, N. Bertru, C. Labbe, R. Piron, E. Homeyer, A. Le Corre & S. Loualiche. *High-gain and low-threshold InAs quantum-dot lasers on InP*. Appl. Phys. Lett., vol. 87, no. 24, pages 243107–3, December 2005.
- [Caroff 05d] Philippe Caroff. *Croissance de boîtes quantiques InAs/InP(113)B pour les applications en télécommunications optiques*. PhD thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Rennes, 2005.
- [Celibert 05] V. Celibert, E. Tranvouez, G. Guillot, C. Bru-Chevallier, L. Grenouillet, P. Duvaut, P. Gilet, P. Ballet & A. Million. *MBE growth optimization and optical spectroscopy of InAs/GaAs quantum dots emitting at 1.3 µm in single and stacked layers*. Journal of Crystal Growth, vol. 275, no. 1-2, pages e2313 – e2319, 2005. Proceedings of the 14th International Conference on Crystal Growth and the 12th International Conference on Vapor Growth and Epitaxy.
- [Chao 99] L.-L. Chao, G. S. Cargill III, E. Snoeks, T. Marshall, J. Petruzzello & M. Pashley. *Diffusion lengths of excited carriers in Cd_xZn_{1-x}Se quantum wells*. Appl. Phys. Lett., vol. 74, no. 5, pages 741–743, 1999.
- [Chauvin 05] N. Chauvin, B. Salem, G. Bremond, C. Bru-Chevallier, G. Guillot, C. Monat, P. Regreny, M. Gendry, B. Lalme & O. Marty. *Photoluminescence studies of stacked InAs/InP quantum sticks*. J. Cryst. Growth, vol. 275, no. 1-2, pages e2327–e2331, February 2005.
- [Chauvin 06a] N. Chauvin, G. Bremond, C. Bru-Chevallier, E. Dupuy, P. Regreny & M. Gendry. *Shape and size effects on multi-exciton complexes in single InAs quantum dots grown on InP(001) substrate*. Physica Status Solidi (c), vol. 3, no. 11, pages 3912–3915, 2006.
- [Chauvin 06b] N. Chauvin, B. Salem, G. Bremond, G. Guillot, C. Bru-Chevallier & M. Gendry. *Size and shape effects on excitons and biexcitons in single InAs/InP quantum dots*. J. Appl. Phys., vol. 100, no. 7, pages 073702–5, October 2006.
- [Chauvin 06c] N. Chauvin, E. Tranvouez, G. Bremond, G. Guillot, C. Bru-Chevallier, E. Dupuy, P. Regreny, M. Gendry & G. Patriarche. *Neutral and charged multi-exciton complexes in single InAs quantum dots grown on InP(001)*. Nanotechnology, vol. 17, no. 8, pages 1831–1834, 2006.

- [Chauvin 06d] Nicolas Chauvin. *Spectroscopie de la boîte quantique unique dans les systèmes InAs sur InP et InAs sur GaAs émettant à 1,3 μm et 1,5 μm : application aux sources localisées*. PhD thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2006.
- [Chithrani 04] D. Chithrani, R. L. Williams, J. Lefebvre, P. J. Poole & G. C. Aers. *Optical spectroscopy of single, site-selected, InAs/InP self-assembled quantum dots*. Appl. Phys. Lett., vol. 84, no. 6, pages 978–980, February 2004.
- [Cho 70] A. Y. Cho. *Morphology of epitaxial growth of GaAs by a molecular beam method: the observation of surface structures*. Journal of Applied Physics, vol. 41, no. 7, pages 2780–2786, 1970.
- [Cho 75] A.Y. Cho & J.R. Arthur. *Molecular beam epitaxy*. Progress in Solid State Chemistry, vol. 10, no. Part 3, pages 157 – 191, 1975.
- [Cotta 97] M. A. Cotta, C. A. C. Mendonca, E. A. Meneses & M. M. G. de Carvalho. *On the onset of InAs islanding on InP: influence of surface steps*. Surf. Sci., vol. 388, no. 1-3, pages 84–91, October 1997.
- [Dalacu 09] D. Dalacu, M.E. Reimer, S. Fröderick, D. Kim, J. Lapointe, P.J. Poole, G.C. Aers, R.L. Williams, W. Ross McKinnon, M. Korkusinski & P. Hawrylak. *Directed self-assembly of single quantum dots for telecommunication wavelength optical devices*. Laser & Photonics Review, vol. 9999, no. 9999, page NA, 2009.
- [Dousse 08] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczynski, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaitre, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch & P. Senellart. *Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography*. Physical Review Letters, vol. 101, no. 26, page 267404, 2008.
- [Dousse 09] A. Dousse, J. Suffczynski, R. Braive, A. Miard, A. Lemaitre, I. Sagnes, L. Lanco, J. Bloch, P. Voisin & P. Senellart. *Scalable implementation of strongly coupled cavity-quantum dot devices*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 12, page 121102, 2009.
- [Drouin 07] Dominique Drouin, Alexandre Réal Couture, Dany Joly, Xavier Tastet, Vincent Aimez & Raynald Gauvin. *CASINO V2.42 - A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users*. Scanning, vol. 29, no. 3, pages 92–101, 2007.
- [Dubrovskii 04] V. G. Dubrovskii, G. E. Cirlin, Yu. G. Musikhin, Yu. B. Samsonenko, A. A. Tonkikh, N. K. Polyakov, V. A. Egorov, A. F. Tsatsul'nikov, N. A. Krizhanovskaya, V. M. Ustinov & P. Werner. *Effect of growth kinetics on the structural and optical properties of quantum dot ensembles*. Journal of Crystal Growth, vol. 267, no. 1-2, pages 47–59, June 2004.
- [Duport 97] C. Duport, C. Priester & J. Villain. *Morphological organization in epitaxial growth and removal*. World Scientific, Singapore, 1997.
- [Dupuy 06] E. Dupuy, P. Regreny, Y. Robach, M. Gendry, N. Chauvin, E. Tranvouez, G. Bremond, C. Bru-Chevallier & G. Patriarche. *Low density of self-assembled InAs quantum dots grown by solid-source molecular beam epitaxy on InP(001)*. Appl. Phys. Lett., vol. 89, no. 12, page 123112, 2006.

- [Dupuy 09] E. Dupuy, D. Morris, N. Pauc, V. Aimez, M. Gendry & D. Drouin. *Carrier transport properties in the vicinity of single self-assembled quantum dots determined by low-voltage cathodoluminescence imaging*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 2, page 022113, 2009.
- [Ekert 91] A. K. Ekert. *Quantum cryptography based on Bell's theorem*. Phys. Rev. Lett., vol. 67, pages 661–663, 1991.
- [Elias 09] Georges Elias. PhD thesis, INSA Rennes, 2009.
- [Ercolani 08] Daniele Ercolani, Giorgio Biasiol, Emiliano Cancellieri, Marcello Rosini, Carlo Jacoboni, Franco Carillo, Stefan Heun, Lucia Sorba & Frithjof Nolting. *Transport anisotropy in $In_{0.75}Ga_{0.25}As$ two-dimensional electron gases induced by indium concentration modulation*. Physical Review B, vol. 77, no. 23, page 235307, 2008.
- [Everhart 71] T. E. Everhart & P. H. Hoff. *Determination of Kilovolt Electron Energy Dissipation vs Penetration Distance in Solid Materials*. Journal of Applied Physics, vol. 42, no. 13, pages 5837–5846, 1971.
- [Fafard 94] S. Fafard, D. Leonard, J. L. Merz & P. M. Petroff. *Selective excitation of the photoluminescence and the energy levels of ultrasmall InGaAs/GaAs quantum dots*. Applied Physics Letters, vol. 65, no. 11, pages 1388–1390, 1994.
- [Fafard 96] S. Fafard, Z. Wasilewski, J. McCaffrey, S. Raymond & S. Charbonneau. *InAs self-assembled quantum dots on InP by molecular beam epitaxy*. Appl. Phys. Lett., vol. 68, no. 7, pages 991–993, 1996.
- [Fiore 04] A. Fiore, M. Rossetti, B. Alloing, C. Paranthoen, J. X. Chen, L. Geelhaar & H. Riechert. *Carrier diffusion in low-dimensional semiconductors: A comparison of quantum wells, disordered quantum wells, and quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 70, no. 20, pages 205311–12, November 2004.
- [Frechengues 97] S. Frechengues, V. Drouot, B. Lambert, D. Lemoine, S. Loualiche, A. Le Corre & H. L'Haridon. *Direct correlation of structural and optical properties of InAs self-assembled dots deposited on InP(100)*. Appl. Phys. Lett., vol. 71, no. 19, pages 2818–2820, 1997.
- [Frechengues 99a] S. Frechengues, N. Bertru, V. Drouot, B. Lambert, S. Robinet, S. Loualiche, D. Lacombe & A. Ponchet. *Wavelength tuning of InAs quantum dots grown on (311)B InP*. Appl. Phys. Lett., vol. 74, no. 22, pages 3356–3358, May 1999.
- [Frechengues 99b] S. Frechengues, V. Drouot, N. Bertru, B. Lambert, S. Loualiche & A. Le Corre. *Self-organized InAs islands on InP(311)B substrates emitting around 1.55 μm* . J. Cryst. Growth, vol. 201-202, pages 1180–1185, May 1999.
- [Fuster 07] David Fuster, Benito Alen, Luisa Gonzalez, Yolanda Gonzalez & Juan Martinez-Pastor. *Initial stages of self-assembled InAs/InP(001) quantum wire formation*. Journal of Crystal Growth, vol. 301-302, pages 705 – 708, 2007. 14th International Conference on Molecular Beam Epitaxy.
- [Gammon 95] D. Gammon, E. S. Snow & D. S. Katzer. *Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots*. Applied Physics Letters, vol. 67, no. 16, pages 2391–2393, 1995.

- [Gammon 98] Daniel Gammon. *High-Resolution Spectroscopy of Individual Quantum Dots in Wells*. Materials Research Society Bulletin, vol. 23, no. 2, pages 44–48, Feb 1998.
- [Garcia 01] J. M. Garcia, L. Gonzalez, M. U. Gonzalez, J. P. Silveira, Y. Gonzalez & F. Briones. *InAs/InP(0 0 1) quantum wire formation due to anisotropic stress relaxation: in situ stress measurements*. Journal of Crystal Growth, vol. 227–228, pages 975–979, July 2001.
- [Gendry 92] M. Gendry, V. Drouot, C. Santinelli & G. Hollinger. *Critical thicknesses of highly strained InGaAs layers grown on InP by molecular beam epitaxy*. Appl. Phys. Lett., vol. 60, no. 18, pages 2249–2251, May 1992.
- [Gendry 95] M. Gendry, V. Drouot, G. Hollinger & S. Mahajan. *Effect of surface steps and nonstoichiometry on critical thickness of strained InGaAs layers grown by molecular beam epitaxy on InAlAs/InP heterostructures*. Appl. Phys. Lett., vol. 66, no. 1, pages 40–42, January 1995.
- [Gendry 04] M. Gendry, C. Monat, J. Brault, P. Regreny, G. Hollinger, B. Salem, G. Guillot, T. Benyattou, C. Bru-chevallier, G. Bremond & O. Marty. *From large to low height dispersion for self-organized InAs quantum sticks emitting at 1.55 μm on InP (001)*. J. Appl. Phys., vol. 95, pages 4761–4766, 2004.
- [Gerard 99] J.-M. Gerard & B. Gayral. *Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities*. J. Lightwave Technol., vol. 17, pages 2089–2095, 1999.
- [Gerard 03] Jean-Michel Gerard. Fundamentals, applications and new concepts nonclassical light from single semiconductor quantum dots, volume 90 of *Topics in Applied Physics*, chapitre Solid-State Cavity-Quantum Electrodynamics with Self-Assembled Quantum Dots. Springer, 2003.
- [Gisin 02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel & H. Zbinden. *Quantum cryptography*. Rev. Mod. Phys., vol. 74, pages 145–195, 2002.
- [Goldstein 85] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse & G. Le Roux. *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. Appl. Phys. Lett., vol. 47, no. 10, pages 1099–1101, 1985.
- [Gong 08] Ming Gong, Kaimin Duan, Chuan-Feng Li, Rita Magri, Gustavo A. Narvaez & Lixin He. *Electronic structure of self-assembled InAs/InP quantum dots: Comparison with self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 77, no. 4, pages 045326–10, January 2008.
- [Gonzalez 00] L. Gonzalez, J. M. Garcia, R. Garcia, F. Briones, J. Martinez-Pastor & C. Ballesteros. *Influence of buffer-layer surface morphology on the self-organized growth of InAs on InP(001) nanostructures*. Appl. Phys. Lett., vol. 76, no. 9, pages 1104–1106, February 2000.
- [Gonzalez 04] M. U. Gonzalez, L. Gonzalez, J. M. Garcia, Y. Gonzalez, J. P. Silveira & F. Briones. *Stress evolution aspects during InAs/InP (001) quantum wires self-assembling*. Microelectronics Journal, vol. 35, no. 1, pages 13–17, January 2004.

- [Greilich 06] A. Greilich, M. Schwab, T. Berstermann, T. Auer, R. Oulton, D. R. Yakovlev, M. Bayer, V. Stavarache, D. Reuter & A. Wieck. *Tailored quantum dots for entangled photon pair creation*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics), vol. 73, no. 4, page 045323, 2006.
- [Grundmann 95] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Bohrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gosele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev & Zh.I. Alferov. *Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots*. Physical Review Letters, vol. 74, no. 20, pages 4043–6, May 1995.
- [Guimard 08] Denis Guimard, Hearin Lee, Masao Nishioka & Yasuhiko Arakawa. *Growth of high-uniformity InAs/GaAs quantum dots with ultralow density below 10^7 cm^{-2} and emission above 1.3 μm* . Applied Physics Letters, vol. 92, no. 16, page 163101, 2008.
- [Günther 58] G. Günther. *Hauptdampfschichten aus halbleitenden III-V Verbindungen*. Z. Naturforsch., vol. 13a, pages 1081–1089, 1958.
- [Gustafsson 94] A. Gustafsson & L. Samuelson. *Cathodoluminescence imaging of quantum wells: The influence of exciton transfer on the apparent island size*. Phys. Rev. B, vol. 50, no. 16, pages 11827–11832, Oct 1994.
- [Gustafsson 95] A. Gustafsson, D. Hessman, L. Samuelson, J. F. Carlin, R. Houdre & A. Rudra. *Cathodoluminescence investigations of three-dimensional island formation in InAs/InP quantum wells*. Journal of Crystal Growth, vol. 147, no. 1-2, pages 27–34, January 1995.
- [Gustafsson 98] Anders Gustafsson, Mats-Erik Pistol, Lars Montelius & Lars Samuelson. *Local probe techniques for luminescence studies of low-dimensional semiconductor structures*. Journal of Applied Physics, vol. 84, no. 4, pages 1715–1775, 1998.
- [Gutiérrez 01a] H. R. Gutiérrez, M. A. Cotta & M. M. G. de Carvalho. *Faceting evolution during self-assembling of InAs/InP quantum wires*. Appl. Phys. Lett., vol. 79, no. 23, pages 3854–3856, December 2001.
- [Gutiérrez 01b] H.R. Gutiérrez, M.A. Cotta & M.M.G. de Carvalho. *Shape Transition in Self-Organized InAs/InP Nanostructures*. MRS, 2001.
- [Gutiérrez 02] H. R. Gutiérrez, M. A. Cotta, J. R. R. Bortoleto & M. M. G. de Carvalho. *Role of group V exchange on the shape and size of InAs/InP self-assembled nanostructures*. J. Appl. Phys., vol. 92, no. 12, pages 7523–7526, December 2002.
- [Haegel 04] N. M. Haegel, J. D. Fabbri & M. P. Coleman. *Direct transport imaging in planar structures*. Applied Physics Letters, vol. 84, no. 8, pages 1329–1331, 2004.
- [Hanada 01] Takashi Hanada, Bon-Heun Koo, Hirofumi Totsuka & Takafumi Yao. *Anisotropic shape of self-assembled InAs quantum dots: Refraction effect on spot shape of reflection high-energy electron diffraction*. Physical Review B, vol. 64, no. 16, page 165307, 2001.
- [Haroche 98] Serge Haroche. *Entanglement, Decoherence and the Quantum/Classical Boundary*. Physics Today, vol. 51, no. 7, pages 36–42, 1998.

- [He 08] Lixin He, Ming Gong, Chuan-Feng Li, Guang-Can Guo & Alex Zunger. *Highly Reduced Fine-Structure Splitting in InAs/InP Quantum Dots Offering an Efficient On-Demand Entangled 1.55 μm Photon Emitter*. Physical Review Letters, vol. 101, no. 15, page 157405, 2008.
- [Hessman 96] D. Hessman, P. Castrillo, M.-E. Pistol, C. Pryor & L. Samuelson. *Excited states of individual quantum dots studied by photoluminescence spectroscopy*. Applied Physics Letters, vol. 69, no. 6, pages 749–751, 1996.
- [Hillmer 89] H. Hillmer, A. Forchel, S. Hansmann, M. Morohashi, E. Lopez, H. P. Meier & K. Ploog. *Optical investigations on the mobility of two-dimensional excitons in GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs quantum wells*. Phys. Rev. B, vol. 39, no. 15, pages 10901–10912, May 1989.
- [Hollinger 90] G. Hollinger, D. Gallet, M. Gendry, C. Santinelli & P. Viktorovitch. *Structural and chemical properties of InAs layers grown on InP(100) surfaces by arsenic stabilization*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, vol. 8, no. 4, pages 832–837, 1990.
- [Hollinger 92] G. Hollinger, M. Gendry, J. L. Duvault, C. Santinelli, P. Ferret, C. Miozzi & M. Pitaval. *Heteroepitaxial growth of strained and relaxed layers of InAs on InP investigated by RHEED and HRTEM*. Appl. Surf. Sci., vol. 56-58, no. Part 2, pages 665–671, 1992.
- [Holt 94] D. B. Holt & E. Napchan. *Quantitation of SEM EBIC and CL signals using Monte Carlo electron-trajectory simulations*. Scanning, vol. 16, no. 2, pages 78–86, 1994.
- [Houdre 93] R. Houdre, J. F. Carlin, A. Rudra, J. Ling & M. Ilegems. *Formation and optical properties of islands in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy*. Superlattices Microstruct., vol. 13, no. 1, pages 67–67, January 1993.
- [Huang 08] Chun-Yuan Huang, Meng-Chyi Wu, Jeng-Jung Shen & Shih-Yen Lin. *Self-ordered InGaAs quantum dots grown at low growth rates*. Journal of Applied Physics, vol. 103, no. 4, page 044301, 2008.
- [Hwang 04] Heedon Hwang, Sukho Yoon, Hyeok Kwon, Euijoon Yoon, Hong-Seung Kim, Jeong Yong Lee & Benjamin Cho. *Shapes of InAs quantum dots on InGaAs/InP*. Appl. Phys. Lett., vol. 85, no. 26, pages 6383–6385, 2004.
- [Jahn 06] U. Jahn, S. Dhar, R. Hey, O. Brandt, J. Miguel-Sánchez & A. Guzmán. *Influence of localization on the carrier diffusion in GaAs/(Al,Ga)As and (In,Ga)(As,N)/GaAs quantum wells: A comparative study*. Physical Review B, vol. 73, no. 12, page 125303, 2006.
- [Joy 95] D.C. Joy. Monte-carlo simulation for microscopy and microanalysis. Oxford University Press, New York, 1995.
- [Junno 96] B. Junno, S. Jeppesen, M. S. Miller & L. Samuelson. *A comparison of RHEED reconstruction phases on (100) InAs, GaAs and InP*. Journal of Crystal Growth, vol. 164, no. 1-4, pages 66–70, July 1996.
- [Kamiya 02] I. Kamiya, Ichiro Tanaka, O. Ohtsuki & H. Sakaki. *Density and size control of self-assembled InAs quantum dots: preparation of very low-density dots by post-annealing*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, vol. 13, no. 2-4, pages 1172–1175, March 2002.

- [Kammerer 02] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, A. Lemaitre & J. M. Gerard. *Efficient acoustic phonon broadening in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. Physical Review B, vol. 65, no. 3, page 033313, 2002.
- [Kanaya 72] K. Kanaya & S. Okayama. *Penetration and energy-loss theory of electrons in solid targets*. Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 5, no. 1, pages 43–58, 1972.
- [Kapsa 03] Jennifer Kapsa. *Nanostructurations de surfaces pour la localisation et l'organisation d'îlots quantiques InAs/InP(001)*. PhD thesis, Ecole Centrale de Lyon, 2003.
- [Kim 05] D. Kim, J. Lefebvre, J. Mckee, S. Studenikin, R. L. Williams, A. Sachrajda, P. Zawadzki, P. Hawrylak, W. Sheng, G. C. Aers & P. J. Poole. *Photoluminescence of single, site-selected, InAs/InP quantum dots in high magnetic fields*. Appl. Phys. Lett., vol. 87, no. 21, page 212105, 2005.
- [Kim 06] D. Kim, J. Lefebvre, J. Lapointe, M. E. Reimer, J. Mckee, P. J. Poole & R. L. Williams. *Optical spectroscopy of single, planar, self-assembled InAs/InP quantum dots*. Physica Status Solidi (c), vol. 3, no. 11, pages 3840–3843, 2006.
- [Kim 09] Danny Kim, Weidong Sheng, Philip J. Poole, Dan Dalacu, Jacques Lefebvre, Jean Lapointe, Michael E. Reimer, Geoff C. Aers & Robin L. Williams. *Tuning the exciton g factor in single InAs/InP quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 79, no. 4, pages 045310–6, January 2009.
- [Kleemans 09] N. A. J. M. Kleemans, J. van Bree, M. Bozkurt, P. J. van Veldhoven, P. A. Nouwens, R. Nötzel, A. Yu. Silov, P. M. Koenraad & M. E. Flatté. *Size-dependent exciton g factor in self-assembled InAs/InP quantum dots*. Physical Review B, vol. 79, no. 4, page 045311, 2009.
- [Klein 68] Claude A. Klein. *Bandgap Dependence and Related Features of Radiation Ionization Energies in Semiconductors*. Journal of Applied Physics, vol. 39, no. 4, pages 2029–2038, 1968.
- [Knill 01] E. Knill, R. Laflamme & G. J. Milburn. *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*. Nature, vol. 409, pages 46–52, 2001.
- [Koo 01] B. H. Koo, T. Hanada, H. Makino, J. H. Chang & T. Yao. *RHEED investigation of the formation process of InAs quantum dots on (100) InAlAs/InP for application to photonic devices in the 1.55 μ m range*. Journal of Crystal Growth, vol. 229, no. 1-4, pages 142 – 146, 2001.
- [Kowalik 05] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaitre, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin & J. A. Gaj. *Influence of an in-plane electric field on exciton fine structure in InAs-GaAs self-assembled quantum dots*. Applied Physics Letters, vol. 86, no. 4, page 041907, 2005.
- [Kratzer 09] Peter Kratzer, Aparna Chakrabarti, Quincy K K Liu & Matthias Scheffler. *Theory of shape evolution of InAs quantum dots on In_{0.5}Ga_{0.5}As/InP(001) substrate*. New Journal of Physics, vol. 11, no. 7, page 073018 (16pp), 2009.
- [Krzyzewski 08] T. J. Krzyzewski & T. S. Jones. *Nanostructure formation in InAs/InP(001) heteroepitaxy: Importance of surface reconstruction*. Physical Review B, vol. 78, no. 15, page 155307, 2008.

- [Labella 00] V. P. Labella, Z. Ding, D. W. Bullock, C. Emery & P. M. Thibado. *Reflection high-energy electron diffraction and scanning tunneling microscopy study of InP(001) surface reconstructions*. Journal of Vacuum Science Technology A, vol. 18, pages 1492–1496, July 2000.
- [Lahkak 03] N. Lahkak. La caractérisation optique et structurale des structures à boîtes quantiques d'par cathodoluminescence à faible énergie. Master's thesis, Département de génie électrique, Université de Sherbrooke, Québec, Canada, Déc 2003. Superviseur: Dominique Drouin.
- [Langbein 04] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter & A. D. Wieck. *Control of fine-structure splitting and biexciton binding in $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots by annealing*. Phys. Rev. B, vol. 69, no. 16, page 161301, Apr 2004.
- [Lebouche-Girard 97] N. Lebouche-Girard, A. Rudra & E. Kapon. *Growth and transformation of ultra-thin InAs/InP layers obtained by chemical beam epitaxy*. J. Cryst. Growth, vol. 175-176, no. Part 2, pages 1210–1216, May 1997.
- [Lee 06] Kwan H. Lee, Alex M. Green, Robert A. Taylor, David N. Sharp, Jan Scrimgeour, Olivia M. Roche, Jong H. Na, Anas F. Jarjour, Andrew J. Turberfield, Frederic S. F. Brossard, David A. Williams & G. Andrew D. Briggs. *Registration of single quantum dots using cryogenic laser photolithography*. Applied Physics Letters, vol. 88, no. 19, page 193106, 2006.
- [Leon 95] R. Leon, P. M. Petroff, D. Leonard & S. Fafard. *Spatially resolved visible luminescence of self-assembled semiconductor quantum dots*. Science, vol. 267, no. 5206, pages 1966–1968, 1995.
- [Leon 98] R. Leon, S. Fafard, P. G. Piva, S. Ruvimov & Z. Liliental-Weber. *Tunable intersublevel transitions in self-forming semiconductor quantum dots*. Physical Review B, vol. 58, no. 8, pages R4262–R4265, 1998.
- [Leon 99] R. Leon, S. Marcinkevicius, X. Z. Liao, J. Zou, D. J. H. Cockayne & S. Fafard. *Ensemble interactions in strained semiconductor quantum dots*. Physical Review B, vol. 60, no. 12, pages R8517–R8520, 1999.
- [Li 99] Hanxuan Li, Theda Daniels-Race & Zhanguo Wang. *Growth mode and strain relaxation of InAs on InP (111)A grown by molecular beam epitaxy*. Applied Physics Letters, vol. 74, no. 10, pages 1388–1390, 1999.
- [Li 00a] Y. F. Li, F. Q. Liu, B. Xu, X. L. Ye, D. Ding, Z. Z. Sun, W. H. Jiang, H. Y. Liu, Y. C. Zhang & Z. G. Wang. *Two-dimensional ordering of self-assembled InAs quantum dots grown on (3 1 1)B InP substrate*. J. Cryst. Growth, vol. 219, no. 1-2, pages 17–21, October 2000.
- [Li 00b] Y. F. Li, X. L. Ye, F. Q. Liu, B. Xu, D. Ding, W. H. Jiang, Z. Z. Sun, H. Y. Liu, Y. C. Zhang & Z. G. Wang. *Structural and optical characterization of InAs nanostructures grown on (001) and high index InP substrates*. Appl. Surf. Sci., vol. 167, no. 3-4, pages 191–196, October 2000.
- [Li 00c] Y. F. Li, X. L. Ye, B. Xu, F. Q. Liu, D. Ding, W. H. Jiang, Z. Z. Sun, Y. C. Zhang, H. Y. Liu & Z. G. Wang. *Room temperature 1.55 μm emission from InAs quantum*

dots grown on (0 0 1)InP substrate by molecular beam epitaxy. J. Cryst. Growth, vol. 218, no. 2-4, pages 451–454, September 2000.

[Li 08] L. H. Li, N. Chauvin, G. Patriarche, B. Alloing & A. Fiore. *Growth-interruption-induced low-density InAs quantum dots on GaAs*. Journal of Applied Physics, vol. 104, no. 8, page 083508, 2008.

[Liu 99] Feng-Qi Liu, Zhan-Guo Wang, Ju Wu, Bo Xu, Wei Zhou & Jia-Jun Qian. *Size quantization effects in InAs self-assembled islands on InP(0 0 1) at the onset of 2D-to-3D transition*. Journal of Crystal Growth, vol. 197, no. 4, pages 789–793, March 1999.

[Lobo 99] C. Lobo, R. Leon, S. Marcinkevicius, W. Yang, P. C. Sercel, X. Z. Liao, J. Zou & D. J. H. Cockayne. *Inhibited carrier transfer in ensembles of isolated quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 60, no. 24, pages 16647–16651, December 1999.

[Malyarchuk 02] V. Malyarchuk, J. W. Tomm, V. Talalaev, Ch. Lienau, F. Rinner & M. Baeumler. *Nanosopic measurements of surface recombination velocity and diffusion length in a semiconductor quantum well*. Applied Physics Letters, vol. 81, no. 2, pages 346–348, 2002.

[Marchand 97] H. Marchand, P. Desjardins, S. Guillon, J.-E. Paultre, Z. Bougrioua, R. Y.-F. Yip & R. A. Masut. *Metalorganic vapor phase epitaxy of coherent self-assembled InAs nanometer-sized islands in InP(001)*. Applied Physics Letters, vol. 71, no. 4, pages 527–529, 1997.

[Marcinkevicius 08] Saulius Marcinkevicius. Dynamics of carrier transfer into in(ga)as self-assembled quantum dots, volume 1 of *Lecture Notes in Nanoscale Science and Technology*. Springer New York, 2008.

[Marzin 94] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier & G. Bastard. *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs*. Phys. Rev. Lett., vol. 73, no. 5, pages 716–719, Aug 1994.

[Matsuda 01] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito & K. Nishi. *Homogeneous linewidth broadening in a $In_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs$ single quantum dot at room temperature investigated using a highly sensitive near-field scanning optical microscope*. Phys. Rev. B, vol. 63, no. 12, page 121304, Mar 2001.

[Matsusue 87] Toshio Matsusue & Hiroyuki Sakaki. *Radiative recombination coefficient of free carriers in GaAs-AlGaAs quantum wells and its dependence on temperature*. Applied Physics Letters, vol. 50, no. 20, pages 1429–1431, 1987.

[McCaffrey 01] J. P. McCaffrey, M. D. Robertson, P. J. Poole, B. J. Riel & S. Fafard. *Interpretation and modeling of buried InAs quantum dots on GaAs and InP substrates*. J. Appl. Phys., vol. 90, no. 4, pages 1784–1787, August 2001.

[Mechler 05] Ádám Mechler, Judit Kopniczky, János Kokavecz, Anders Hoel, Claes-Göran Granqvist & Peter Heszler. *Anomalies in nanostructure size measurements by AFM*. Phys. Rev. B, vol. 72, no. 12, page 125407, Sep 2005.

[Mendonça 98] C. A. C. Mendonça, E. Laureto, M. J. S. P. Brasil, M. A. Cotta, M. M. G. Carvalho & E. A. Meneses. *On the optical properties of InAs/InP systems: The role of two-*

dimensional structures and three-dimensional islands. Appl. Phys., vol. 72, no. 9, pages 1015–1017, March 1998.

[Mensing 03] T. Mensing, L. Worschech, Y. Ling, S. Kaiser, R. Schwertberger, J.P. Reithmaier & A. Forchel. *Zeeman spectroscopy of single self-assembled InAs/InGaAlAs quantum dashes*. In Physica Status Solidi (c), numéro 4, pages 1161–4, Tokyo, Japan, 2003. Wiley-VCH.

[Merano 05] M. Merano, S. Sonderegger, A. Crottini, S. Collin, P. Renucci, E. Pelucchi, A. Malko, M. H. Baier, E. Kapon, B. Deveaud & J.-D. Ganiere. *Probing carrier dynamics in nanostructures by picosecond cathodoluminescence*. Nature, vol. 438, no. 7067, pages 479–482, November 2005.

[Michel 97] M. Michel, A. Forchel & F. Faller. *Length quantization in $In_{0.13}Ga_{0.87}As/GaAs$ quantum boxes with rectangular cross section*. Applied Physics Letters, vol. 70, no. 3, pages 393–395, 1997.

[Michler 00] P. Michler. *A quantum dot single-photon turnstile device*. Science, vol. 290, pages 2282–2285, 2000.

[Michler 03] Peter Michler. *Single quantum dots fundamentals, applications and new concepts*, volume 90 of *Topics in Applied Physics*, chapitre Nonclassical Light from Single Semiconductor Quantum Dots, pages 315–348. Springer, 2003.

[Michon 05] A. Michon, G. Saint-Girons, G. Beaudoin, I. Sagnes, L. Largeau & G. Patriarche. *InAs/InP(001) quantum dots emitting at 1.55 μm grown by low-pressure metalorganic vapor-phase epitaxy*. Appl. Phys. Lett., vol. 87, no. 25, pages 253114–3, December 2005.

[Michon 06a] A. Michon, G. Patriarche, I. Sagnes, G. Beaudoin & G. Saint-Girons. *InAs/InP(001) quantum dots and quantum sticks grown by MOVPE: shape, anisotropy and formation process*. physica status solidi (c), vol. 3, no. 11, pages 3928–3931, 2006.

[Michon 06b] A. Michon, I. Sagnes, G. Patriarche, G. Beaudoin, M. N. Merat-Combes & G. Saint-Girons. *Thermodynamical analysis of the shape and size dispersion of InAs/InP(001) quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 73, no. 16, pages 165321–7, April 2006.

[Michon 07] A. Michon, G. Patriarche, G. Beaudoin, G. Saint-Girons, N. Gogneau & I. Sagnes. *Density of InAs/InP(001) quantum dots grown by metal-organic vapor phase epitaxy: Independent effects of InAs and cap-layer growth rates*. Appl. Phys. Lett., vol. 91, no. 10, pages 102107–3, September 2007.

[Mitsui 05] Tadashi Mitsui, Takashi Sekiguchi, Daisuke Fujita & Nobuyuki Koguchi. *Comparison between Electron Beam and Near-Field Light on the Luminescence Excitation of GaAs/AlGaAs Semiconductor Quantum Dots*. Japanese Journal of Applied Physics, vol. 44, no. 4A, pages 1820–1824, 2005.

[Miyazawa 05] Toshiyuki Miyazawa, Kazuya Takemoto, Yoshiki Sakuma, Shinichi Hirose, Tatsuya Usuki, Naoki Yokoyama, Motomu Takatsu & Yasuhiko Arakawa. *Single-Photon Generation in the 1.55 μm Optical-Fiber Band from an InAs/InP Quantum Dot*. Jpn. J. Appl. Phys., Part 2, vol. 44, no. 20, pages L620–L622, January 2005.

- [Moison 86] J. M. Moison, M. Bensoussan & F. Houzay. *Epitaxial regrowth of an InAs surface on InP: An example of artificial surfaces*. Phys. Rev. B, vol. 34, no. 3, pages 2018–2021, Aug 1986.
- [Moison 87] J. M. Moison, C. Guille & M. Bensoussan. *Commensurate and incommensurate phase transitions of the (001) InAs surface under changes of bulk lattice constant, As chemical potential, and temperature*. Phys. Rev. Lett., vol. 58, no. 24, pages 2555–2558, Jun 1987.
- [Moll 96] N. Moll, A. Kley, E. Pehlke & M. Scheffler. *GaAs equilibrium crystal shape from first principles*. Phys. Rev. B, vol. 54, no. 12, pages 8844–8855, Sep 1996.
- [Moll 98] N. Moll, M. Scheffler & E. Pehlke. *Influence of surface stress on the equilibrium shape of strained quantum dots*. Physical Review B, vol. 58, no. 8, pages 4566–4571, 1998.
- [Monat 03] Christelle Monat. *Ilots quantiques et cristaux photoniques planaires pour un microlaser faible seuil à 1,5 μm* . PhD thesis, Ecole Centrale de Lyon, 2003.
- [Monte 03] A.F.G Monte, F.V de Sales, S.W da Silva, M.A.G Soler, J.M.R Cruz, P.C Morais, M.J da Silva, A.A Quivy & J.R Leite. *Photoexcited carrier diffusion in self-assembled InAs/GaAs quantum dots with different dot densities*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, vol. 17, pages 122–123, April 2003.
- [Morreau 02] Emmanuel Morreau. *Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semi-conductrice*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie Paris VI, 4 novembre 2002.
- [Morris 99] D. Morris, N. Perret & S. Fafard. *Carrier energy relaxation by means of Auger processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*. Applied Physics Letters, vol. 75, no. 23, pages 3593–3595, 1999.
- [Mowbray 05] D J Mowbray & M S Skolnick. *New physics and devices based on self-assembled semiconductor quantum dots*. Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 38, no. 13, pages 2059–2076, 2005.
- [Neave 83] J.H. Neave, P.K. Larsen, J.F. Van Der Veen, P.J. Dobson & B.A. Joyce. *Effect of arsenic species (As_2 OR As_4) on the crystallographic and electronic structure of MBE-grown GaAs(001) reconstructed surfaces*. Surface Science Letters, vol. 133, no. 1, pages A368–A369, October 1983.
- [Notzel 95] Richard Notzel, Jiro Temmyo, Atsuo Kozen, Toshiaki Tamamura, Takashi Fukui & Hideki Hasegawa. *Self-organization of strained GaInAs microstructures on InP (311) substrates grown by metalorganic vapor-phase epitaxy*. Appl. Phys. Lett., vol. 66, no. 19, pages 2525–2527, May 1995.
- [Ohlsson 01] B. J. Ohlsson, M. S. Miller, A. Gustafsson & M.-E. Pistol. *Anisotropic GaAs island phase grown on flat GaP: A Stranski–Krastanow-formed corrugated surface*. Journal of Applied Physics, vol. 89, no. 10, pages 5726–5730, 2001.

- [Ohnesorge 96] B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel & Y. Arakawa. *Rapid carrier relaxation in self-assembled $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 54, no. 16, pages 11532–11538, Oct 1996.
- [Ohtake 08] Akihiro Ohtake. *Surface reconstructions on GaAs(001)*. Surface Science Reports, vol. 63, no. 7, pages 295 – 327, 2008.
- [Ono 99] Madoka Ono, Kazunari Matsuda, Toshiharu Saiki, Kenichi Nishi, Takashi Mukaiyama & Makoto Kuwata-Gonokami. *Time-resolved emission from self-assembled single quantum dots using scanning near-field optical microscope*. Japanese Journal of Applied Physics, vol. 38, no. Part 2, No. 12A, pages L1460–L1462, 1999.
- [Ozanyan 97] K. B. Ozanyan, P. J. Parbrook, M. Hopkinson, C. R. Whitehouse, Z. Sobiesierski & D. I. Westwood. *In situ monitoring of the surface reconstructions on InP(001) prepared by molecular beam epitaxy*. J. Appl. Phys., vol. 82, no. 1, pages 474–476, 1997.
- [Paranthoen 01] C. Paranthoen, N. Bertru, O. Dehaese, A. Le Corre, S. Loualiche, B. Lambert & G. Patriarche. *Height dispersion control of InAs/InP quantum dots emitting at 1.55 μm* . Appl. Phys. Lett., vol. 78, no. 12, pages 1751–1753, March 2001. double cap.
- [Parry 05] H.J. Parry, M.J. Ashwin, J.H. Neave & T.S. Jones. *Growth of InAs/InP(0 0 1) nanostructures: The transition from quantum wires to quantum dots*. J. Cryst. Growth, vol. 278, no. 1-4, pages 131–135, May 2005.
- [Parry 06] H. J. Parry, M. J. Ashwin & T. S. Jones. *InAs nanowire formation on InP(001)*. J. Appl. Phys., vol. 100, no. 11, page 114305, 2006.
- [Pashley 89] M. D. Pashley. *Electron counting model and its application to island structures on molecular-beam epitaxy grown GaAs(001) and ZnSe(001)*. Phys. Rev. B, vol. 40, no. 15, pages 10481–, November 1989.
- [Pauc 06] N. Pauc, M. R. Phillips, V. Aimez & D. Drouin. *Carrier recombination near threading dislocations in GaN epilayers by low voltage cathodoluminescence*. Applied Physics Letters, vol. 89, no. 16, page 161905, 2006.
- [Pennycook 81] S.J. Pennycook. *Investigation of the electronic effects of dislocations by STEM*. Ultramicroscopy, vol. 7, no. 1, pages 99–104, 1981.
- [Peronne 01] E. Peronne, T. Polack, J. F. Lampin, F. Fossard, F. Julien, J. Brault, M. Gendry, O. Marty & A. Alexandrou. *Femtosecond measurement of electron capture and intersubband relaxation in self-organized InAs quantum wires on $\text{In}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}/\text{InP}$* . Physical Review B, vol. 63, no. 8, page 081307, 2001.
- [Petroff 01] Pierre M. Petroff, Axel Lorke & Atac Imamoglu. *Epitaxially Self-Assembled Quantum Dots*. Physics Today, vol. 54, no. 5, pages 46–52, 2001.
- [Petrov 92] V. I. Petrov. *Cathodoluminescence Scanning Microscopy*. Physica Status Solidi (a), vol. 133, no. 2, pages 189–230, 1992.
- [Pettersson 99] H. Pettersson, R. J. Warburton, J. P. Kotthaus, N. Carlsson, W. Seifert, M.-E. Pistol & L. Samuelson. *Electronic structure of self-assembled InAs quantum dots in*

InP: An anisotropic quantum-dot system. Physical Review B, vol. 60, no. 16, pages R11289–R11292, 1999.

[Ponchet 95a] A. Ponchet, A. Le Corre, A. Godefroy, S. Salaun & A. Poudoulec. *Influence of stress and surface reconstruction on the morphology of tensile GaInAs grown on InP(001) by gas source molecular beam epitaxy*. Journal of Crystal Growth, vol. 153, no. 3-4, pages 71 – 80, 1995.

[Ponchet 95b] A. Ponchet, A. Le Corre, A. Godefroy, S. Salaun & A. Poudoulec. *Stability of (114) and (114) facets in III-V compounds under usual MBE conditions*. Microelectronics Journal, vol. 26, no. 8, pages 783 – 788, 1995. Novel Index Semiconductor Surfaces.

[Ponchet 95c] A. Ponchet, A. Le Corre, H. L'Haridon, B. Lambert & S. Salaun. *Relationship between self-organization and size of InAs islands on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy*. Appl. Phys. Lett., vol. 67, no. 13, pages 1850–1852, September 1995.

[Poole 01] P. J. Poole, J. McCaffrey, R. L. Williams, J. Lefebvre & D. Chithrani. *Chemical beam epitaxy growth of self-assembled InAs/InP quantum dots*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, vol. 19, no. 4, pages 1467–1470, July 2001.

[Poole 03] P. J. Poole, R. L. Williams, J. Lefebvre & S. Moisa. *Using As/P exchange processes to modify InAs/InP quantum dots*. J. Cryst. Growth, vol. 257, no. 1-2, pages 89–96, September 2003.

[Poole 09] P.J. Poole, K. Kaminska, P. Barrios, Z. Lu & J. Liu. *Growth of InAs/InP based quantum dots for 1.55 Åµm laser applications*. Journal of Crystal Growth, pages –, 2009.

[Popescu 03] Dan P. Popescu, Peter G. Eliseev, Andreas Stintz & Kevin J. Malloy. *Carrier migration in structures with InAs quantum dots*. Journal of Applied Physics, vol. 94, no. 4, pages 2454–2458, 2003.

[Popescu 06] D.P. Popescu & K.J. Malloy. *Anisotropy of carrier transport in the active region of lasers with self-assembled inas quantum dashes*. Photonics Technology Letters, IEEE, vol. 18, no. 22, pages 2401–2403, Nov.15, 2006.

[Pryor 05] C. E. Pryor & M.-E. Pistol. *Band-edge diagrams for strained III-V semiconductor quantum wells, wires, and dots*. Phys. Rev. B, vol. 72, no. 20, pages 205311–, November 2005.

[Raymond 00] S. Raymond, K. Hinzer, S. Fafard & J. L. Merz. *Experimental determination of Auger capture coefficients in self-assembled quantum dots*. Physical Review B, vol. 61, no. 24, pages R16331–R16334, 2000.

[Raz 03] T. Raz, D. Ritter & G. Bahir. *Formation of InAs self-assembled quantum rings on InP*. Applied Physics Letters, vol. 82, no. 11, pages 1706–1708, 2003.

[Reimer 09] M. E. Reimer, D. Dalacu, J. Lapointe, P. J. Poole, D. Kim, G. C. Aers, W. R. McKinnon & R. L. Williams. *Single electron charging in deterministically positioned InAs/InP quantum dots*. Appl. Phys. Lett., vol. 94, no. 1, pages 011108–3, January 2009.

- [Reithmaier 04] Johann Peter Reithmaier, Stefan Deubert, Roland Krebs, Frank Klopff, Ruth Schwertberger, Andre Somers, Lars Bach, Wolfgang Kaiser, Alfred W. Forchel, Robert Alizon, D. Hadass, Alberto Bilenca, Hanan Dery, B. Mikhelashvili, Gadi Eisenstein, Michel Calligaro, Shailendra Bansropun & Michel M. Krakowski. *Lasers and amplifiers based on quantum-dot-like gain material*. In Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng., volume 5361, pages 1–14, San Jose, CA, USA, June 2004. SPIE.
- [Rudra 94] A. Rudra, R. Houdre, J. F. Carlin & M. Ilegems. *Dynamics of island formation in the growth of InAs/InP quantum wells*. J. Cryst. Growth, vol. 136, no. 1-4, pages 278–281, March 1994.
- [Runge 95] E. Runge, J. Menniger, U. Jahn, R. Hey & H. T. Grahn. *Roughness of heterointerfaces and averaging effects by excitons: Interpretation of cathodoluminescence images*: Phys. Rev. B, vol. 52, no. 16, pages 12207–12211, Oct 1995.
- [Saiki 98] Toshiharu Saiki, Kenichi Nishi & Motoichi Ohtsu. *Low Temperature Near-Field Photoluminescence Spectroscopy of InGaAs Single Quantum Dots*. Japanese Journal of Applied Physics, vol. 37, no. Part 1, No. 3B, pages 1638–1642, 1998.
- [Saint-Girons 06a] G. Saint-Girons, N. Chauvin, A. Michon, G. Patriarche, G. Beaudoin, G. Bremond, C. Bru-Chevallier & I. Sagnes. *Microphotoluminescence of exciton and biexciton around 1.5 μm from a single InAs/InP(001) quantum dot*. Appl. Phys. Lett., vol. 88, no. 13, pages 133101–3, March 2006.
- [Saint-Girons 06b] G. Saint-Girons, A. Michon, I. Sagnes, G. Beaudoin & G. Patriarche. *Thermodynamic description of the competition between quantum dots and quantum dashes during metalorganic vapor phase epitaxy in the InAs/InP(001) system: Experiment and theory*. Phys. Rev. B, vol. 74, no. 24, pages 245305–5, December 2006.
- [Saito 01] Hideaki Saito, Kenichi Nishi & Sigeo Sugou. *Ground-state lasing at room temperature in long-wavelength InAs quantum-dot lasers on InP(311)B substrates*. Appl. Phys. Lett., vol. 78, no. 3, pages 267–269, January 2001.
- [Salem 01] B. Salem, J. Olivares, G. Guillot, G. Bremond, J. Brault, C. Monat, M. Gendry, G. Hollinger, F. Hassen and H. Maaref. *Optical properties of self-assembled InAs quantum islands grown on InP(001) vicinal substrates*. Appl. Phys. Lett., vol. 79, no. 26, pages 4435–4437, December 2001.
- [Salem 05] B. Salem, V. Aimez, D. Morris, A. Turala, P. Regreny & M. Gendry. *Band gap tuning of InAs/InP quantum sticks using low-energy ion-implantation-induced intermixing*. Appl. Phys. Lett., vol. 87, no. 24, pages 241115–3, December 2005.
- [Santori 02] Charles Santori, David Fattal, Jelena Vuckovic, Glenn S. Solomon & Yoshihisa Yamamoto. *Indistinguishable photons from a single-photon device*. Nature, vol. 419, no. 6907, pages 594–597, October 2002.
- [Sauerwald 05] A. Sauerwald, T. Kummell, G. Bacher, A. Somers, R. Schwertberger, J. P. Reithmaier & A. Forchel. *Size control of InAs quantum dashes*. Appl. Phys. Lett., vol. 86, no. 25, pages 253112–3, June 2005.
- [Schwertberger 03] R. Schwertberger, D. Gold, J. P. Reithmaier & A. Forchel. *Epitaxial growth of 1.55 μm emitting InAs quantum dashes on InP-based heterostructures by GS-*

MBE for long-wavelength laser applications. J. Cryst. Growth, vol. 251, no. 1-4, pages 248–252, April 2003.

[Sek 09] G. Sek, P. Podemski, A. Musia, J. Misiewicz, S. Hein, S. Höfling & A. Forchel. *Exciton and biexciton emission from a single InAs/InP quantum dash*. Journal of Applied Physics, vol. 105, no. 8, page 086104, 2009.

[Shchukin 04] Vitaly A. Shchukin, Nikolai N. Ledentsov & Dieter Bimberg. *Epitaxy of nanostructures*. NanoScience and Technology. Springer, 2004.

[Sheng 05] Weidong Sheng & Pawel Hawrylak. *Atomistic theory of electronic and optical properties of InAs/InP self-assembled quantum dots on patterned substrates*. Phys. Rev. B, vol. 72, no. 3, page 035326, July 2005.

[Shields 07] Andrew J. Shields. *Semiconductor quantum light sources*. Nature Photonics, vol. 1, no. 4, pages 215–223, April 2007.

[Shiramine 07] Ken-ichi Shiramine, Shunichi Muto, Tamaki Shibayama, Norihito Sakaguchi, Hideki Ichinose, Tamotsu Kozaki, Seichi Sato, Yoshiaki Nakata, Naoki Yokoyama & Masafumi Taniwaki. *Tip artifact in atomic force microscopy observations of InAs quantum dots grown in Stranski–Krastanow mode*. Journal of Applied Physics, vol. 101, no. 3, page 033527, 2007.

[Siegert 05] J. Siegert, S. Marcinkevicius & Q. X. Zhao. *Carrier dynamics in modulation-doped InAs/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 72, no. 8, pages 085316–7, August 2005.

[Singh 09] Ranber Singh & Gabriel Bester. *Nanowire Quantum Dots as an Ideal Source of Entangled Photon Pairs*. Physical Review Letters, vol. 103, no. 6, page 063601, 2009.

[Skolnick 04] M. S. Skolnick & D. J. Mowbray. *Recent developments in the physics and applications of self-assembled quantum dots*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, vol. 21, no. 2-4, pages 155–163, March 2004.

[Sobiesierski 97] Z. Sobiesierski, D. I. Westwood, P. J. Parbrook, K. B. Ozanyan, M. Hopkinson & C. R. Whitehouse. *As/P exchange on InP(001) studied by reflectance anisotropy spectroscopy*. Appl. Phys. Lett., vol. 70, no. 11, pages 1423–1425, 1997.

[Solomon 01] G. S. Solomon, M. Pelton & Y. Yamamoto. *Single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity*. Phys. Rev. Lett., vol. 86, pages 3903–3906, 2001.

[Song 05] H. Z. Song, T. Usuki, S. Hirose, K. Takemoto, Y. Nakata, N. Yokoyama & Y. Sakuma. *Site-controlled photoluminescence at telecommunication wavelength from InAs/InP quantum dots*. Appl. Phys. Lett., vol. 86, no. 11, pages 113118–3, March 2005.

[Song 06a] H. Song, T. Usuki, T. Ohshima, Y. Sakuma, M. Kawabe, Y. Okada, K. Takemoto, T. Miyazawa, S. Hirose, Y. Nakata, M. Takatsu & N. Yokoyama. *Site-controlled quantum dots fabricated using an atomic-force microscope assisted technique*. Nanoscale Research Letters, vol. 1, no. 2, pages 160–166, December 2006.

[Song 06b] H. Z. Song, T. Usuki, Y. Nakata, N. Yokoyama, H. Sasakura & S. Muto. *Formation of InAs/GaAs quantum dots from a subcritical InAs wetting layer: A reflection*

high-energy electron diffraction and theoretical study. Physical Review B, vol. 73, no. 11, page 115327, 2006.

[Stangl 04] J. Stangl, V. Holy & G. Bauer. *Structural properties of self-organized semiconductor nanostructures*. Reviews of Modern Physics, vol. 76, no. 3, page 725, 2004.

[Stevenson 02] R. M. Stevenson. *Quantum dots as a photon source for passive quantum key encoding*. Phys. Rev. B, vol. 66, pages 081302–, 2002.

[Stevenson 06] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie & A. J. Shields. *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*. Nature, vol. 439, no. 7073, pages 179–182, January 2006.

[Strauf 07] Stefan Strauf, Nick G. Stoltz, Matthew T. Rakher, Larry A. Coldren, Pierre M. Petroff & Dirk Bouwmeester. *High-frequency single-photon source with polarization control*. Nat Photon, vol. 1, no. 12, pages 704–708, December 2007.

[Streetman 99] Ben Streetman & Sanjay Banerjee. *Solid state electronic devices*. Prentice Hall, 5th edition, 1999.

[Sun 00] Zhongzhe Sun, Ju Wu, Yonghai Chen, Fengqi Liu, Ding Ding, Yuefa Li, Bo Xu & Zhanguo Wang. *The effect of substrate orientation on the morphology of InAs nanostructures on (001) and (11n)A/B (n=1-5) InP substrates*. Journal of Crystal Growth, 218 (2000), 203-208.

[Sun 04] Jie Sun, Peng Jin & Zhan-Guo Wang. *Extremely low density InAs quantum dots realized in situ on (100) GaAs*. Nanotechnology, vol. 15, no. 12, pages 1763–1766, 2004.

[Sze 81] S. Sze. *Physics of semiconductor devices*. John Wiley & Sons, New York, NY, 2nd ed. edition, 1981.

[Tabata 94] A. Tabata, T. Benyattou, G. Guillot, M. Gendry, G. Hollinger & P. Viktorovitch. *Optical properties of InAs/InP surface layers formed during the arsenic stabilization process*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, vol. 12, no. 4, pages 2299–2304, 1994. échange As/P, formation couche InAs 2D.

[Takagahara 89] T. Takagahara. *Biexciton states in semiconductor quantum dots and their nonlinear optical properties*. Phys. Rev. B, vol. 39, no. 14, pages 10206–10231, May 1989.

[Takemoto 04a] Kazuya Takemoto, Yoshiki Sakuma, Shinichi Hirose, Tatsuya Usuki & Naoki Yokoyama. *Observation of exciton transition in 1.3-1.55 μm band from single InAs/InP quantum dots in mesa structure*. Jpn. J. Appl. Phys., Part 2, vol. 43, no. 3A, pages L349–L351, March 2004.

[Takemoto 04b] Kazuya Takemoto, Yoshiki Sakuma, Shinichi Hirose, Tatsuya Usuki, Naoki Yokoyama, Toshiyuki Miyazawa, Motomu Takatsu & Yasuhiko Arakawa. *Non-classical Photon Emission from a Single InAs/InP Quantum Dot in the 1.3 μm Optical-Fiber Band*. Jpn. J. Appl. Phys., Part 2, vol. 43, no. 7B, pages L993–L995, January 2004.

- [Tartakovskii 04] A. I. Tartakovskii, M. N. Makhonin, I. R. Sellers, J. Cahill, A. D. Andreev, D. M. Whittaker, J-P. R. Wells, A. M. Fox, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, K. M. Groom, M. J. Steer, H. Y. Liu & M. Hopkinson. *Effect of thermal annealing and strain engineering on the fine structure of quantum dot excitons*. Phys. Rev. B, vol. 70, no. 19, pages 193303–4, November 2004.
- [Taskinen 97] M. Taskinen, M. Sopanen, H. Lipsanen, J. Tulkki, T. Tuomi & J. Ahopelto. *Self-organized InAs islands on (100) InP by metalorganic vapor-phase epitaxy*. Surface Science, vol. 376, no. 1-3, pages 60–68, April 1997.
- [Tersoff 93] J. Tersoff & R. M. Tromp. *Shape transition in growth of strained islands: Spontaneous formation of quantum wires*. Phys. Rev. Lett., vol. 70, no. 18, pages 2782–2785, 1993.
- [Tersoff 94] J. Tersoff & F. K. LeGoues. *Competing relaxation mechanisms in strained layers*. Phys. Rev. Lett., vol. 72, no. 22, pages 3570–, May 1994.
- [Thon 09] Susanna M. Thon, Matthew T. Rakher, Hyochul Kim, Jan Gudat, William T. M. Irvine, Pierre M. Petroff & Dirk Bouwmeester. *Strong coupling through optical positioning of a quantum dot in a photonic crystal cavity*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 11, page 111115, 2009.
- [Tranvouez 05] Edern Tranvouez. *Nanolithographie par anodisation locale en microscopie à force atomique sur le phosphore d'indium pour des applications optoélectroniques*. PhD thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2005.
- [Troyon 07] M. Troyon & K. Smaali. *Scanning near-field electron beam induced current microscopy: Application to III-V heterostructures and quantum dots*. Applied Physics Letters, vol. 90, no. 21, page 212110, 2007.
- [Turala 07] Artur Turala. *Croissance localisée de boîtes quantiques d'InAs sur une surface nanostructurée d'InP(001) pour une application en composants photoniques*. PhD thesis, Institut des Nanotechnologie de Lyon - Ecole Centrale de Lyon, 2007.
- [Turala 09] Artur Turala, Philippe Regreny, Pedro Rojo-Romeo & Michel Gendry. *Localized growth of InAs quantum dots on nanopatterned InP(001) substrates*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 5, page 051109, 2009.
- [Ulloa 07] J. M. Ulloa, C. Celebi, P. M. Koenraad, A. Simon, E. Gapihan, A. Letoublon, N. Bertru, I. Drouzas, D. J. Mowbray, M. J. Steer & M. Hopkinson. *Atomic scale study of the impact of the strain and composition of the capping layer on the formation of InAs quantum dots*. Journal of Applied Physics, vol. 101, no. 8, page 081707, 2007.
- [Uskov 98] A. V. Uskov, J. McInerney, F. Adler, H. Schweizer & M. H. Pilkuhn. *Auger carrier capture kinetics in self-assembled quantum dot structures*. Applied Physics Letters, vol. 72, no. 1, pages 58–60, 1998.
- [Walters 01] Robert J. Walters, G. P. Summers, S. R. Messenger, M. J. Romero, M. M. Al-Jassim, R. Garcia, D. Araujo, A. Freundlich, F. Newman & M. F. Vilela. *Electron beam induced current and cathodoluminescence study of proton irradiated InAs_xP_{1-x}/InP quantum-well solar cells*. Journal of Applied Physics, vol. 90, no. 6, pages 2840–2846, 2001.

- [Walther 00] C. Walther, W. Hoerstel, H. Niehus, J. Erxmeyer & W. T. Masselink. *Growth, structural, and electrical investigation of self-assembled InAs quantum wires on (0 0 1)InP*. J. Cryst. Growth, vol. 209, no. 4, pages 572–580, February 2000.
- [Wang 09] Hao Wang, Jiayue Yuan, Torsten Rieger, Peter J. van Veldhoven, Peter Nouwens, Tom J. Eijkemans, Tjibbe de Vries, Barry Smalbrugge, Erik Jan Geluk & Richard Nötzel. *Distribution control of 1.55 μm InAs quantum dots down to small numbers on truncated InP pyramids grown by selective area metal organic vapor phase epitaxy*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 14, page 143103, 2009.
- [Warburton 02] Richard J. Warburton. *Self-assembled semiconductor quantum dots*. Contemporary Physics, vol. 43, no. 5, pages 351–364, 2002.
- [Warwick 91] C. A. Warwick. *Cathodoluminescence quantum well studies*. Le Journal de Physique IV, vol. 01, pages C6–117–123, December 1991.
- [Warwick 92] Colin A. Warwick & Rose F. Kopf. *Microscopic thickness variation of macroscopically uniform quantum wells*. Applied Physics Letters, vol. 60, no. 3, pages 386–388, 1992.
- [Yacobi 90] B. G. Yacobi & D. B. Holt. *Cathodoluminescence microscopy of inorganic solids*. Plenum Press, New York, London, 1990.
- [Yang 01] Haeyeon Yang, P. Ballet & G. J. Salamo. *Formation of quantum wires and dots on InP(001) by As/P exchange*. J. Appl. Phys., vol. 89, no. 12, pages 7871–7874, June 2001.
- [Yoon 99] Sukho Yoon, Youngboo Moon, Tae-Wan Lee, Euijoon Yoon & Young Dong Kim. *Effects of As/P exchange reaction on the formation of InAs/InP quantum dots*. Appl. Phys. Lett., vol. 74, no. 14, pages 2029–2031, April 1999.
- [Yoshie 04] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin & D. G. Deppe. *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*. Nature, vol. 432, no. 7014, pages 200–203, November 2004.
- [Young 05] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii & M. S. Skolnick. *Inversion of exciton level splitting in quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 72, no. 11, page 113305, Sep 2005.
- [Young 06] Robert J Young, R Mark Stevenson, Paola Atkinson, Ken Cooper, David A Ritchie & Andrew J Shields. *Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots*. New Journal of Physics, vol. 8, no. 2, page 29, 2006.
- [Yuan 02] Z. Yuan. *Electrically driven single photon source*. Science, vol. 295, pages 102–105, 2002.
- [Zarem 89] H. A. Zarem, P. C. Sercel, J. A. Lebens, L. E. Eng, A. Yariv & K. J. Vahala. *Direct determination of the ambipolar diffusion length in GaAs/AlGaAs heterostructures by cathodoluminescence*. Appl. Phys. Lett., vol. 55, no. 16, pages 1647–1649, October 1989.

[Zhuang 00] Q. D. Zhuang, S. F. Yoon, H. Q. Zheng & K. H. Yuan. *Growth of self-organized InAs quantum dots on InP by solid-source molecular beam epitaxy*. J. Cryst. Growth, vol. 216, no. 1-4, pages 57–61, June 2000.

[Zhuang 01] Q. D. Zhuang, S. F. Yoon & H. Q. Zheng. *Arsenic/phosphorus exchange and wavelength tuning of in situ annealed InAs/InP quantum dot superlattice*. Solid State Commun., vol. 117, no. 8, pages 465–469, February 2001.

[Zinke-Allmang 92] Martin Zinke-Allmang, Leonard C. Feldman & Marcia H. Grabow. *Clustering on surfaces*. Surface Science Reports, vol. 16, no. 8, pages 377 – 463, 1992.

[Zolotaryov 07] A. Zolotaryov, A. Schramm, Ch. Heyn & W. Hansen. *InAs-coverage dependence of self-assembled quantum dot size, composition, and density*. Applied Physics Letters, vol. 91, no. 8, page 083107, 2007.

[Zwiller 99] Valéry Zwiller, Mats-Erik Pistol, Dan Hessman, Rolf Cederström, Werner Seifert & Lars Samuelson. *Time-resolved studies of single semiconductor quantum dots*. Physical Review B, vol. 59, no. 7, pages 5021–5025, 1999.

Publications et communications orales

• Publications

Articles de journaux avec comité de lecture

1. F. Bordas, C. Seassal, **E Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry, P. Viktorovich, M. J. Steel and A. Rahmani, "Room temperature low-threshold InAs/InP quantum dot single mode photonic crystal microlasers at 1.5 μm using cavity-confined slow light", *Optics Express*, Vol. **17**, Issue 7, pp. 5439-5445 (2009). Also selected in *Virtual Journal of Nanoscale Science and Technology* Vol. **19**, Issue 18, 4 May 2009. DOI: [10.1364/OE.17.005439](https://doi.org/10.1364/OE.17.005439)
2. **E. Dupuy**, D. Morris, N. Pauc, V. Aimez, M. Gendry, D. Drouin, "Carrier transport properties in the vicinity of single self assembled quantum dots determined by low-voltage cathodoluminescence imaging", *Appl. Phys. Lett.* **94**, 022113 (2009). DOI: [10.1063/1.3072613](https://doi.org/10.1063/1.3072613)
3. N. Chauvin, E. Tranvouez, G. Bremond, G. Guillot, C. Bru-Chevallier, **E. Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry and G. Patriarche, "Neutral and charged multi-exciton complexes in single InAs quantum dots grown on InP(001)", *Nanotechnology* **17**, 1831-1834 (2006). DOI: [10.1088/0957-4484/17/8/004](https://doi.org/10.1088/0957-4484/17/8/004)
4. **E. Dupuy**, P. Regreny, Y. Robach, M. Gendry, N. Chauvin, E. Tranvouez, G. Bremond, C. Bru-Chevallier, G. Patriarche, "Low density of self-assembled InAs quantum dots grown by solid-source molecular beam epitaxy on InP(001)", *Appl. Phys. Lett.* **89**, 123112 (2006). Also selected in *Virtual Journal of Nanoscale Science and Technology* **14**, Issue 14 (2006). DOI: [10.1063/1.2354010](https://doi.org/10.1063/1.2354010)

Comptes-rendus de conférences

1. **E. Dupuy**, G. Xu, N. Chauvin, P. Regreny, Y. Robach, C. Bru-Chevallier, M. Gendry, N. Pauc, D. Drouin, D. Morris, G. Patriarche, "Influence of surface reconstructions on the shape of InAs quantum dots grown on InP(001)", IEEE CNF, 20th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM 2008), 25-29 May 2008 at Versailles, France. DOI: [10.1109/ICIPRM.2008.4702986](https://doi.org/10.1109/ICIPRM.2008.4702986)
2. N. Chauvin, A. Fiore, C. Seassal, B. Ben Bakir, **E. Dupuy**, M. Gendry, P. Viktorovitch, "Enhancement of the emission of single InAs quantum dashes in a 2.5D photonic crystal structure at 1550 nm", 20th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM 2008), 25-29 May 2008 at Versailles, France. DOI: [10.1109/ICIPRM.2008.4703015](https://doi.org/10.1109/ICIPRM.2008.4703015)
3. N. Chauvin, G. Bremond, C. Bru-Chevallier, **E. Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry, "Shape and size effects on multi-exciton complexes in single InAs quantum dots grown on a InP(100) substrate", *Physica Status Solidi* Volume **3**, Issue 11, 3912-3915 (2006). DOI: [10.1002/pssc.200671615](https://doi.org/10.1002/pssc.200671615)
4. N. Chauvin, E. Tranvouez, G. Bremond, G. Guillot, C. Bru-Chevallier, **E. Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry, "Multi-exciton complexes in single InAs quantum dots grown on InP(001) substrate", 2005 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, (IPRM 2005), p 273-275. DOI: [10.1109/ICIPRM.2005.1517477](https://doi.org/10.1109/ICIPRM.2005.1517477)

• Communications orales

Conférences internationales

1. **E. Dupuy**, N. Pauc, D. Drouin, G. Xu, M. Gendry, D. Morris, “*High Resolution Imaging of InAs/InP Single Quantum Dots by Low-Voltage Cathodoluminescence*”, ThA1.: Advanced Processing and Materials Properties, 21st International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (LEOS-IPRM09), 10-14 May 2009 at Newport Beach Marriott Hotel and Spa, Newport Beach, California, USA. DOI:10.1109/ICIPRM.2009.5012437
2. **R. Kubota**, D. Mizuno, T. Saiki, **E. Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry, “*Near-field Imaging Spectroscopy of Low Density InAs/InP Quantum Dots*”, MB2: Quantum Dots and Nanostructure Lasers, 21st International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (LEOS-IPRM09), 10-14 May 2009 at Newport Beach Marriott Hotel and Spa, Newport Beach, California, USA. DOI:10.1109/ICIPRM.2009.5012429
3. **E. Dupuy**, N. Pauc, D. Morris, M. Gendry, V. Aimez, **D. Drouin**, “*Low-voltage cathodoluminescence microscopy and spectroscopy of diluted InAs/InP self-assembled quantum dots*”, N4-S4.2, Australian Material Research Society – International Conference on Electronic Materials 2008 (ICEM 2008) 28 July-1st august 2008 at Sydney, Australia.
4. **M. Gendry**, **E. Dupuy**, P. Regreny, “*Shape and density control of InAs/InP (001) quantum islands grown by SSMBE*”, Long Wavelength Quantum Dot Workshop, 5-6 Juillet 2007, Rennes, France.
5. **D. Lagarde**, A. Balocchi, X. Marie, **E. Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry, “*Picosecond carrier dynamics in diluted InAs/InP(001) QDs*”, Long Wavelength Quantum Dot Workshop, 5-6 Juillet 2007, Rennes, France.
6. **F. Bordas**, C. Seassal, **E. Dupuy**, P. Regreny, M. Gendry, M. J. Steel, A. Rahmani, “*Room-Temperature InAs/InP Quantum-Dot Photonic Crystal Microlasers Using Cavity-Confined Slow Light*”, Conference on Lasers and Electro-Optics 2007 (CLEO 2007), paper: CThB4. DOI:10.1109/CLEO.2007.4452685

Conférences nationales

1. **E. Dupuy**, N. Pauc, N. Chauvin, G. Patriarche, P. Regreny, G. Saint-Girons, D. Drouin, V. Aimez, C. Bru-Chevallier, M. Gendry, D. Morris, “*Luminescence properties of single InAs/InP(001) quantum dots grown by solid source molecular beam epitaxy*”, Session 10, Thirteenth Canadian Semiconductor Technology Conference (CSTC 2007), 14-17 August 2007, Montréal, Québec, Canada.