



**HAL**  
open science

# Propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium

Ronan Tremblay

► **To cite this version:**

Ronan Tremblay. Propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium. Optique / photonique. INSA de Rennes, 2018. Français. NNT : 2018ISAR0026 . tel-02100960v2

**HAL Id: tel-02100960**

**<https://hal.science/tel-02100960v2>**

Submitted on 9 May 2019

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

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

# THESE DE DOCTORAT DE

L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES  
APPLIQUEES RENNES  
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 596  
Matière, Molécules, Matériaux  
Spécialité : Photonique

Par

**Ronan TREMBLAY**

**Propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium**

**Soutenance soutenue à Rennes, le 21/11/2018**  
**Unité de recherche :** INSTITUT FOTON (UMR 6082 / CNRS)  
**Thèse N° :** 18ISAR 27 / D18 - 27

## **Rapporteurs avant soutenance :**      **Composition du Jury :**

Phillippe CHRISTOL  
Prof. des Universités, IES, Université de Montpellier 2  
Xavier WALLART  
Directeur de recherche CNRS, HDR, IEMN, Lille

Nicolas BERTRU  
Prof. des Universités, Institut FOTON, INSA de Rennes / Président  
Phillippe CHRISTOL  
Prof. des Universités, IES, Université de Montpellier 2 / Rapporteur  
Xavier WALLART  
Directeur de recherche CNRS, HDR, IEMN, Lille / Rapporteur  
Eva MONROY  
Dr., HDR, INAC, CEA Grenoble / Examineur  
Charles CORNET  
MCF, HDR, Institut FOTON, INSA de Rennes, Directeur de thèse  
Yoan LEGER  
Chargé de recherche CNRS, Institut FOTON, Co-encadrant de thèse

Intitulé de la thèse :

Propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures  
et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium

Ronan TREMBLAY

En partenariat avec :





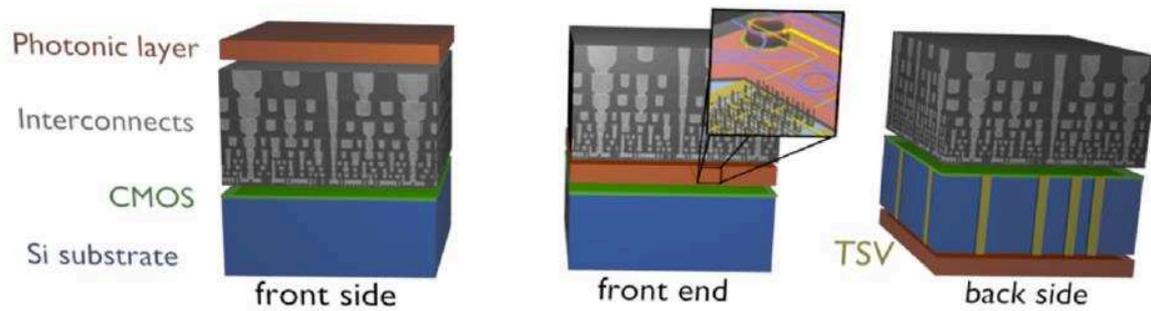
## Sommaire

Introduction.....	1
Références de l'introduction :.....	5
Chapitre 1 Sources lasers sur silicium .....	7
1.1. Physique des lasers semi-conducteurs.....	7
1.2. Laser idéal pour l'intégration photonique sur puce silicium.....	13
1.2.1. Stratégies d'intégration III-V sur silicium .....	13
1.2.2. Zone active .....	22
1.2.3. Confinement optique et injection électrique.....	28
1.2.4. Laser GaP/Si.....	32
Références du chapitre 1 .....	42
Chapitre 2 Croissance et dopage de l'AlGaP .....	53
2.1. Introduction .....	53
2.2. Expériences.....	55
2.3. Propriétés générales de l'AlGaP .....	58
2.4. Morphologie de surface .....	61
2.5. Propriétés électriques .....	66
2.6. Etude du piégeage des porteurs par la DLTS.....	71
2.7. Conclusion .....	75
Références du chapitre 2 .....	77
Chapitre 3 Boîtes quantiques (In,Ga)As/GaP .....	79
3.1. Méthode d'analyse .....	81
3.1.1. Présentation de la méthode utilisée .....	81
3.1.2. Limitation de la méthode .....	88
3.2. Structure électronique du système de QDs (In,Ga)As/GaP.....	88
3.2.1. Contrainte et déformations : Concepts généraux.....	88
3.2.2. Structure électronique théorique .....	91
3.2.3. Identification expérimentale.....	97
3.2.4. Objectifs expérimentaux .....	106
3.3. Confinement quantique dans les QDs (In,Ga)As/GaP .....	106
3.3.1. Epaisseur d' (In,Ga)As déposée .....	106
3.3.2. Arrêt de croissance sous flux de P.....	112
3.4. Composition des QDs (In,Ga)As/GaP .....	116
3.4.1. Composition d'In des QDs (In,Ga)As/GaP .....	117
3.4.2. Rapport V/III .....	121

3.4.3.	Arrêt de croissance sous flux d'As.....	125
3.4.4.	Bilan sur l'optimisation d'un plan de QDs (In,Ga)As/GaP .....	131
3.4.5.	Encapsulation .....	134
3.5.	Empilement de QDs (In,Ga)As/GaP .....	141
3.6.	Conclusion et perspectives .....	146
	Références du chapitre 3 .....	148
Chapitre 4	Vers un dispositif laser.....	153
4.1.	Architecture laser .....	153
4.1.1.	Confinement optique .....	155
4.1.2.	Injection électrique .....	157
4.1.3.	Procédé technologique .....	158
4.2.	Pompage électrique.....	161
4.3.	Pompage optique .....	168
4.3.1.	QDs avec une faible composition d'In.....	168
4.3.2.	QDs avec une haute composition d'In .....	172
4.4.	Vers un laser pompé électriquement sur substrat Si .....	179
4.5.	Architecture et intégration laser pour les circuits photoniques intégrés .....	180
4.5.1.	Laser idéal pour l'intégration photonique sur puce Si .....	182
4.5.2.	Design du dispositif .....	183
	Références du chapitre 4 .....	187
Conclusion	.....	191
Annexes	.....	195
A.	Epitaxie par jet moléculaire .....	195
B.	Diffraction des rayons X .....	199
C.	Microscopie à force atomique .....	203
D.	Caractérisations électriques.....	207
E.	Caractérisations optiques.....	211
Publications	.....	215

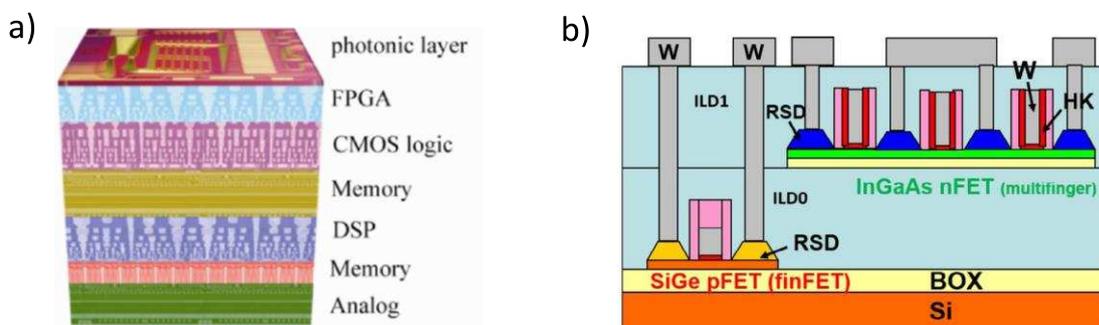
## Introduction

L'augmentation du nombre d'ordinateurs, de téléphones portables, de tablettes, de serveurs, de supercalculateurs, de consoles de jeux et autres objets connectés a entraîné une demande grandissante des besoins en stockage et échange de données [1]. Afin d'y faire face, les systèmes intégrés doivent se complexifier afin de satisfaire la demande [2]. Deux solutions ont été envisagées : l'augmentation du nombre de transistors qui est passé de deux [3] en 1976 à 10 millions [4] en 2015 et une hausse de la fréquence de travail des processeurs liée au nombre de tâches effectuées par secondes qui a augmenté de 20 MHz en 1980 à 3162 MHz en 2005 [5]. Ces deux solutions sont limitées respectivement par l'utilisation de la technologie CMOS elle-même et par le design des microprocesseurs. Pour passer outre ces limitations, la parallélisation qui consiste à partager la tâche à effectuer entre plusieurs processeurs composés d'un ou de multiples cœurs a été mise place [6], [7]. Cette méthode requiert un transfert de données important entre les cœurs et/ou clusters de cœurs. Cependant, l'efficacité énergétique de ces dispositifs reste encore à améliorer. Il existe deux types de dissipations d'énergies au sein des microprocesseurs : la dissipation statique qui est due aux courants de fuites des transistors au repos et la dissipation dynamique qui est liée aux tâches effectuées. Ces dissipations peuvent être minimisées par un meilleur design des composants logiques et l'utilisation d'algorithmes qui isolent de l'alimentation électrique les transistors au repos. Cependant, la majeure partie de l'énergie perdue dans les processeurs ne provient pas des transistors eux-mêmes mais des interconnexions électriques les reliant [8]. Grâce aux récents progrès de la photonique sur Si ces dernières années, l'utilisation d'interconnexions optiques sur puce est une voie prometteuse afin d'augmenter le rendement énergétique. L'utilisation conjointe de la photonique et de la microélectronique n'est pas une idée récente et a fait l'objet de discussions et de réflexions depuis 30 ans [9]–[11] mais son développement n'a été rendu possible que récemment avec par exemple la réalisation de composants photoniques intégrés sur Si compatibles CMOS [12]. La problématique reste entière sur le choix de la ou des sources lasers à utiliser au sein de cette couche photonique [13]. Il existe trois types de stratégies d'intégration (Fig. 0.1a) qui dépendent de la position de la couche photonique au sein de l'architecture multiprocesseurs 2D.



**Fig. 0.1 Schéma des trois configurations possibles pour la couche photonique au sein d'une architecture multiprocesseurs 2D. Figure issue de [14]**

Chaque stratégie a ses avantages et ses inconvénients [14] suivant la dissipation de la chaleur, le coût de fabrication et l'utilisation de connexions électriques verticales (Trough Silicon Vias, TSV) [15] nécessaires dans le cas « back side » (partie droite de la Fig. 0.1a). En superposant plusieurs substrats, on parle d'architecture 3D. Ainsi plusieurs fonctionnalités peuvent être réalisées à chaque niveau [16] comme illustré dans la Fig. 0.2a. De façon à s'affranchir de l'utilisation de TSV, les substrats utilisés pour les niveaux ajoutés sont à présent souvent supprimés [17], [18] comme illustré dans la Fig. 0.2b.



**Fig. 0.2 a) Schéma d'une architecture multiprocesseurs 3D avec une couche photonique. Figure issue de [14]. b) Schéma de réalisation d'une architecture 3D intégrée. Figure issue de [18].**

Dans ce contexte, le projet du labex CominLabs : 3D Optical Manycores a pour but l'étude de nouvelles solutions d'interconnexions optiques au sein d'une couche photonique de façon à améliorer par 2 ou 3 ordres de grandeur le rendement énergétique et le débit des interconnexions dans le cadre d'une architecture multi processeurs 3D sur puce. L'originalité du projet est la mise en relation de différentes communautés ayant des domaines de recherche variés comme l'architecture de calcul à haut rendement, les

systèmes reconfigurables sur puce, la transmission optique et les sources lasers semiconducteurs intégrées sur puce afin de combiner les différentes expertises et de proposer des solutions innovantes. Le projet est divisé en quatre défis regroupant trois laboratoires (l'institut FOTON, l'IRISA et l'INL) :

- Défi 1 : exploration de design pour une architecture multiprocesseurs 3D utilisant un réseau optique sur puce.
- Défi 2 : nouvelles sources lasers monolithiques intégrées sur silicium
- Défi 3 : modélisation de dispositifs photoniques et simulation de calcul dans le cadre d'une architecture 3D
- Défi 4 : nouvelles fonctionnalités optiques pour les transmissions sur puce et le traitement du signal

Cette thèse, réalisée à l'institut FOTON, s'inscrit dans le défi 2 dont l'objectif est la réalisation de sources lasers monolithiques intégrées. Les objectifs de cette thèse sont (i) d'étudier les propriétés des nanostructures à base de GaP pour l'obtention d'un émetteur à gap direct, (ii) de réaliser des sources lasers dans la filière GaP/Si, et (iii) d'analyser les performances des sources lasers actuellement intégrées ou potentiellement intégrables sur Si, au regard des performances attendues dans les microprocesseurs hybrides.

Le Chapitre 1 débute par un bref rappel sur la physique des lasers semiconducteurs avant de se focaliser sur les sources lasers III-V intégrées sur Si en discutant des méthodes d'intégration sur Si, du choix de la zone active, du confinement optique et de l'injection électrique. Parmi ces éléments, l'intérêt de l'approche monolithique GaP/Si ainsi que l'utilisation de boîtes quantiques (Quantum Dots, QDs) comme zones actives sont discutés. Enfin, un état de l'art de la croissance GaP/Si, des zones actives GaP et des réalisations lasers GaP sur Si est présenté.

Deux processus fondamentaux au sein des structures lasers sont le confinement optique et l'injection électrique. Ceux-ci sont assurés, dans notre cas, par des couches d'AlGaP entourant la zone active du laser. L'optimisation de ces couches est le sujet du Chapitre 2. La croissance et le dopage de ces couches sont étudiés en fonction de la température, de la vitesse et du rapport des flux d'éléments utilisés lors de la croissance avec pour but d'obtenir une surface de qualité optique et des niveaux de dopage activés élevés.

Dans le Chapitre 3, les propriétés optiques des QDs (In,Ga)As/GaP utilisées comme zone active dans nos structures lasers GaP sont étudiées avec comme but l'obtention d'une transition optique directe par un choix judicieux des paramètres de croissances. Afin d'y parvenir, une méthode d'analyse est mise en place pour suivre l'évolution de la photoluminescence des QDs en fonction de la température et de la densité d'excitation. La nature des transitions ainsi identifiées ainsi que leur évolution en fonction des paramètres de croissance sont clarifiées. Enfin, une étude préliminaire sur l'empilement des plans de QDs (In,Ga)As/GaP est proposée.

Dans le Chapitre 4, l'architecture des structures lasers GaP est, tout d'abord, présentée avant de discuter l'absence d'effet laser dans les structures lasers destinées au pompage électrique. Afin de s'affranchir de la complexité des procédés technologiques nécessaires à l'injection électrique, l'étude insiste plus particulièrement sur les résultats obtenus sous pompage optique. Les structures lasers utilisées sont composées de plans de QDs (In,Ga)As/GaP optimisées en accord avec les conclusions du Chapitre 3. Enfin, dans le cadre d'une architecture de multiprocesseurs 3D, une comparaison des différentes sources lasers à l'état de l'art intégrées ou potentiellement intégrables sur Si est présentée.

## Références de l'introduction :

- [1] M. Hilbert et P. Lopez, « The World's Technological Capacity to Store, Communicate, and Compute Information », *Science*, vol. 332, n° 6025, p. 60-65, avr. 2011.
- [2] G. E. Moore, « Progress in digital integrated electronics », in *Electron Devices Meeting, 1975 International*, 1975, vol. 21, p. 11-13.
- [3] J. S. Kilby, « Invention of the integrated circuit », *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 23, n° 7, p. 648-654, juill. 1976.
- [4] K. Aingaran *et al.*, « M7: Oracle's Next-Generation Sparc Processor », *IEEE Micro*, vol. 35, n° 2, p. 36-45, mars 2015.
- [5] A. Danowitz, K. Kelley, J. Mao, J. P. Stevenson, et M. Horowitz, « CPU DB: Recording Microprocessor History », *Commun. ACM*, vol. 55, n° 4, p. 55-63, avr. 2012.
- [6] J. Diaz, C. Muñoz-Caro, et A. Niño, « A Survey of Parallel Programming Models and Tools in the Multi and Many-Core Era », *IEEE Transactions on Parallel and Distributed Systems*, vol. 23, n° 8, p. 1369-1386, août 2012.
- [7] K. Olukotun et L. Hammond, « The Future of Microprocessors », *Queue*, vol. 3, n° 7, p. 26-29, sept. 2005.
- [8] D. A. B. Miller, « Device Requirements for Optical Interconnects to Silicon Chips », *Proceedings of the IEEE*, vol. 97, n° 7, p. 1166-1185, juill. 2009.
- [9] J. W. Goodman, F. J. Leonberger, S.-Y. Kung, et R. A. Athale, « Optical interconnections for VLSI systems », *Proceedings of the IEEE*, vol. 72, n° 7, p. 850-866, juill. 1984.
- [10] M. R. Feldman, S. C. Esener, C. C. Guest, et S. H. Lee, « Comparison between optical and electrical interconnects based on power and speed considerations », *Applied Optics*, vol. 27, n° 9, p. 1742, mai 1988.
- [11] D. A. B. Miller, « Rationale and challenges for optical interconnects to electronic chips », *Proceedings of the IEEE*, vol. 88, n° 6, p. 728-749, juin 2000.
- [12] Y. Wan *et al.*, « Monolithically integrated InAs/InGaAs quantum dot photodetectors on silicon substrates », *Opt. Express, OE*, vol. 25, n° 22, p. 27715-27723, oct. 2017.
- [13] D. Liang et J. E. Bowers, « Recent progress in lasers on silicon », *Nat Photon*, vol. 4, n° 8, p. 511-517, août 2010.
- [14] C. Cornet, Y. Léger, et C. Robert, *Integrated Lasers on Silicon*. ISTE-Elsevier, 2016.
- [15] J. H. Lau et T. G. Yue, « Thermal management of 3D IC integration with TSV (through silicon via) », in *2009 59th Electronic Components and Technology Conference*, 2009, p. 635-640.
- [16] N. Solomon, « Three dimensional integrated circuits and methods of fabrication », US8136071B2, 13-mars-2012.
- [17] P. Batude *et al.*, « GeOI and SOI 3D monolithic cell integrations for high density applications », in *2009 Symposium on VLSI Technology*, 2006, p. 166-167.
- [18] V. Deshpande *et al.*, « DC and RF characterization of InGaAs replacement metal gate (RMG) nFETs on SiGe-OI FinFETs fabricated by 3D monolithic integration », *Solid-State Electronics*, vol. 128, p. 87-91, févr. 2017.



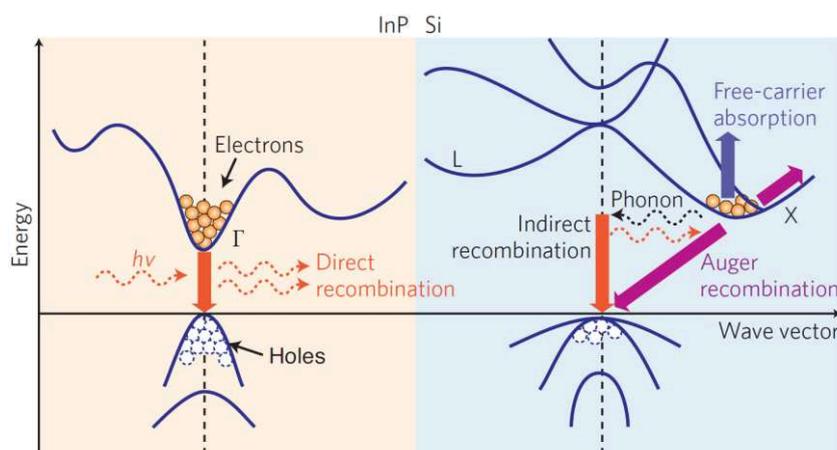
# Chapitre 1 Sources lasers sur silicium

Dans cette partie, nous rappellerons quelques généralités sur les lasers et plus spécifiquement les lasers semi-conducteurs en vue de leur intégration sur silicium. L'utilisation des semi-conducteurs pour la réalisation de lasers provient de la faible dégradation de leurs performances au cours du temps dans des conditions normales d'utilisations (humidité, etc.), de leur fiabilité et de leur compatibilité avec le monde industriel. La première démonstration de diode laser semi-conductrice à base de GaAs fut réalisée en 1962 [1]–[4].

## 1.1. Physique des lasers semi-conducteurs

Un laser, et plus spécifiquement un laser semi-conducteur, a besoin de deux éléments fondamentaux : (i) la zone active qui, d'une part va initier le signal optique par l'émission spontanée de lumière et d'autre part, l'amplifier à l'aide du processus d'émission stimulée (ii) une cavité résonante optique qui va confiner ce signal optique à travers des modes optiques et forcer son interaction successive avec la zone active.

Afin de caractériser les propriétés électroniques et optiques des semi-conducteurs, on utilise généralement leur structure de bande (ou diagramme d'énergie) qui est issue de la répétition d'une maille cristalline composée d'atomes élémentaires, et dépend donc du semi-conducteur utilisé. Ces diagrammes montrent les énergies accessibles à un électron ou un trou (absence d'électron) en fonction de leur vecteur d'onde comme présenté en Fig. 1.1.



**Fig. 1.1** Structure de bande et principaux mécanismes de recombinaisons pour un semi-conducteur direct comme l'InP (partie gauche) et un semi-conducteur indirect comme le Si (partie droite). Figure issue de [5].

A l'équilibre dans un semi-conducteur non dopé, le niveau de Fermi est dans la bande interdite du matériau. A  $T \neq 0$  K, la bande de valence est donc pratiquement pleine d'électrons alors que la bande de conduction est, quant à elle pratiquement vide. La probabilité d'occupation  $f$  d'un niveau d'énergie  $E(k)$  par un électron en fonction de la température est définie par une fonction de Fermi-Dirac :

$$f_{E(k)} = \left( 1 + e^{\frac{E(k)-F_0}{k_B T}} \right)^{-1} \quad (1.1)$$

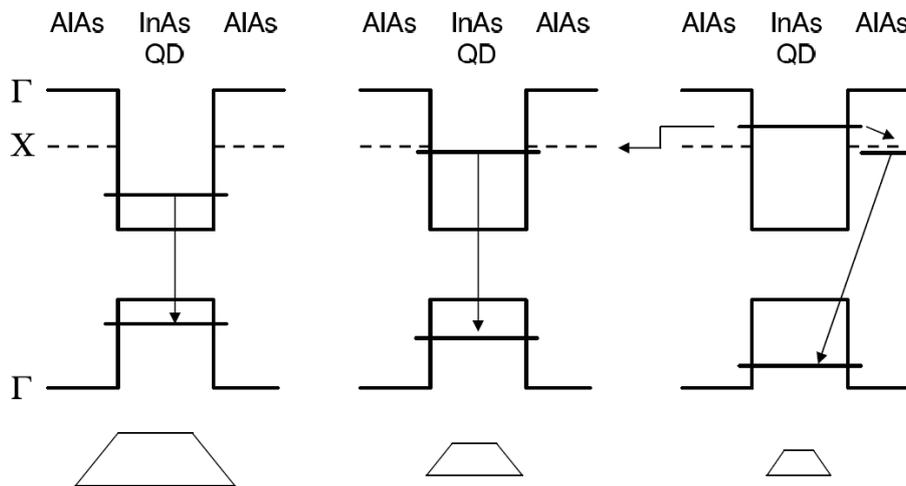
où  $T$  est la température en kelvins,  $F_0$  est le niveau de Fermi qui correspond à l'énergie potentielle de la population et  $k_B$ , la constante de Boltzmann. Cet équilibre peut être rompu par une excitation extérieure comme l'excitation optique. Dans ce cas, l'énergie est suffisante pour qu'un électron de la bande de valence puisse occuper un état de la bande de conduction. L'électron a donc laissé un état inoccupé dans la bande de valence. Cette absence d'électron est appelée trou et sa charge élémentaire est positive. Le vecteur d'onde du trou est de même norme que celui de l'électron mais de sens opposé. On définit ainsi les quasi-niveaux de Fermi pour la population de trous  $F_v$  et pour celle des électrons  $F_e$ . L'émission de photon est réalisée par recombinaison d'un électron provenant de la bande de la conduction (BC) et d'un trou issu de la bande de valence (BV). L'énergie de ce photon  $E_{photon}$  et donc sa longueur d'onde d'émission  $\lambda_{photon}$  est définie en première approximation comme la différence entre la BC et la BV que l'on appellera par la suite gap du semi-conducteur  $E_g$ . Ce gap évolue en fonction de la température en suivant une loi de Varshni [6]. Cette recombinaison liée à l'émission d'un photon doit satisfaire le principe de conservation de l'impulsion impliquant que :

$$\begin{aligned} E_i - E_f &= E_{photon} \\ k_i - k_f &= k_{photon} = \frac{2\pi}{\lambda_{photon}} \end{aligned} \quad (1.2)$$

avec  $i$  et  $f$  désignant l'état initial et final de l'électron. Le vecteur d'onde de l'électron est inférieur ou égale à  $k = \frac{\pi}{a}$  (en bord de la première zone de Brillouin) avec  $a$  le paramètre de maille du cristal. Comme les bandes interdites des semi-conducteurs classiques varient de 0,17 (InSb) à 5 eV (AlN) pour des paramètres de maille de 6,5 à 4,4 Å,  $k_{photon}$  est en première approximation négligeable devant le vecteur d'onde de l'électron. La conservation du vecteur est alors réduite à :

$$k_i = k_f \quad (1.3)$$

De ce fait, on peut distinguer deux catégories de semi-conducteurs (SCs) : (i) Les SCs directs, dont le minimum de la BC coïncide avec le maximum de la BV en  $k=0$  qu'on appelle aussi vallée  $\Gamma$ , comme l'InP (partie gauche de la Fig. 1.1) et (ii) les SCs indirects dont le minimum de BC n'est pas en  $\Gamma$  (partie droite de la Fig. 1.1). Dans ce cas, l'apport d'une troisième particule est nécessaire : un phonon afin de satisfaire le principe de conservation de l'impulsion. Dans le cas du Si ou encore du GaP, le minimum de la BC est en vallée X (partie droite de la Fig. 1.1) alors qu'il est en L pour le Ge. Les semi-conducteurs directs offrent une grande efficacité de recombinaison de paires électrons-trous car une troisième particule n'est pas nécessaire pour émettre un photon. Ils sont donc utilisés dans la plupart des lasers semi-conducteurs. Les SCs indirects comme le Si, le Ge et le GaP sont donc par nature peu enclins à être utilisés comme des émetteurs de lumières efficaces. Le caractère direct/indirect peut être plus complexe comme dans le cas de boîtes quantiques (Quantum Dots, QDs) InAs/AIAs. (Fig. 1.2).



**Fig. 1.2** Alignement de bandes de QDs InAs/AIAs en fonction de la hauteur des QDs. Figure issue de [7]. La transition optique passe de directe (partie gauche) à directe/indirecte de type-I (partie centrale) à indirecte de type-II par la réduction des dimensions des QDs.

Pour des QDs avec des dimensions importantes (partie la plus à gauche de la Fig. 1.2), la transition optique est directe au sein des QDs InAs avec les électrons et les trous en  $\Gamma$ . La transition est donc directe spatialement (transition type-I) et dans l'espace de vecteurs d'ondes. En diminuant les dimensions des QDs (partie centrale de la Fig. 1.2), la transition est toujours de type-I car les électrons et les trous sont dans le même matériau mais elle est qualifiée de transition directe/indirecte dans l'espace des vecteurs d'ondes car, dans la

bande de conduction, le niveau X et le niveau  $\Gamma$  sont à des énergies très proches. Pour des dimensions encore plus faibles (partie droite de la Fig. 1.2), la transition est désormais indirecte dans l'espace des vecteurs d'ondes car le niveau le plus bas est le niveau X pour les électrons. Les trous sont toujours bien confinés dans le niveau  $\Gamma$  de la bande de valence de l'InAs mais les électrons sont maintenant délocalisés dans un autre matériau (AlAs). Ce genre de configuration est appelé type-II. Dans le cas présenté, la transition type-II est indirecte dans l'espace des vecteurs d'ondes mais il existe des systèmes où ce n'est pas le cas comme les puits quantiques (Quantum Well, QW) InAs/GaSb [8]. Les différentes zones actives comme les QDs et les QWs seront présentées et discutées dans la partie 1.2.2.

Il existe une compétition entre les mécanismes radiatifs (émission d'un photon) et non – radiatifs (pas d'émission de photon comme l'effet Auger ou l'absorption par les porteurs libres) suivant la température et l'apport d'énergie extérieure. On peut caractériser ces mécanismes par leur temps de vie caractéristique respectifs et ainsi définir l'efficacité quantique interne  $\eta_i$  [9] des semi-conducteurs à partir de l'équation :

$$\eta_i = \frac{\tau_{nonrad}}{\tau_{nonrad} + \tau_{rad}} \quad (1.4)$$

avec  $\tau_{rad}$ , le temps de vie des mécanismes radiatifs et  $\tau_{nonrad}$ , le temps de vie des mécanismes non-radiatifs. Pour le Si, cette efficacité est très faible et est de l'ordre de  $10^{-6}$ .

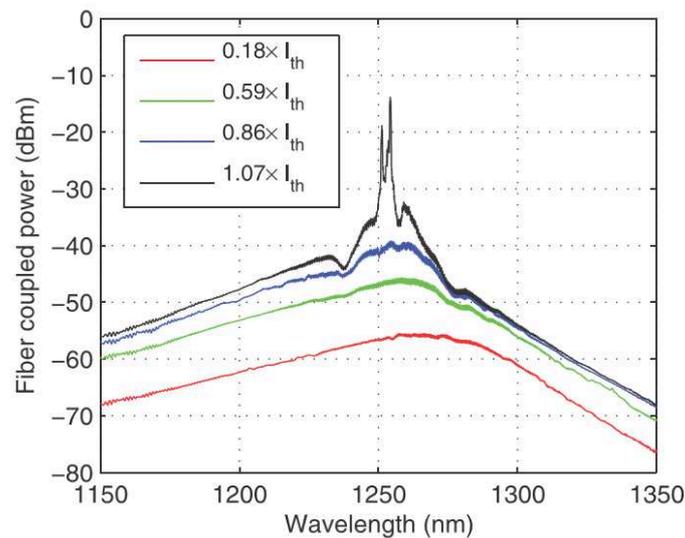
On distingue principalement deux types d'émission optique : (i) l'émission spontanée qui correspond à une émission de photons non corrélés entre eux et (ii) l'émission stimulée qui, au contraire, correspond à une émission cohérente de photons en phase et en énergie. Afin d'obtenir l'effet laser, il faut nécessairement un apport d'énergie extérieur à la zone active ou pompage, qui peut être optique ou électrique. En absence de pompage, on a :

$$F_e = F_v = F_0 \quad (1.5)$$

où  $F_e$  est le quasi-niveau de Fermi des électrons dans la BC et  $F_v$  est le quasi-niveau de Fermi des trous dans la BV. Pour un niveau de pompage élevé, la population de l'état excité devient plus importante que celle de la transition optique fondamentale. Ce processus s'appelle l'inversion de population ou condition de Bernard-Duraffourg [10] pour les semi-conducteurs. Cette condition se traduit par l'équation suivante :

$$F_e - F_v > h\nu \approx E_g \quad (1.6)$$

où  $h$  est la constante de Planck et  $\nu$ , la fréquence du photon. Il se produit un phénomène d'amplification optique. Le processus d'émission dominant est l'émission stimulée et la zone active présente un gain positif. La cavité optique impose un mécanisme de rétroaction à ce signal optique amplifié. De plus, cette même cavité permet une sélectivité spectrale grâce aux modes optiques confinés en son sein. Le seuil laser pour un ou plusieurs modes confinés est obtenu quand le gain de la zone active est supérieur aux pertes optiques : pertes induites par la cavité comme la réflectivité des miroirs, émission spontanée et processus de recombinaison non-radiatifs. Avant ce seuil, l'émission est incohérente et est dominée par l'émission spontanée (Spectre rouge, vert et bleu de la Fig. 1.3). Au-delà du seuil, l'émission est cohérente et est dominée par l'émission stimulée (Spectre noir de la Fig. 1.3).

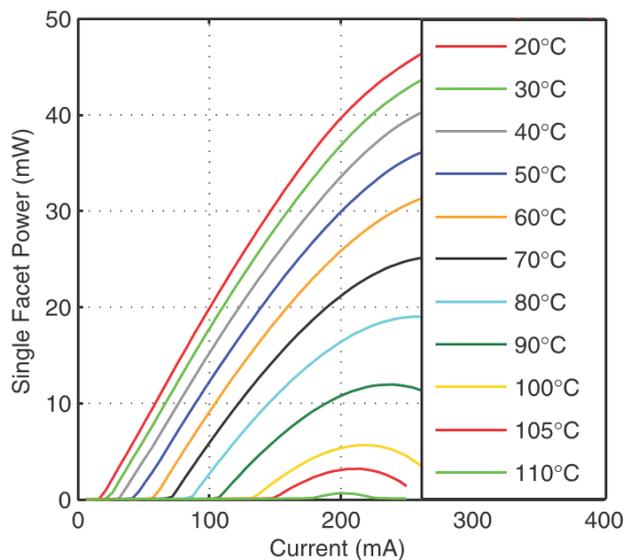


**Fig. 1.3 Spectre optique à température ambiante d'un laser GaAs sur Si pompé électriquement avant (courbes rouge, verte et bleu) et après le seuil laser (courbe noire). Figure Issue de [11].**

Expérimentalement, le seuil laser est observé en mesurant la puissance optique émise en fonction des porteurs injectés à l'aide d'un pompage optique ou électrique qui peut être continu ou pulsé. Le type de pompage et ses implications seront développés dans la partie 1.2.3.2. Ce seuil consiste en une rupture non-linéaire de l'évolution de la puissance optique émise en fonction des porteurs injectés. Du coefficient directeur de cette évolution, on peut en déduire l'efficacité quantique différentielle externe  $\eta_{ext}$  à l'aide de la formule suivante (qui est ici donnée pour un laser pompé électriquement en continu) :

$$\eta_{ext} = \frac{dP}{dI} \frac{e}{h\nu} \quad (1.7)$$

avec  $P$ , la puissance optique émise,  $I$ , le courant injecté et  $e$ , la charge élémentaire d'un électron. Cette efficacité ainsi que le seuil laser et la puissance optique permettent de définir le meilleur point de fonctionnement en fonction de l'application et de l'efficacité énergétique souhaitées. D'autres paramètres comme la géométrie du laser et le choix de la zone active sont évidemment à prendre en compte et sont discutés plus en détails dans les parties 1.2.2 et 1.2.3. Les lasers proposant des puissances optiques émises importantes ont généralement un seuil laser élevé et un design plus encombrant que les lasers optimisés pour émettre des puissances optiques moindres. On peut noter aussi la présence d'un seuil limite (roll off) au-delà duquel on peut observer des effets néfastes comme la saturation de la puissance optique émise, l'apparition de pertes additionnelles ou la compétition de mode. De plus, le comportement du laser évolue en fonction de la température avec une diminution significative de la puissance de sortie comme illustré en Fig. 1.4 .



**Fig. 1.4 Evolution de la puissance optique émise en fonction du courant électrique injecté pour différentes températures de fonctionnement d'un laser GaAs sur Si pompé électriquement. Une température maximale de fonctionnement de 110°C est donc définie. Figure issue de [11].**

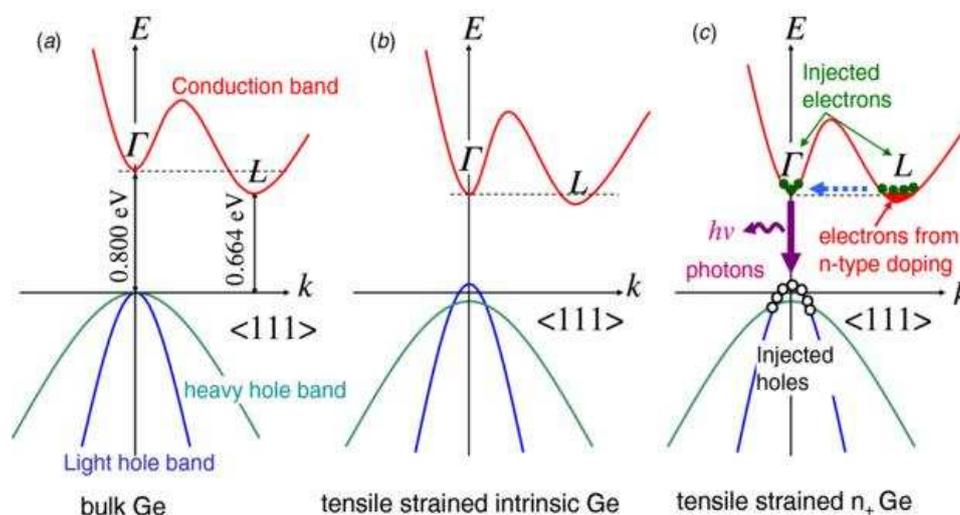
Enfin, ces lasers peuvent être modulés directement [12] ou de façon externe par un modulateur afin de transmettre des informations à l'aide de formats de modulation plus ou moins complexes (NRZ, QAM, etc.) [13].

Après le rappel de ces généralités sur le fonctionnement des lasers semi-conducteurs, passons maintenant à la description de ce que serait un laser idéal pour des applications comme le transfert de données sur puce entre clusters de microprocesseurs et plus généralement à des applications photoniques sur silicium.

## 1.2. Laser idéal pour l'intégration photonique sur puce silicium

### 1.2.1. Stratégies d'intégration III-V sur silicium

Comme évoqué plus en détails dans la partie 1, le silicium avec son gap indirect est par nature peu enclin à être utilisé comme un émetteur de lumière efficace malgré les avancées prometteuses de solutions comme l'utilisation du confinement quantique [14], de l'effet Raman [15], du dopage avec des terres rares [16] et de l'incorporation d'éléments du groupe IV comme le Ge [17] et le Sn [18]. Prenons le cas du Ge ; une véritable ingénierie de structure de bande peut être réalisée en utilisant les contraintes et le dopage afin de réduire la différence d'énergie entre la bande  $\Gamma$  et la bande L, comme présentée dans la Fig. 1.5, afin de favoriser une transition optique efficace et directe.



**Fig. 1.5 Ingénierie de structure de bande du Ge avec sa structure de bande non contrainte (a) et contrainte (b). Dopage n du Ge entraînant le remplissage de la bande L et forçant les électrons injectés à être dans la vallée  $\Gamma$  afin de favoriser une transition optique efficace (c). Figure issue de [19].**

Malgré la difficulté d'obtenir des lasers à base de Si fonctionnant en continu à température ambiante avec un seuil suffisamment faible, l'omniprésence du Si dans l'industrie micro-électronique en fait une plateforme de choix pour la photonique sur puce. Cette plateforme offre la possibilité d'utiliser toute la maturité de la technologie CMOS et

des réalisations de la photonique sur Si [20] en terme de modulateurs, de photo-détecteurs et de guides d'ondes pour réaliser de véritables circuits intégrés photoniques. L'élément de base de ces circuits est le silicium sur isolant (Silicon On Insulator, SOI) qui se compose d'une couche de Si et de SiO<sub>2</sub> sur substrat Si. Il fut développé, à la base, pour servir d'isolant et réduire les capacités parasites pour les composants électroniques. En photonique, la différence d'indice entre le Si et le SiO<sub>2</sub> ( $\Delta n=2$  à  $1,55 \mu\text{m}$ ) permet un confinement efficace de la lumière pour des longueurs d'ondes au-delà de la fenêtre de transparence du Si ( $1,1 \mu\text{m}$ ) et correspondant aux longueurs d'ondes standards des télécommunications :  $1,3$  et  $1,5 \mu\text{m}$ . On trouve aussi des guides Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/SiO<sub>2</sub> pour les longueurs d'ondes visibles :  $653,8 \text{ nm}$  et  $780 \text{ nm}$  [21].

Malgré les propriétés intéressantes d'émissions [22], [23] et de détections (rayons X et  $\gamma$ ) [24] des semi-conducteurs II-VI, leur intégration sur Si a été peu étudiée malgré des travaux intéressants réalisés en épitaxie par jets moléculaires (Molecular Beam Epitaxy, MBE) [25] et en épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, MOVPE) [26], [27] à cause du coût et de la difficulté d'obtenir des couches épaisses de qualité. Dans cette thèse, nous nous restreindrons donc à l'intégration de semi-conducteur III-V sur Si.

Les semi-conducteurs III-V comme le GaAs et l'InP ont un gap direct et sont utilisés pour réaliser des lasers commerciaux depuis plus de 50 ans. La maîtrise de l'interface semi-conductrice III-V/Si est donc une étape primordiale pour l'intégration photonique sur puce. On distingue deux types de méthodes : (i) l'approche monolithique ou la croissance directe des semi-conducteurs III-V sur le Si et (ii) le collage de semi-conducteurs III-V sur Si, détaillés ci-après. Cette interface a deux rôles primordiaux : d'une part assurer le couplage du mode optique entre la plateforme Si et la zone active III-V et d'autre part permettre une dissipation thermique efficace.

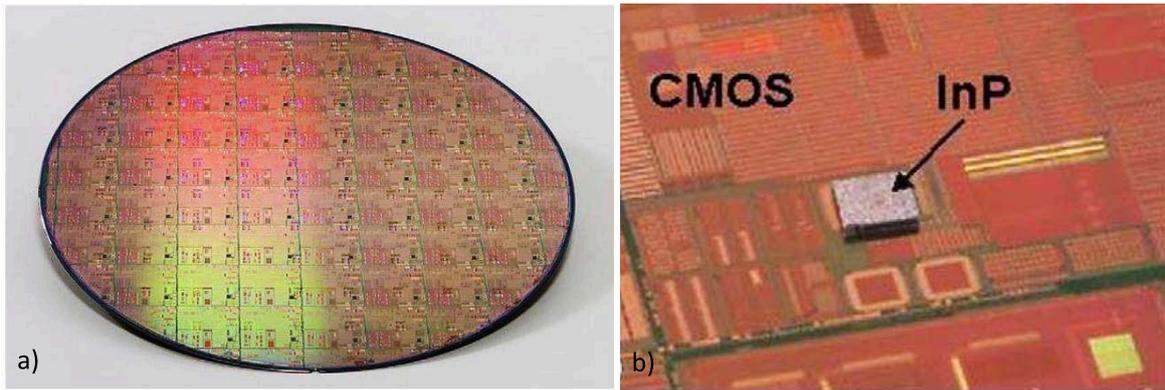
### *1.2.1.1. Collage*

Le principe de base de cette technique est le report d'un échantillon « étranger », dans notre cas un laser monolithique sur substrat III-V (GaAs, InP, GaSb), sur un substrat hôte, ici le Si. Une caractéristique importante sera donc le couplage de la lumière entre le substrat hôte contenant le circuit photonique et les lasers III-V reportés. On distingue trois méthodes

majeures pour réaliser ce collage : (i) collage moléculaire [28]–[30], (ii) collage assisté par polymère en utilisant le divinysiloxane-bis-benzocyclobutene (DVS-BCB) [31], [32] et (iii) collage assisté par métal [33], [34]. Ces méthodes ont leurs propres avantages et inconvénients en termes de couplage optique, de gestion de la température, de tolérance aux défauts de surface, de longévité et d’injection électrique à travers l’interface [35].

Dans les années 60, IBM proposa une technique appelée collage par soudure et retournement de puce (flip-chip) [36] afin de pouvoir réaliser l’assemblage hétérogène de composants électroniques. Tout d’abord, des motifs métalliques (superposition de métaux mouillables sur des métaux non mouillables) sont définis par photolithographie sur les substrats Si et III-V. Sur les motifs métalliques du substrat, un métal d’apport est ajouté. Ensuite, l’ensemble est porté à température de fusion afin de créer des bosses. Puis, le laser monolithique et le substrat Si sont mis en contact après un alignement rudimentaire. Grâce aux forces de tension de surface, les deux éléments tendent à s’auto-aligner. Enfin, l’ensemble est refroidi afin de réaliser une véritable connexion électrique et thermique. De nombreuses améliorations furent apportées à cette technique au cours des années 90 [37]–[39] afin d’aboutir à un alignement de  $\pm 1 \mu\text{m}$  [40] entre le laser III-V et le substrat Si. Malgré ces améliorations, cette valeur de tolérance ainsi que l’épaisseur des motifs métalliques limitent le couplage du mode optique entre le SOI et le laser III-V. De plus, la densité d’intégration est limitée par la taille et l’espacement des motifs métalliques. Enfin, le processus est très coûteux en temps du fait de la nécessité d’aligner chaque dispositif individuellement.

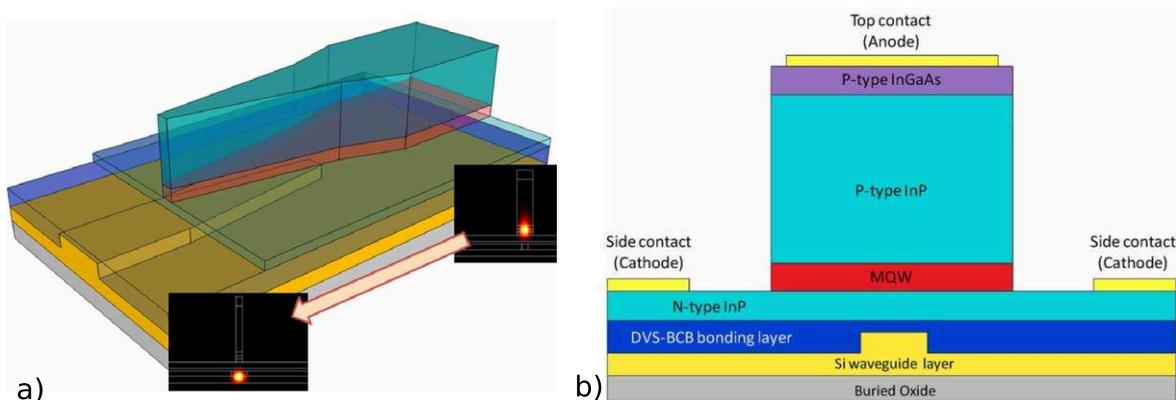
Afin de pallier à ces problèmes, le collage d’un substrat III-V entier ou d’une partie a été proposé. Les procédés technologiques du dispositif III-V sont donc réalisés après collage de celui-ci. Cependant, cette technique souffre aussi de désavantages comme les différences de taille et de prix entre les substrats III-V et les substrats Si qui entraînent soit une perte d’une partie du substrat Si soit une augmentation du coût de production en collant plus d’un substrat III-V. Comme la plus grande partie du substrat III-V est perdue lors du processus technologique, le choix a été fait de coller seulement des petites parties du substrat III-V (ou coupon) à des endroits spécifiques du substrat Si comme illustré dans la Fig. 1.6.



**Fig. 1.6 a) Matrices d'InP collés sur 200 nm de couche CMOS sur substrat Si et b) zoom sur un coupon d'InP collé de 1,2 nm x 1,2 nm. Photos issues de [41].**

Pour réduire la durée du procédé, une solution fut proposée par Justice *et al.* [42] à l'aide d'une technique appelée « transfert massif par impression » dont le but est de transférer en parallèle des milliers de matrices de couches III-V épitaxiées sur le substrat Si à l'aide d'un timbre élastomère en polydiméthylsiloxane (PDMS).

Comme cité précédemment, le couplage optique entre le guide SOI et la zone de gain III-V est crucial. On distingue deux types de lasers : les lasers hybrides où seulement une faible fraction du mode optique est couplée de façon évanescente à la zone de gain III-V [43], [44]. Il y a donc nécessité d'avoir une longue cavité optique afin d'obtenir un gain suffisant. Au contraire, dans les lasers hétérogènes, la plus grande partie du mode optique est confinée dans la zone active grâce à une ingénierie du mode optique [45]. Le mode optique est confiné dans le guide Si puis à l'aide d'un « taper » inversé, ce même mode est progressivement transféré dans la partie III-V comme illustré dans la Fig. 1.7a.



**Fig. 1.7 a) Vue en trois dimensions de la structure laser incluant les « tapers » inversés réalisant le couplage du mode optique entre le guide SOI et la partie active III-V. b) Section transversale de ce même laser. Figures issues de [46].**

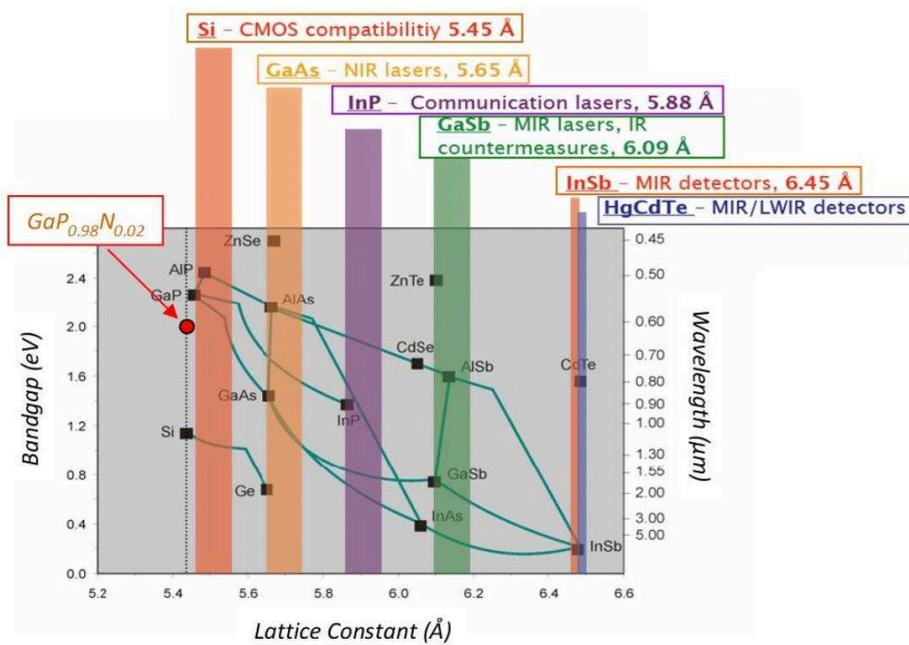
Le laser hétérogène présenté en Fig. 1.7b est un laser collé à l'aide de DVS-BCB dont la cavité laser est une cavité de type Fabry-Pérot. Ce laser présente un seuil laser assez bas, de l'ordre de 30 mA à 20 °C, et une puissance de sortie continue de 4 mW. Enfin, sa température maximale de fonctionnement est de 70 °C. Comme la réalisation de « tapers » III-V reste relativement ardue, De Koninck *et al.* [47] ont proposé de transférer intégralement cette complexité au guide Si afin de profiter de la maturité des processus technologiques de cette filière. Cependant, le laser réalisé en utilisant ce design n'a pour l'instant qu'un mode de fonctionnement pulsé (principalement dû à sa résistance thermique importante) avec un seuil de 4 mA. Sa température de fonctionnement maximale est de 50 °C.

Si le collage de semi-conducteurs III-V sur Si est la technique la plus répandue actuellement dans l'industrie pour la réalisation de laser sur Si avec comme application le transfert de données [48], de nombreuses équipes de recherches s'intéressent maintenant à l'approche monolithique qui permettrait d'atteindre des niveaux d'intégration bien plus avancés.

#### 1.2.1.2. Approche monolithique

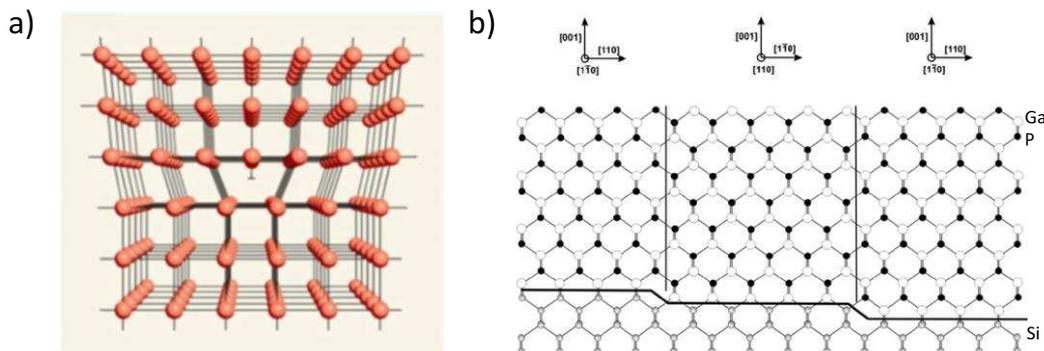
L'intégration de semi-conducteurs III-V sur Si peut aussi être réalisée par croissance cristalline directement sur le substrat. Cette technique, appelée approche monolithique, est moins mature mais permettrait de diminuer les coûts de production et de permettre une intégration à plus grande échelle [49]. De plus, cette méthode assurerait un meilleur contrôle de la température en permettant une dissipation thermique efficace [50]. Cependant, cette approche nécessite une parfaite maîtrise de l'interface III-V/Si afin de limiter, enterrer ou annihiler les défauts cristallins qui peuvent se propager dans l'ensemble de la structure photonique.

Dans la partie 1.1, nous avons vu que les semi-conducteurs étaient caractérisés par leur énergie de bande interdite  $E_g$  mais ils peuvent l'être également par leur paramètre de maille  $a$  comme illustré dans la Fig. 1.8.



**Fig. 1.8** Energie de bande interdite des semi-conducteurs en fonction de leur paramètre de maille à température ambiante. Figure issue de [51].

On voit bien que les semi-conducteurs III-V ont pour la plupart un paramètre de maille différent de celui du substrat Si :  $a_{Si} = 5,341 \text{ \AA}$ ,  $a_{GaAs} = 5,6532 \text{ \AA}$ ,  $a_{InP} = 5,8687 \text{ \AA}$  et  $a_{GaP} = 5,4505 \text{ \AA}$  à température ambiante. Lors d'une hétéroépitaxie, cette différence entraîne l'apparition de défauts appelés dislocations [52] qui correspondent à l'absence d'une colonne atomique unidimensionnelle, ou au contraire à l'ajout d'une nouvelle colonne atomique, (cf. Fig. 1.9a) pour accommoder la différence de paramètre de maille entre le substrat et la couche déposée.



**Fig. 1.9** a) Schéma d'une dislocation. Figure issue de [53]. b) Parois d'antiphase dans une structure cubique polaire de type Zinc blende (ici, le GaP) crûe sur substrat Si (structure non-polaire de type diamant). Figure issue de [54].

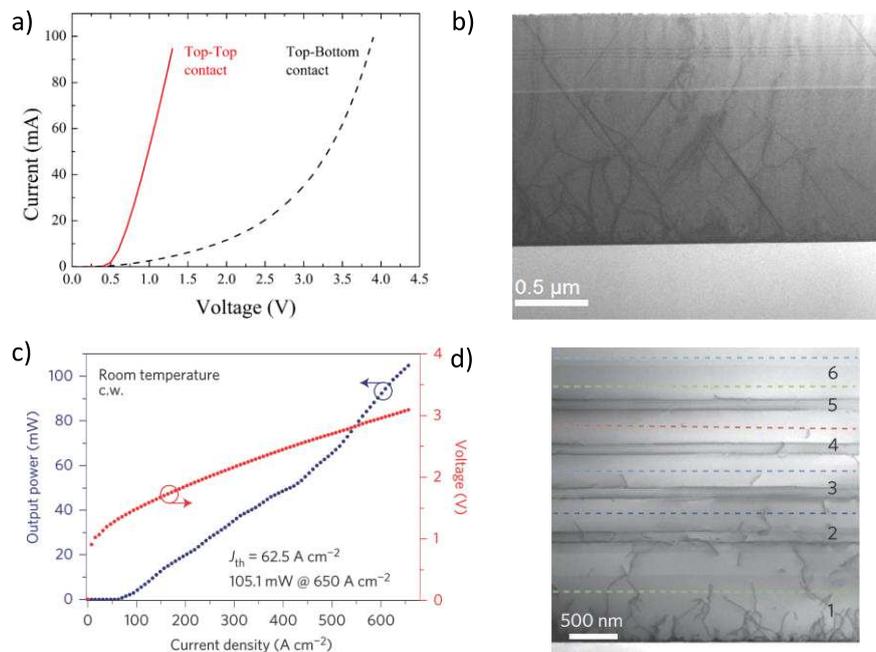
La dislocation permet de retrouver le paramètre de maille du matériau épitaxié dans le plan mais rajoute des liaisons pendantes dans le volume du cristal. Ces défauts dégradent

ainsi les propriétés électriques et/ou optiques par piégeage des porteurs en agissant comme des centres de recombinaisons non-radiatifs. Les dislocations apparaissent si l'épaisseur déposée dépasse l'épaisseur critique [55], [56] qui est autour de 100 nm pour le GaP sur Si [57] et autour de 1 nm pour le GaAs et l'InP sur Si. De plus, le paramètre de maille évolue en fonction de la température par un coefficient d'expansion thermique différent pour chaque semi-conducteur. Comme la température de croissance est différente de la température ambiante, la couche épitaxiée peut subir des effets de tension ou de compression entraînant la formation de « cracks » thermiques pouvant même aller jusqu'à la délamination de la couche épitaxiée [58], [59].

La plupart des semi-conducteurs III-V présentent une structure cristalline polaire de type zinc blende (à l'exception des matériaux à base de GaN qui peuvent présenter une structure cristalline de type wurtzite). Quant au Si, sa structure cristalline est de type diamant et est non-polaire. La présence de marches monoatomiques à la surface du Si ou une couverture imparfaite du cation ou de l'anion lors de la première monocouche III-V épitaxiée peuvent entraîner une inversion de polarité dans le cristal III-V, (i.e. une rupture de la symétrie de translation du cristal) et créer des séries de liaisons « imparfaites » appelées parois d'antiphase (AntiPhase Boundaries, APBs) [60], [61] (Fig. 1.9b). Dans le cas de la croissance de GaP sur Si qui sera décrite plus en détails dans la partie 1.2.4.1, ces liaisons imparfaites sont Ga-Ga et P-P. Ces APBs peuvent se propager dans toute la structure et entraînent une rugosité de la surface. De plus, ces défauts perturbent les performances lasers car ils sont connus pour être optiquement et électriquement actifs [62]. Deux APBs délimitent un domaine d'antiphase (AntiPhase Domain, APD) comme illustré dans la Fig. 1.9b. La densité d'APBs peut être réduite en utilisant une désorientation intentionnelle du substrat Si natif (001) de l'ordre de 0,1° à 6° qui va favoriser la présence de bi-marches atomiques à la surface du Si [63]–[65]. Cependant, l'utilisation de ce type de désorientation reste un problème pour l'intégration photonique sur Si car l'ensemble des procédés CMOS et microélectroniques sont réalisés sur substrat nominal Si (001). En plus des défauts précédemment cités, on trouve un autre type de défaut appelé micro-macle (MicroTwin, MT). Ce défaut correspond à une perturbation de l'empilement standard du semi-conducteur qui va entraîner une rotation d'une partie du cristal. La densité de ces défauts peut être limitée en soignant la préparation de la surface de silicium avant croissance ou par

exemple en effectuant un recuit post-croissance à haute température [66]. La qualité de l'interface III-V/Si [67] est donc une étape clé afin de limiter la présence et la propagation de défauts qui vont perturber les caractéristiques du laser monolithique III-V sur Si.

Le choix du semi-conducteur III-V, conditionné par la longueur d'onde d'émission laser souhaitée (Fig. 1.8), implique donc également une certaine densité de dislocations induite par la différence de paramètre maille du semi-conducteur avec le substrat Si. Dans de rares cas, ces dislocations sont parfaitement organisées et peuvent être enterrées très près de l'interface III-V/Si lors de la croissance. C'est le cas du système AlSb sur Si [68], [69]. En se basant sur cette propriété et l'utilisation d'une couche tampon épaisse, la démonstration d'un laser GaSb continu pompé électriquement à 1,59 et 2  $\mu\text{m}$  sur Si (avec une désorientation de 7°) fut réalisée [70], [71]. Ce laser a, de plus, été utilisé afin de comparer une injection électrique classique (cas de la Fig. 1.7b) à une injection à travers l'interface III-V/Si comme illustré dans Fig. 1.10a. La différence sur les caractéristiques  $I(V)$  souligne une fois de plus le fait que l'interface, par la présence de défauts (Fig. 1.10b), est électriquement active. Cependant dans la plupart des cas, la gestion de ces défauts est plus ardue. Une méthode consiste à utiliser un semi-conducteur ayant un paramètre de maille proche du Si comme le GaP afin de limiter la présence de dislocations et d'initier la croissance du laser [72]. L'interface GaP/Si ainsi que la filière GaP/Si sera développée dans la partie 1.2.4. L'adaptation progressive du paramètre de maille est aussi utilisée à l'aide d'une couche tampon graduelle de  $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$  [73] ou de  $\text{Ga}_x\text{As}_{1-x}\text{P}$  [74]. Une autre méthode consiste à utiliser un processus compatible CMOS afin d'effectuer une gravure du substrat Si de façon à créer un motif en V qui agira comme un filtre pour les défauts [75].



**Fig. 1.10** a) Comparaison des caractéristiques I(V) du laser GaSb/Si pour l'injection électrique classique (ligne rouge pleine) et une injection à travers l'interface (ligne pointillée noire). Figure issue de [70]. b) Image de microscopie à balayage électronique (Transmission Electron Microscopy, TEM) de la distribution de dislocations à l'interface GaSb/AlSb/Si [50] utilisée pour la réalisation du laser GaSb/Si [70]. La densité de dislocations décroît de  $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  à  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  à 1400 nm de l'interface. c) Courbe d'évolution de la puissance optique et de la tension en fonction de l'intensité injectée d'un laser GaAs/Si comparable aux lasers GaAs sur substrat natif. d) Image TEM de la distribution de dislocations à l'interface GaAs/Si (avec une couche de nucléation de AlAs) contenant 6 super-réseaux composés de cinq périodes d'InGaAs/GaAs. La position de ces périodes est indiquée par les lignes pointillées La densité de dislocations décroît de  $2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  (position 1) à  $<10^6 \text{ cm}^{-2}$  (position 6). Figures issues de [76].

Il existe aussi une technique très spécifique basée sur l'utilisation d'un masquage  $\text{SiO}_2$  afin de limiter la propagation de dislocations [77]. Une autre stratégie, en plein essor ces dernières années, est la croissance verticale de nanofils III-V sur substrat Si sans domaines d'antiphase [78] nécessitant la plupart du temps l'utilisation d'un substrat Si (111). Cependant, la géométrie 3D de ces nanofils rend l'injection électrique compliquée [79]. Enfin, des filtres de dislocations peuvent être réalisés en utilisant l'empilement de plans de QDs [80], [81] et/ou de super-réseaux [82] [76]. L'utilisation de ce type de réseaux comme filtres à dislocations a permis la réalisation d'un laser ridge GaAs sur substrat Si (désorientation de  $4^\circ$ ) ayant un seuil comparable aux lasers réalisés sur substrat GaAs (Fig. 1.10c et d) [76]. Cette même équipe a aussi démontré la réalisation d'un laser GaAs sur substrat Si (001) sans désorientation (inférieure à  $0.5^\circ$ ) [72]. Cette démonstration est importante, car les substrats Si utilisés étaient de grande taille initialement (300 mm), et

même si l'épitaxie III-V n'a pas été réalisée sur la totalité de la plaque, ces travaux démontrent la compatibilité de l'approche monolithique avec une intégration à très grande échelle sur le silicium. Il existe aussi des réalisations lasers sur substrat Si (001) dans les filières InP/Si [83] et GaN/Si [84] et GaP/Si [85] (discutées dans la partie 1.2.4), mais leurs performances restent encore faibles en comparaison du travail développé avec le GaAs.

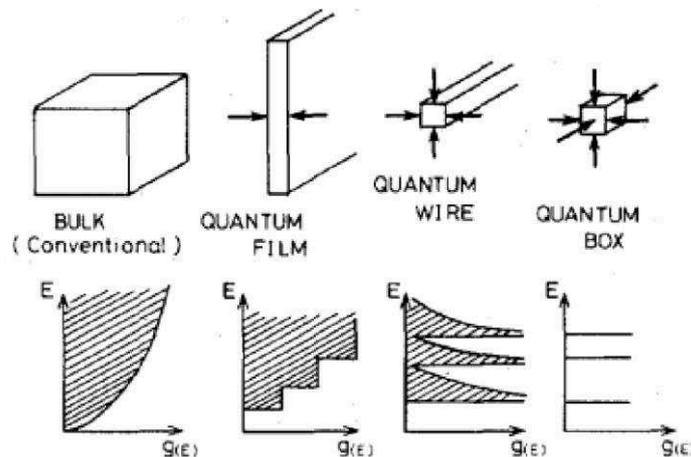
Après avoir discuté les différentes méthodes d'intégration des lasers III-V sur Si, passons à un autre élément primordial de ces dispositifs : la zone active.

### 1.2.2. Zone active

Comme mentionné dans la partie 1.1, la zone active est essentielle pour réaliser l'inversion de population afin d'obtenir l'effet laser. Les zones actives des premiers lasers réalisées étaient des couches épaisses ou « bulk » [1].

#### 1.2.2.1. Effet de dimensionnalité

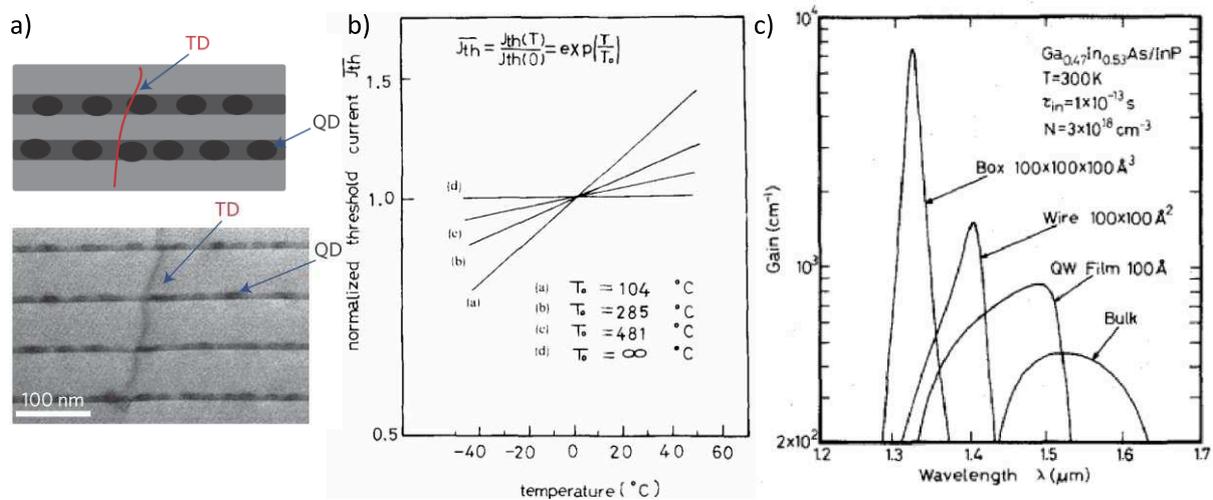
Afin d'améliorer les propriétés de ces lasers, une méthode a été de réduire la dimensionnalité de la zone active de façon à profiter du confinement quantique [86]. Cela permet à la fois d'augmenter le recouvrement des fonctions d'ondes des trous et des électrons, et de discrétiser les densités d'états en bande de conduction et en bande de valence, comme illustré dans la Fig. 1.11.



**Fig. 1.11 Morphologie de zone active de dimensionnalité différente (de gauche à droite : réduction de la dimensionnalité : 3D, 2D, 1D et 0D) et densités d'états électroniques correspondantes. Figure issue de [87].**

Pour les couches épaisses, les états électroniques forment un continuum. Pour une couche assez fine ou QW, le matériau peut être considéré comme un matériau 2D car son

épaisseur est négligeable devant ses autres dimensions. Une discrétisation des états électroniques est donc observée suivant la direction de croissance. Enfin, la dimensionnalité de l'objet peut être réduite jusqu'à obtenir un effet de confinement quantique dans les trois dimensions, comme dans les boîtes quantiques QDs. Les niveaux d'énergie en bande de conduction et valence sont totalement discrets. Le confinement des porteurs dans les trois dimensions entraîne une sensibilité amoindrie aux défauts structuraux et donc aux recombinaisons non-radiatives. Les dislocations ne peuvent avoir qu'une influence limitée sur ce type d'émetteurs comme illustré dans la Fig. 1.12a.



**Fig. 1.12** a) Vue schématique et image TEM de l'interaction d'une dislocation et d'un empilement de plans de QDs. Figures issues de [76]. b) Dépendance en température du seuil laser en fonction de la réduction de la dimensionnalité des zones actives (couche épaisse : (a) à QD : (d)). Figure issue de [88]. c) Gain spectral calculé pour différents types de zones actives dans le système GaInAs/InP. Figure issue de [87].

De plus, la discrétisation des états électroniques dans les structures à QDs entraîne une diminution du seuil laser car l'inversion de population peut être réalisée avec un nombre de paires électron-trou inférieur aux structures de dimensionnalité plus importante comme les QWs [89], [90]. Ce seuil laser augmente en fonction de la température et est défini de façon empirique par la formule :

$$J_{th}(T) = J_{th}(0)e^{\frac{T}{T_0}} \quad (1.8)$$

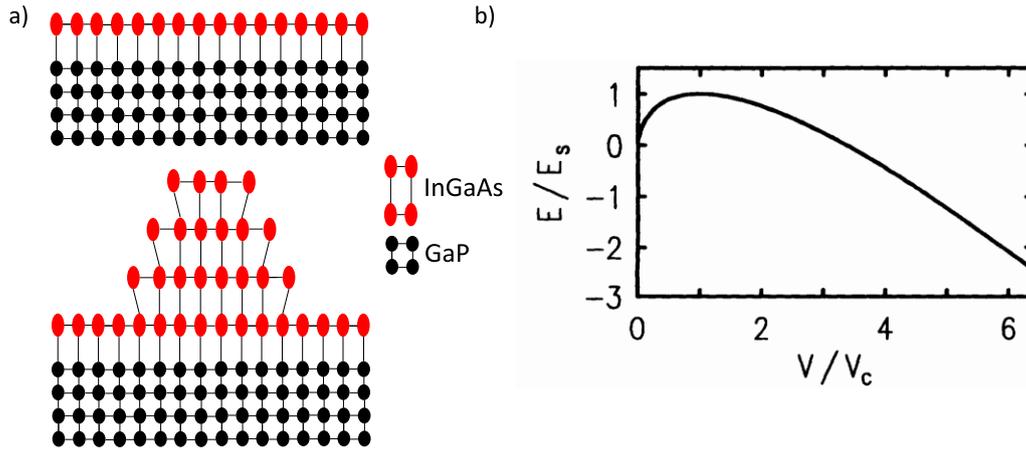
où  $J_{th}$  est la densité de courant au seuil laser,  $J_{th}(0)$  est la densité de courant au seuil laser à  $T = 0 K$  et  $T_0$  est la température caractéristique. Il est donc important d'avoir la valeur de  $T_0$ , la plus importante possible de façon à réduire la sensibilité du laser à la température. Arakawa *et al.* [88] ont comparé la sensibilité théorique du seuil laser par

rapport à la température en fonction de différents types de zones actives (Fig. 1.12b): (a) bulk ( $T_o = 104\text{ }^\circ\text{C}$ ), (b) QW ( $T_o = 285\text{ }^\circ\text{C}$ ), (c) fil quantique ( $T_o = 481\text{ }^\circ\text{C}$ ) et (d) QD ( $T_o = \infty$ ). Avec un  $T_o$  infini, les QDs présentent une insensibilité théorique du seuil laser à la température grâce à la discrétisation des niveaux d'énergies.

La dimensionnalité de la zone active influe aussi sur le gain spectral (exprimé en  $\text{cm}^{-1}$ ) qui est l'évolution du gain en fonction de la longueur d'onde. Ce gain est directement relié à la force d'oscillateur des transitions optiques de la zone active à une longueur d'onde donnée. En prenant le système GaInAs/InP, Asada *et al.* [87] ont calculé le gain spectral pour différents types de zone active : couche épaisse, QWs, fils quantiques et QDs (Fig. 1.12c.) et ont montré que la valeur du gain augmente avec la réduction de la dimensionnalité de la zone active. La courbe de gain des QDs est symétrique et centrée sur la longueur d'onde correspondant à la transition optique fondamentale de ces mêmes QDs et présente la valeur de gain la plus élevée parmi les autres types de zones actives. La faible sensibilité par rapport aux défauts, l'insensibilité théorique à la température et le gain spectral des QDs font d'eux des émetteurs de lumières efficaces et sont présents dans de nombreux lasers à l'état de l'art [72], [76].

#### 1.2.2.2. Physique des QDs

Il existe différentes méthodes de synthèse de boîtes quantiques [91]. La méthode qui sera utilisée dans ce travail est basée sur la croissance cristalline auto-organisée de type Stranski-Krastanov (SK) [92] d'un matériau contraint sur un substrat par épitaxie. Ce mode de croissance a été observé pour la première fois avec le système InAs/GaAs en 1985 [93]. Le principe de ce type de croissance est illustré dans la Fig. 1.13a. Tout d'abord, La croissance s'effectue suivant le mode de croissance Frank-Van der Merwe de façon à créer une couche 2D appelée couche de mouillage (Wetting Layer, WL). La croissance de cette WL continue jusqu'à ce que son épaisseur dépasse une épaisseur appelée épaisseur critique. Au-delà de cette épaisseur, il est préférable pour le système de se réorganiser et de minimiser son énergie, en formant des objets 3D facettés : les QDs. Cette transition 2D-3D est observable à l'aide de la diffraction d'électrons à haute énergie en incidence rasante (Reflection High-Energy Electron Diffraction, RHEED).



**Fig. 1.13 a) Principe de formation de boîtes quantiques à l'aide du mode de croissance Stranski-Krastanov. b) Energie d'une QD en fonction de son volume.  $E_s$  et  $V_c$  sont définies comme l'énergie de la barrière de nucléation et le volume associé. Figure issue de [94].**

Le gain en énergie  $\Delta E$  entre une couche déposée purement 2D et la formation d'îlots 3D est donné par :

$$\Delta E = E_{3D} - E_{2D} \quad (1.9)$$

Ce gain en énergie a été estimé par Tersoff et al. [94]. Les QDs considérées ont une forme de pyramide tronquée de hauteur  $h$  et possèdent des facettes. L'angle de ces dernières avec la surface est  $\theta$ . L'énergie totale de formation est définie suivant l'équation :

$$\Delta E = \Gamma_s 4 (V)^{\frac{2}{3}} (\tan \theta)^{\frac{1}{3}} - 6cV \tan \theta \quad (1.10)$$

avec  $V$ , le volume d'une QD et  $\Gamma_s$ , défini par l'équation suivante :

$$\Gamma_s = \frac{\gamma_e}{\sin \theta} - \gamma_s \cot \theta \quad (1.11)$$

$\gamma_s$  est l'énergie de formation de la surface dans la direction de croissance et  $\gamma_e$ , l'énergie de formation des facettes latérales. Quant au terme  $c$ , il est défini par :

$$c = \frac{\sigma^2(1-\nu)}{2\pi\mu} \quad (1.12)$$

où  $\sigma$  est le terme de contrainte d'une couche épitaxiée, proportionnel au désaccord de maille relatif  $\frac{\Delta a}{a}$ ,  $\nu$  correspond au coefficient de Poisson et  $\mu$  au module de cisaillement du substrat.

La variation d'énergie d'une QD donnée dans la Fig. 1.13b, présente un maximum au-delà duquel l'énergie du système décroît car le coût énergétique de la formation de surfaces

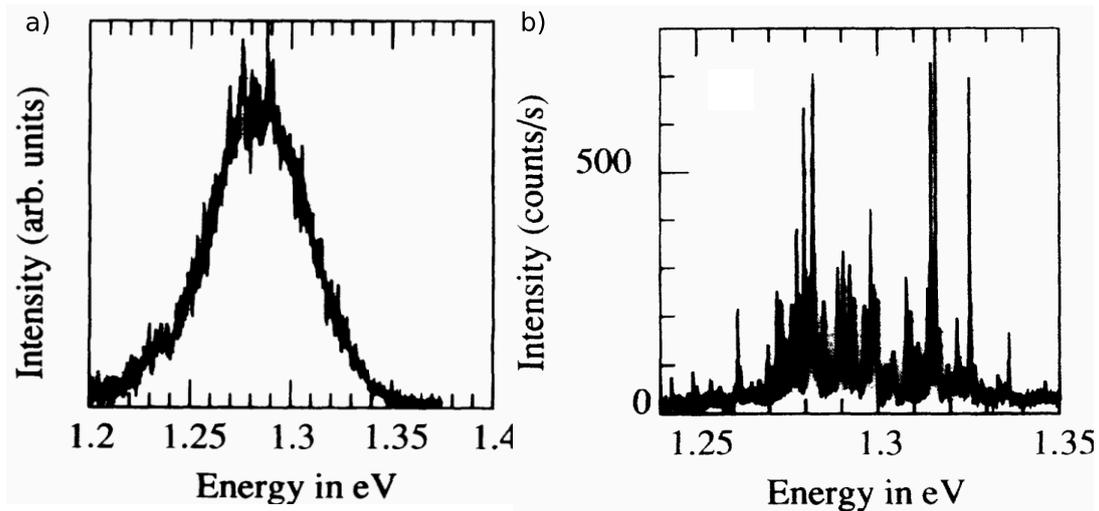
dans les îlots est compensé par le gain permis par la relaxation élastique du cristal. Ce maximum correspond à une barrière de nucléation. Cette barrière d'énergie correspond à une énergie et un volume critique :  $E_s$  et  $V_c$  qui sont proportionnels au désaccord de maille et aux énergies de formations de surface.

$$V_c \propto \Gamma_s^3 \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^{-6} \quad (1.13)$$

$$E_s \propto \Gamma_s^3 \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^{-4} \quad (1.14)$$

Ces deux dernières équations peuvent expliquer de façon qualitative les différences observées entre la croissance de QDs d'un même matériau avec la même géométrie sur deux substrats différents comme le système InAs/GaAs avec un désaccord de maille de 7,2 % et le système InAs/InP avec un désaccord de maille de 3,2 %. Le volume critique théorique est donc 64 fois plus important pour la transition 2D/3D sur substrat InP [95]. Pour des épaisseurs déposées trop importantes, des dislocations (relaxation plastique) apparaissent au sein des QDs [96].

Les QDs peuvent subir un effet de mûrissement dit mûrissement d'Ostwald lors des phases de recuit, ou en augmentant le volume déposé. Le but est de minimiser l'énergie de surface totale du système par la minimisation des surfaces présentes dans le système ce même système. Pour se faire, les îlots les plus larges vont croître en recevant des atomes provenant des plus petits, qui migrent sur le front de croissance. Lors de ce processus, des dislocations peuvent également apparaître dans les îlots les plus larges. La croissance SK entraîne une dispersion de la taille des îlots, ce qui provoque un élargissement inhomogène de la photoluminescence, et du gain spectral des QDs comme illustré dans la Fig. 1.14a. En augmentant la résolution spatiale en excitation de photoluminescence, le spectre inhomogène se scinde en une série de pics fins de largeur à mi-hauteur de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{eV}$  à basse température comme illustré sur la Fig. 1.14b. Le nombre de pics diminue avec la réduction de l'ouverture.



**Fig. 1.14** Photoluminescence à basse température (10K) de QDs InAs/GaAs à travers une ouverture de 5000 nm a) et de 500 nm b). Figures issues de [97].

Afin de compenser cet effet qui peut être néfaste pour les applications lasers, un contrôle de l'homogénéité des QDs est nécessaire en optimisant avec soin les paramètres de croissances. Ces paramètres structuraux sont le plus souvent analysés par microscopie à force atomique (Atomic Force Microscopy, AFM) [Annexe C], et parfois par microscopie électronique en transmission (Transmission Electron Microscopy, TEM) ou par microscopie à effet tunnel (Scanning Tunneling Microscopy, STM)

De façon à obtenir un confinement quantique efficace, ces nanostructures sont entourées d'un autre matériau appelé barrière. Ce matériau doit donc nécessairement avoir une énergie de bande interdite  $E_g$  supérieure à celle du ou des semi-conducteurs utilisés pour la réalisation de ces QDs. Ainsi, il existe des zones actives où les QDs sont insérées dans des QWs qui sont eux-mêmes entourés du matériau barrière [98]. Avec ce type de stratégie, de nombreux phénomènes physiques peuvent intervenir et venir modifier la morphologie des QDs. Ce point sera discuté par la suite (1.2.4.2 et Chapitre 3).

La structure barrière/ QDs a normalement pour but de confiner les porteurs dans les QDs de façon à ce que les fonctions d'ondes des électrons et des trous aient un recouvrement maximal. Ce type de système est appelé type-I. C'est le cas pour le système InAs/GaAs où le raccord de bande entre les deux matériaux est favorable. Cependant, on trouve des systèmes, appelés type-II, où le raccord de bande n'est pas favorable et l'un des porteurs (trous ou électrons) n'est pas confiné dans les QDs. C'est le cas pour le système GaSb/GaAs

[99]. Ces dénominations type-I/type-II sont aussi utilisés pour les QWs [8] et plus généralement pour toute injection de porteurs à travers une interface de ce type.

### 1.2.3. Confinement optique et injection électrique

#### 1.2.3.1. Géométrie laser

Comme évoqué dans la partie 1.1, la cavité laser a un rôle essentiel dans le processus laser. Elle doit confiner le mode optique, assurer une rétroaction efficace et enfin, permettre une injection efficace des porteurs. Les modes optiques confinés dans la cavité correspondent aux configurations pour lesquelles l'ensemble du chemin optique est un multiple de la longueur d'onde. Une cavité optique est caractérisée par un facteur de qualité ( $Q$ ) défini comme le rapport entre l'énergie stockée circulant dans la cavité et l'énergie perdue par cycle optique. L'énergie perdue étant dépendante du temps, on préférera utiliser la définition suivante : le nombre de cycle optique nécessaire pour que l'énergie stockée diminue de  $\frac{1}{e}$  par rapport à sa valeur initiale [100]. Plus sa valeur sera élevée, plus les pertes dans la cavité seront petites.

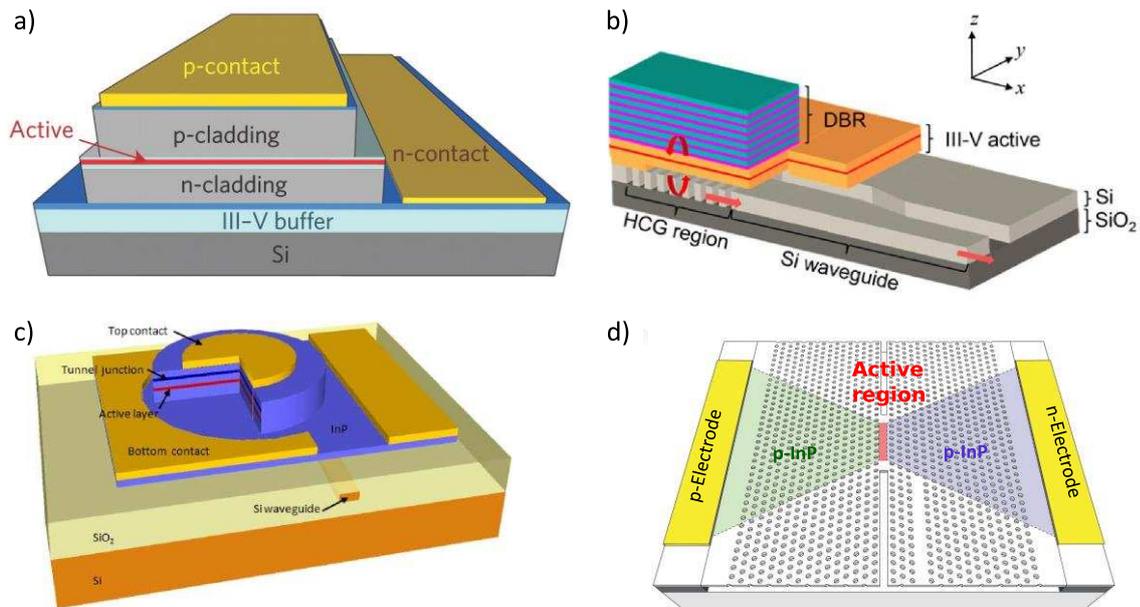
Afin de confiner le mode optique au sein de la zone active, les couches de confinement choisies doivent permettre l'obtention d'un contraste d'indice suffisant par rapport au(x) matériau(x) de la zone active. On définit ainsi un facteur de confinement optique ( $\Gamma_c$ ) basé sur les équations de Maxwell qui détermine la fraction du mode optique confinée dans la zone active (émetteurs et matériau barrière). On obtient :

$$\Gamma_c = \frac{\langle P \rangle_{Zone\ active}}{\langle P \rangle} \quad (1.15)$$

Où  $\langle P \rangle$  est la moyenne temporelle du vecteur de Poynting  $P$  définit comme :

$$\langle P \rangle = \frac{1}{2} \int \int \{(E \times H^*) \cdot u_z\} \cdot ds \quad (1.16)$$

avec  $E$ , le champ électrique,  $H$  le champ magnétique et  $z$ , la direction de propagation de la lumière. Il existe différentes géométries de structures lasers présentées dans la Fig. 1.15.



**Fig. 1.15 Architectures laser : a) ridge (figure issue de [101]), b) VCSEL (figure issue de [102]), c) micro-disque (figure issue de [103]) et cristal photonique (figure issue de [104]).**

L'architecture la plus ancienne est la structure laser ridge, présentée en Fig. 1.15a. Sur substrat GaAs, le confinement vertical est par exemple assuré par des couches de confinements d'AlGaAs. L'épaisseur de ces couches et l'indice optique associé peuvent être optimisés de façon à maximiser  $\Gamma_c$ . Eventuellement, ces structures peuvent être gravées afin de permettre un confinement latéral et une sélection transverse des modes. La cavité laser de type Fabry-Pérot est assurée par clivage du guide d'onde de façon à obtenir des facettes miroirs. La réflectivité ( $R$ ) de ces miroirs est calculée à l'aide de la formule suivante :

$$R = \left( \frac{n - 1}{n + 1} \right)^2 \quad (1.17)$$

Où  $n$  est l'indice de réfraction du semi-conducteur utilisé et  $n_{air} = 1$ . Cette réflectivité est la plupart du temps de l'ordre de 30 % et peut être augmentée par l'utilisation d'un traitement anti-reflet [105]. Ce type de cavité peut être aussi définie en utilisant des réseaux de Bragg [101] de façon à profiter d'une sélection des modes optiques plus strictes. En se basant sur ce type de réseau [106] (ou sur leurs alternatives : réseaux à fort contrastes [107]) afin de réaliser une cavité verticale, un autre type d'architecture laser, appelée laser à cavité verticale émettant par la surface (Vertical Cavity Surface Emitting Laser, VCSEL), fut développée (Fig. 1.15b). Il existe aussi une architecture, basée sur l'utilisation de modes de galeries dans une cavité circulaire, appelée micro-disque (Fig. 1.15c). Enfin, la dernière géométrie présentée se base sur l'utilisation de cristaux

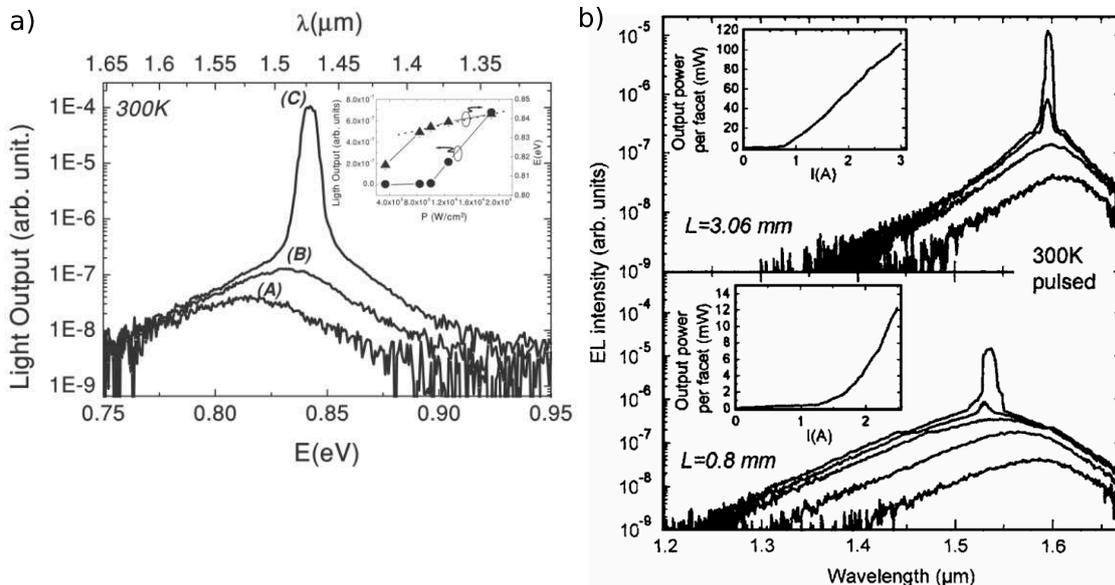
photoniques (Fig. 1.15d). Cette architecture se compose d'un réseau de bragg bidimensionnel, associé la plupart du temps à un guide plan, et permet de confiner la lumière dans toutes les directions à l'échelle de la longueur d'onde. Cette architecture produit le confinement optique le plus important parmi les architectures proposées. Les deux dernières géométries présentent un facteur de qualité plus important (allant même jusqu'à  $10^8$  [108]) que les architectures edge ( $Q \sim 10^2$ ) et VCSEL ( $Q \sim 10^3$ ). Cependant, la taille réduite des micro-résonateurs (micro-disques, cristaux photoniques) rend leur fabrication et l'injection électrique plus compliquées avec par exemple le dimensionnement du contact supérieur pour les micros disques [109] et la difficulté de doper les structures à cristaux photoniques (diffusion des dopants et implantation ionique) [110].

L'injection électrique est une étape clé pour la réalisation de lasers intégrés. La première étape est la réalisation d'une jonction p-i-n en dopant les couches de confinement de façon à obtenir une injection de porteurs efficace. Pour se faire le niveau de dopage des couches de confinement doit être très supérieur au niveau de dopage non-intentionnel. Dans cette configuration, les quasi-niveaux de Fermi s'égalisent par diffusion des électrons du côté n au côté p et diffusion des trous du côté p au côté n. Une région de déplétion est ainsi formée dans la zone intrinsèque contenant la zone active. Dans la majorité des cas, la zone active n'est pas dopée de façon à limiter les recombinaisons par porteurs libres [111]. Cependant dans certains dispositifs lasers [112], la zone active est volontairement dopée p de façon à augmenter la température caractéristique  $T_0$ . La deuxième étape est la réalisation de contacts métalliques par dépôt. Par un choix judicieux des métaux, du dopage des couches semi-conductrices et un recuit thermique adéquat, le caractère ohmique de l'interface métal-semiconducteur doit être obtenu.

Il est ensuite essentiel de réaliser une ingénierie de bandes [113] de façon à ce que la structure du laser permette un confinement optique et une injection électrique efficace sans barrière de potentiel excessive comme ce qui est le cas pour un raccord de bande de type-II. En polarisation directe de la jonction p-i-n, les porteurs sont injectés de part et d'autre de la structure laser (électrons coté n et trous coté p) de façon à se recombiner dans la zone active et former un réservoir de porteurs afin de remplir la condition de Bernard-Duraffourg [10] (équation ( 1.6 )) et d'obtenir l'effet laser.

### 1.2.3.2. Pompage électrique/optique

On distingue deux types de pompage laser : le pompage optique et le pompage électrique. Dans le premier cas, un laser de pompe est utilisé de façon à générer des porteurs au sein de la structure laser. La plupart du temps, l'excitation est non-résonante ce qui signifie que les porteurs sont générés dans les couches de confinement ou les barrières puis viennent se recombiner au sein de la zone active. Différentes conditions d'excitations (l'excitation résonante, l'utilisation de plusieurs longueurs d'ondes, etc.) peuvent être utilisées afin d'explorer, en particulier, la dynamique de certains porteurs. Pour le pompage optique, le seuil laser est observé en traçant la puissance de sortie en fonction de la densité de puissance du laser de pompe ou de l'énergie par pulse si le laser est pulsé (Fig. 1.16a).



**Fig. 1.16** Spectres optiques de sortie d'un laser à QDs InP pompé optiquement avant ((A) 3,35 et (B) 8,4kW.cm<sup>-2</sup>) et après le seuil laser ((C) 18,9 kW.cm<sup>-2</sup>). L'insert montre l'évolution de la puissance de sortie (ronds) et l'énergie correspondante au maximum du signal (triangles) en fonction de la densité de puissance du laser de pompe. Figure issue de [114]. Spectres optiques de sortie d'un laser à QDs InP pompé électriquement sous injection pulsée pour différentes densités de courant ( $J=65, 160, 208$  et  $220$  A.cm<sup>-2</sup>) et taille de cavité laser ( $L=0,8$  mm (partie inférieure) et  $3,06$  mm (partie supérieure)). L'insert présente l'évolution de la puissance de sortie par facette en fonction du courant injecté. Figure issue de [115].

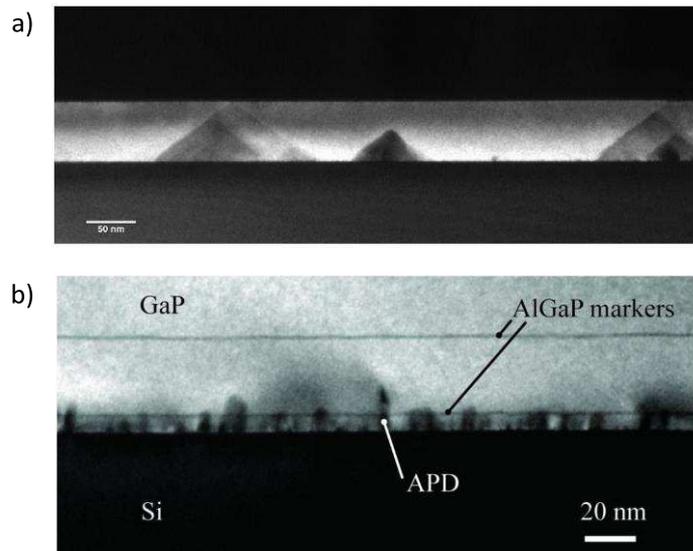
Un laser pulsé peut aussi être utilisé afin de limiter l'apparition d'effets thermiques. Le pompage optique est donc un outil puissant afin de caractériser les propriétés structurales et optiques d'une structure laser. Cependant, le pompage optique ne reste généralement qu'un outil de développement vers le pompage électrique, qui est la finalité pour les lasers intégrés sur Si. Pour l'injection électrique, les porteurs sont injectés par une source de

courant externe (Fig. 1.16b). Le seuil laser est observé en représentant la puissance de sortie du laser en fonction de la densité de courant (ou de l'intensité injectée).

### 1.2.4. Laser GaP/Si

#### 1.2.4.1. Interface GaP/Si

Comme expliqué dans la partie 1.2.1.2, la croissance de GaP sur Si permet de s'affranchir en grande partie de la présence de dislocations, du fait du faible désaccord de maille entre le GaP et le Si : 0,37 % à 300 K [116]. Les parois d'antiphase dans le cristal restent en revanche un problème pour le développement des composants, car elles entraînent une rugosité significative des couches déposées, et sont optiquement et électriquement actives. Plusieurs groupes ont réalisé des travaux sur la croissance du GaP sur Si que ce soit par MOVPE [116]–[118] ou par MBE [120]–[122]. Des techniques de croissance alternées, comme l'épitaxie par migration améliorée (Migration Enhanced Epitaxy, MEE) ont été développées pour limiter l'apparition de défauts, et améliorer la rugosité des couches [123]. De plus, Takagi *et al.* ont souligné le lien entre la température de croissance et l'épaisseur auxquelles les APDs s'annihilent. En se basant sur une double séquence de croissance, inspirée de la MEE, Volz *et al.* [61] ont démontré l'auto-annihilation des APBs à seulement 40-50 nm (Fig. 1.17a) de l'interface GaP/Si (avec une faible désorientation) par MOVPE en optimisant les conditions de croissance (température de croissance et de recuit in-situ, rapport V/III, etc.). Une couche tampon de Si est d'abord crûe, suivie par la croissance du GaP. La croissance sur substrat Si avec une faible désorientation permet la réalisation de pseudo-substrats GaP/Si compatibles avec la micro-électronique [124].



**Fig. 1.17** Vue transverse, réalisée par microscopie électronique en transmission, d'une couche de GaP crûe sur substrat Si par a) MOVPE montrant l'auto annihilation des APDs (Figure issue de [61]) et par b) MBE. L'annihilation des APDs est réalisée dans la première dizaine de nanomètres de la croissance (Figure issue de [125]).

En ce qui concerne la croissance de GaP sur Si par MBE, Grassman *et al.* [126] ont démontré l'élimination des APDs et des MTs sur substrat Si (désorientation de 6°) en utilisant une couche tampon de Si avant la croissance du GaP. L'annihilation des APBs a aussi été réalisée par Lin *et al.* [127] sur Si (désorientation de 4°) sans couche tampon de Si. Au laboratoire FOTON, Y. Ping Wang *et al.* ont souligné l'importance de la préparation chimique du substrat Si [128] puis ont démontré l'annihilation de la plupart des APDs à seulement 10 nm de l'interface GaP/Si [129] comme illustré dans la Fig. 1.17b ainsi qu'une faible densité de MTs sur Si (désorientation de 6°) par MBE. L'échantillon présenté est composé d'une couche de GaP crûe par MEE suivie par 4 couches de GaP crûs par MBE, séparées par des marqueurs d'AlGaP, à des températures de croissances différentes (de 500 à 600 K). Récemment, Warren *et al.* [130] et Navarro *et al.* [131] ont démontré la croissance de GaP sur Si (désorientation minimum de 2°) sans APBs par un recuit in-situ sous flux AsH<sub>3</sub> par MOVPE.

Toutes ces réalisations montrent la possibilité d'obtenir une croissance quasi sans défauts, et ce, très proche de l'interface III-V/Si. Elles sont donc très encourageantes d'une part, pour la réalisation de composants monolithiques III-V sur Si à base de GaP et d'autre part, pour le couplage entre la photonique et l'électronique.

#### 1.2.4.2. Zone active à base de GaP

Comme cité dans la partie 1.1, le GaP a un gap indirect. Le minimum de la bande de conduction est dans la vallée X. Afin de réaliser des émetteurs de lumière efficaces, il y a donc nécessité d'explorer les différents hétérostructures III-V/GaP afin d'obtenir une zone active directe.

Malgré le fait que GaAs présente une bande interdite indirecte quand il est contraint sur GaP [132], [133], de nombreuses études ont été réalisées sur le développement de QWs GaAsP [132], [134]. Ce matériau présente lui aussi une bande interdite indirecte malgré ses propriétés de photoluminescence intéressantes qui proviennent d'un mélange entre la bande X et  $\Gamma$  [135].

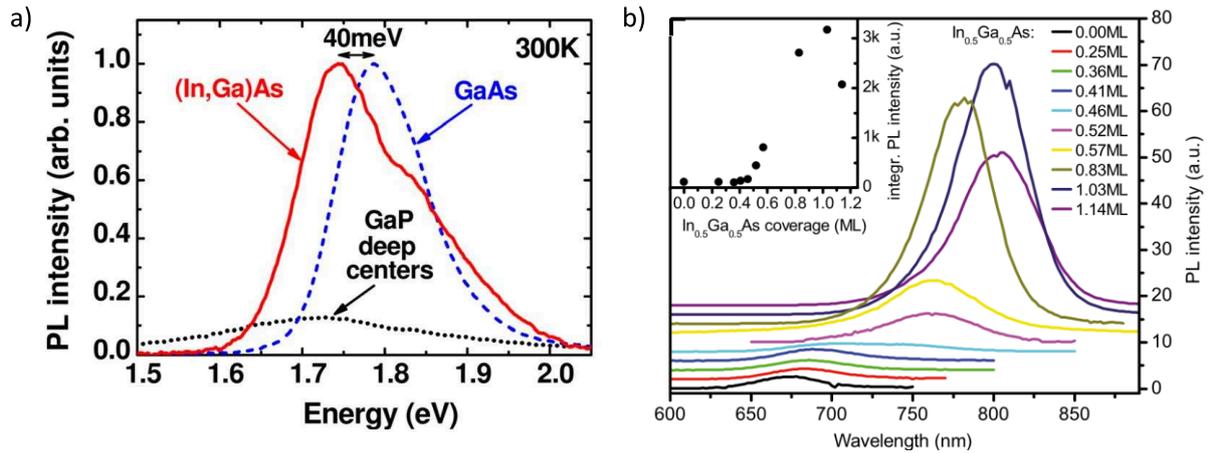
L'incorporation de l'azote au sein de ces QWs a été aussi considérée avec pour but l'obtention d'un véritable matériau direct. Malgré la maturité de ce matériau [136], la bande interdite n'est pas directe mais pseudo-directe. En effet dans le Ga(As,P,N), les états localisés d'azote s'hybrident avec la bande  $\Gamma$  afin de favoriser le caractère direct de la transition [133]. Grâce à la possibilité de réaliser une croissance en accord de maille avec le Si, l'alliage Ga(P,N) a aussi été utilisé [137]. Quant aux QWs InP/GaP, la structure de bande est de type-II avec la bande  $\Gamma$  de l'InP au-dessus de la bande X du GaP [138]. Dans tous ces systèmes de matériaux, même si les intensités de photoluminescence sont parfois importantes, les très longues durées de vie radiatives ne permettent pas d'espérer des composants lasers avec de bonnes performances.

La gestion des contraintes étant primordiale afin de maîtriser la relaxation du matériau et sa structure de bande, l'utilisation de QDs fut proposée afin d'obtenir une véritable zone active sur GaP comme ce fut le cas des QDs InP/GaP pour le développement de diodes [139], [140], [141]. Ces nanostructures ont une structure de bande complexe et un alignement de bande type-I ou type-II suivant les conditions expérimentales. Le caractère type-I/type-II a été exploré par des mesures de photoluminescence en fonction de la pression et des mesures résolues en temps réalisées à basse température (1.8 ns à 10 K) [117], [121], [122]. Cependant, ce système présente trois inconvénients : une faible densité de QDs  $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , une faible intensité de photoluminescence, et une absence de photoluminescence des QDs ayant une base >50 nm. Afin de pallier à ces inconvénients, des études ont été réalisées sur

l'incorporation de Ga dans le système InP/GaP. Gerhard *et al.* [144], [145] ont ainsi obtenu une densité de QDs de  $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  pour le système  $\text{In}_{0.46}\text{Ga}_{0.64}\text{P}/\text{GaP}$ . Malgré l'augmentation de la photoluminescence à basse température en fonction du pourcentage de Ga, le caractère direct/indirect de la transition n'a pas été discuté.

Les démonstrations les plus convaincantes de QDs sur GaP sont à base de (In,Ga)As. Pour le système InAs/GaP, malgré la présence de QDs, la photoluminescence est très faible, ce qui est probablement dû à une relaxation plastique, conséquence du désaccord de maille important (11 % à 300 K) entre ces deux matériaux [146]. Quant au système GaAs/GaP, Shamirzaev *et al.* [147] ont démontré la croissance d'îlots de GaAs totalement relaxés. Le paramètre de maille des QDs est donc celui du GaAs non contraint. Cependant pour ces QDs, malgré un alignement de bande de type-I, la transition est indirecte car le minimum de la bande de conduction calculé sans prendre en compte le confinement quantique est en L et la photoluminescence est limitée au-delà de 40 K. Plus récemment, Dadgostar *et al.* [148] ont présenté un ensemble de QDs GaAs/GaP directes/indirectes en se basant sur une supposée relaxation totale d'une partie des QDs par une modification de la quantité de GaAs déposée. Deux transitions optiques sont observées pour ces QDs émettant à température ambiante et sont liées aux distributions de taille observées en microscopie à force atomique (Atomic Force Microscopy, AFM) [Annexe C]. A 75 K, le temps de vie caractéristique relatif aux QDs ayant les dimensions les plus faibles (6-10 ns) est liée à une transition optique de type-II. Pour les QDs ayant les dimensions les plus importantes, le temps de vie caractéristique de 2 ns provient sans doute du mélange entre la nature supposée directe/indirecte de la transition optique et la présence possible de pièges de porteurs. Ces mêmes nanostructures ont été utilisées afin de réaliser des diodes [149].

Pour ce qui est des QDs (In,Ga)As/GaP, la première démonstration de la photoluminescence à température ambiante a été réalisée au laboratoire FOTON par Nguyen Thanh *et al.* [150] et est illustrée dans la Fig. 1.18a.

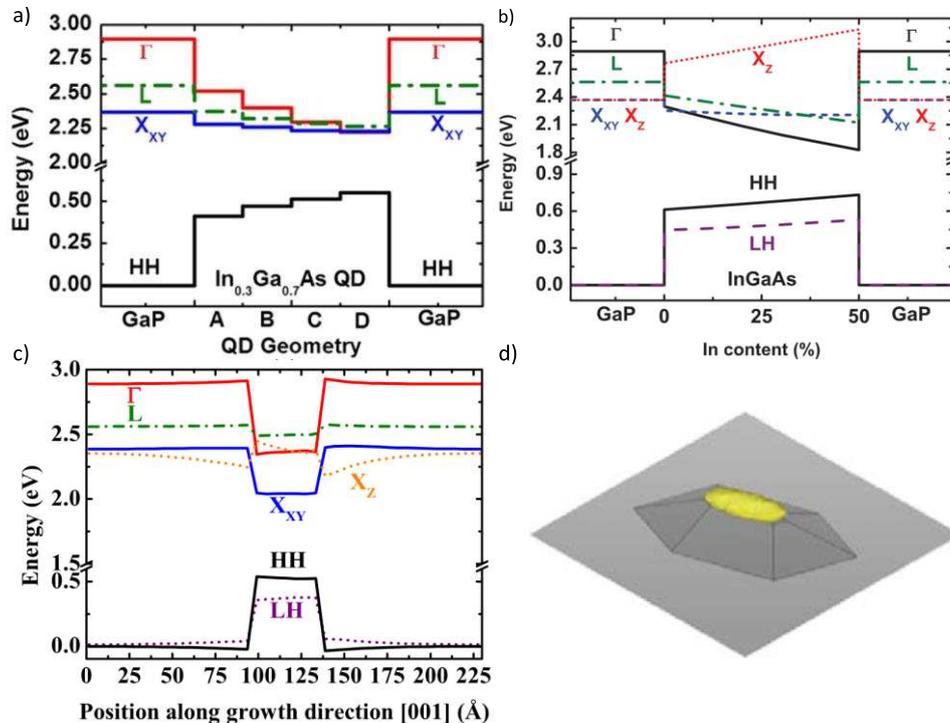


**Fig. 1.18 a) Première démonstration de la photoluminescence à température ambiante de QDs (In,Ga)As/GaP (courbe rouge). Les photoluminescences des centres profonds du substrat GaP:n (courbe noire) et un QW GaAs/GaP (courbe bleu) sont données pour comparaison. Figure issue de [150]. b) Photoluminescence à température ambiante de QDs In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/2.2 ML GaAs/GaP en fonction du nombre de monocouches déposées. L'insert représente la photoluminescence intégrée correspondante. Figure issue de [151].**

La photoluminescence des QDs (In,Ga)As/GaP est comparée à la photoluminescence des centres profonds du substrat GaP dopé et à un QW GaAs de façon à conclure sans aucune ambiguïté sur l'origine de la luminescence. Puis, Rivoire *et al.*[152] ont présenté la photoluminescence à température ambiante de QDs In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As dans une membrane GaP. Enfin, Stracke *et al.* [151] ont proposé d'insérer quelques monocouches (MonoLayers, ML) de GaAs avant ou après la croissance des boîtes quantiques. Ils ont ainsi étudié la croissance de QDs In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/2.2 ML GaAs/GaP sur substrat GaP. En jouant sur l'épaisseur déposée (Fig. 1.18b), le recouvrement (GaAs ou GaP) et le recuit in-situ des QDs, ils affirment l'observation d'une transition optique directe par optimisation des conditions de croissances. Ce travail se base sur la comparaison de photoluminescence à température ambiante sans aucune information sur le temps de vie.

Pour véritablement comprendre comment promouvoir les transitions directes par rapport aux transitions indirectes, il est nécessaire de regarder dans le détail la structure de bande complexe des QDs (In,Ga)As/GaP. Deux paramètres influencent de manière très nette les positions relatives des bandes de conduction : la composition en indium et la taille des QDs [153]. Comme illustré en Fig. 1.19a, la transition optique est directe pour des QDs (In,Ga)As/GaP ayant des dimensions supérieures à 5 nm de hauteur et 25 nm de diamètre (transition géométries C à D). Les structures de bandes ont été calculées par la méthode k-p [154] pour la bande  $\Gamma$  et la bande relative aux trous lourds (Heavy-Hole, HH). Pour les bandes

X et L, la méthode utilisée est basée sur un modèle de liaisons fortes (Tight-binding, TB) [155]. Les QDs sont modélisés par une pyramide à base circulaire. Les bandes  $X_{xy}$  et  $X_z$  sont séparées au sein des QDs par l'effet de la contrainte biaxiale.



**Fig. 1.19** a) Alignements de bandes d'une QD  $In_{0.3}Ga_{0.7}As$  pour quatre géométries différentes (hauteur/diamètre): A (2,3 nm/15 nm), B (3,5 nm /18 nm), C (5 nm/25 nm) et D (6,5 nm/36 nm) calculés par la méthode k-p et TB. Figure issue de [153]. b) Alignements de bande et structures de bande de couches épaisses de  $In_xGa_{1-x}As$  contraint sur GaP obtenus par la méthode TB. Figure issue de [156]. c) Potentiel de confinement suivant la direction de croissance à travers le centre de la QD  $GaAs/GaP$  suivant la théorie du potentiel de déformation linéaire [157]. Figure issue de [158]. d) Etat fondamental ( $X_z$ ) des électrons dans une QD  $GaAs/GaP$  calculée par la méthode TB super cellule. Figure issue de [159]. L'ensemble de ces calculs ont été réalisés à 0 K.

L'autre élément à prendre en compte, afin de promouvoir le caractère direct de la transition, est la composition d'indium comme présenté en Fig. 1.19b pour une couche d' $(In,Ga)As$  contrainte de façon biaxiale par du GaP [156]. Cette contrainte va séparer les bandes d'énergies des trous lourds HH et des trous légers (Light Holes, LH). L'augmentation de la composition d'In joue un rôle sur le confinement des trous mais ne modifie pas la séparation des bandes HH et LH. Une modification du minimum de la bande de conduction :  $X_{xy}$  à  $\Gamma$  est obtenue pour un pourcentage d'In d'environ 10 %. Au-delà de cette valeur, la transition optique est théoriquement directe et la différence entre la bande  $\Gamma$  et X s'élargit. Mais ce calcul ne prend pas en compte le confinement quantique présent au sein des QDs,

qui agit très différemment sur les bandes  $\Gamma$  et X. De plus, l'augmentation de la composition d'In entraîne aussi une augmentation du désaccord de maille et donc la possibilité de relaxer de façon plastique.

L'alignement des bandes ainsi que la structure de bandes du système (In,Ga)As/GaP sont conditionnés par la morphologie des QDs, les contraintes et la distribution spatiale de chacun des éléments In, Ga, As et P. Des travaux précédents ont permis de montrer que les QDs (In,Ga)As/GaP ont une forme de pyramide tronquée [160] avec la présence de facettes suivant des plans définis [156]. La distribution de l'In est inhomogène dans les QDs (In,Ga)As crûes sur GaAs et sur GaP. Cette inhomogénéité est plus importante dans le cas du système (In,Ga)As/GaP probablement du fait de la différence de ségrégation d'In entre les deux systèmes [161]. Pour ce qui est de l'As, il est présent dans la QD ainsi qu'au sein de la WL suggérant le remplacement de certains d'atomes de P par des atomes d'As transformant le GaP en  $\text{GaAs}_x\text{P}_{1-x}$  juste avant la QD [160], [161].

Des calculs TB super cellules ont été réalisés [158] en se basant sur des géométries de QDs réalistes qui prennent en compte les contraintes et les dimensions des QDs étant obtenues par STM. De façon à s'affranchir de l'inhomogénéité spatiale de l'In, les calculs ont été réalisés sans In. La Fig. 1.19c présente l'alignement des bandes de conduction  $\Gamma$ , L,  $X_z$  et  $X_{xy}$  et des bandes de valence HH, LH pour une QD GaAs/GaP contrainte suivant la théorie de déformation linéaire [157]. Comme évoqué précédemment, l'alignement de bande favorise un confinement des trous, au sein de la bande HH, à l'intérieur de la QD. Pour les bandes de conduction, la bande  $\Gamma$  est au-dessus de la bande X. Les minima de conduction sont donc  $X_{xy}$  dans la QD et  $X_z$  à l'interface GaAs/GaP. Les états électroniques de cette nanostructure ont aussi été calculés en prenant en compte l'ensemble des contraintes mais sans prendre en compte l'interaction coulombienne [159]. L'état fondamental de l'électron, calculé par TB super cellule, du système QDs GaAs/GaP est confiné proche de l'apex de la QD (mais localisé tout de même dans le GaP), comme illustré dans la Fig. 1.19d. C'est une conséquence du fait que le GaP au-dessus de la QD est en tension, ce qui se traduit par un petit puit de potentiel. Pour les trous HH, l'état fondamental est à l'intérieur de la QD. Ce type d'alignement de bande est différent d'un type II classique comme le système GaSb/GaAs où les électrons sont délocalisés dans la barrière GaAs [162]. Malgré le raffinement de ce calcul TB super cellule et la prise en compte d'une géométrie extraite d'images STM, les états électroniques obtenus

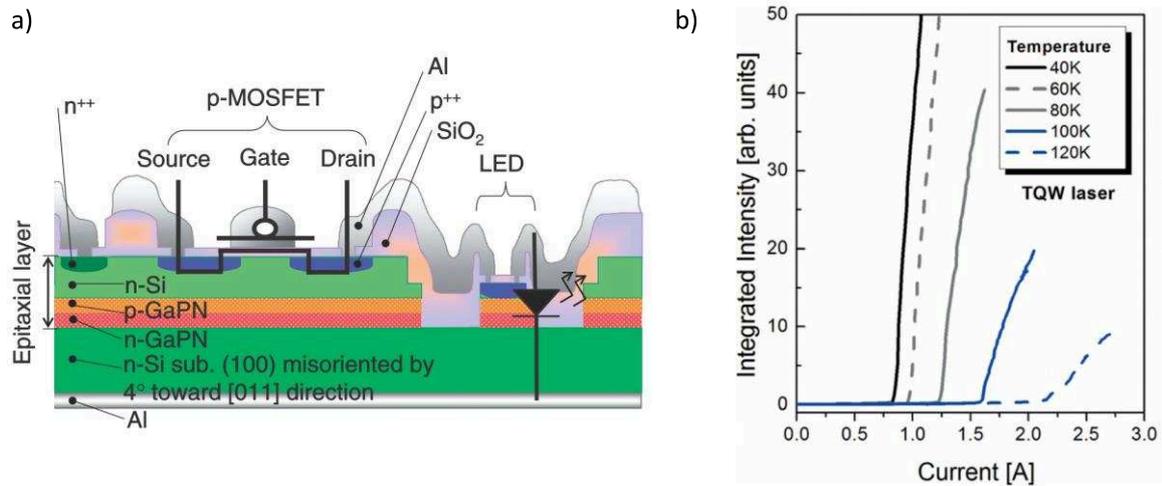
sont calculés sans distribution d'In ainsi que sans interaction coulombienne. Une confrontation directe aux données expérimentales n'est pas possible mais la complexité de la structure de bande mise en évidence dans ces travaux servira de base pour l'interprétation des spectres de photoluminescence présentés dans cette thèse.

L'incorporation de N a aussi été réalisée au sein du système (In,Ga)As/GaP [163] afin de modifier la longueur d'onde d'émission de façon à se rapprocher des longueurs d'ondes télécoms standards. Enfin, Sala *et al.* [164] ont récemment présenté la croissance de QDs InGaSb/GaP ayant un alignement de bande de type I (temps de vie de 2,5 ns à 10 K) par une brève exposition de la surface à un flux Sb avant le dépôt des QDs.

#### 1.2.4.3. Démonstration d'émetteurs

Après avoir présenté l'interface GaP/Si et les différentes zones actives sur GaP, passons maintenant aux réalisations de lasers dans la filière GaP sur Si.

La première réalisation d'émetteurs GaP à température ambiante sur Si fut obtenue par Moon *et al.* [165] en réalisant une diode électroluminescence (Light Emitting Diode, LED) basée sur une hétérostructure InGaPN/GaPN par MBE à sources solides (Solid Source MBE, SSMBE). Puis, Umeno *et al.* [166] démontrèrent la réalisation d'une LED émettant à température ambiante avec des QWs GaAsN/GaPN comme zone active par SSMBE. Ensuite, Yamane *et al.* [124] ont démontré la première réalisation d'intégration photonique sur puce par le contrôle de l'émission d'une LED GaPN par un transistor (Fig. 1.20a) par SSMBE. Enfin, Song *et al.* [167] ont démontré la réalisation d'une LED (In,Ga)As/GaP sur Si (sans désorientation) émettant à température ambiante. Cette croissance MBE a été réalisée sur un pseudo-substrat GaP/Si crû par MOVPE [61] et précédemment décrit dans la partie 1.2.4.1. Ces nanostructures (In,Ga)As/GaP ont permis l'obtention d'un effet laser par injection électrique pulsée sur substrat GaP à 80 K avec un seuil laser de  $4,2 \text{ kA.cm}^{-2}$  par Heidemman *et al.* [168] en 2014. La zone active utilisée est composée de 3 plans de QDs et les couches de confinements utilisées sont de l'AlGaP dopé Si pour le dopage n et Be pour le dopage p. L'ensemble de la structure laser a été réalisé par MBE à sources gazeuses (Gaz Source MBE, GSMBE).



**Fig. 1.20 a) Vue transversale schématique de l'intégration d'une LED GaPN et de son alimentation par un transistor sur Si (4° de désorientation). Figure issue de [124]. b) Evolution de l'intensité intégrée de photoluminescence pour un laser à QWs Ga(NAsP)/(BGa)P sur Si en fonction du courant pulsé injecté pour différentes températures. La présence du seuil laser est observable par la non-linéarité de l'évolution de l'intensité intégrée. Figure issue de [85].**

La démonstration d'un effet laser sur Si (sans désorientation) a été réalisée en 2011 par Liebich *et al.* [85] en utilisant des QWs Ga(NAsP)/(BGa)P par injection électrique pulsée à 120 K (et par injection optique jusqu'à 150 K) (Fig. 1.20b). L'ensemble de la croissance du laser a été réalisé par MOVPE sur des pseudosubstrats GaP/Si [61]. La zone active utilisée est composée de 3 plans de QWs et les couches de confinements utilisées sont du (BGa)(AsP) dopé Te pour le dopage n et Zn pour le dopage p. Les confinements optique et électrique sont réalisés par une hétérostructure de confinement à gradient d'indice [169], obtenue avec des gradients de composition d'As et de B. L'incorporation de B dans le GaP permet d'une part un accord de maille avec le Si et d'autre part de compenser les contraintes induites par l'utilisation de QWs Ga(NAsP) [170]. La croissance du B est relativement bien maîtrisée dans le cadre d'une croissance MOVPE [171]. Cependant, elle est plus complexe dans le cadre d'une croissance par MBE par la nécessité d'utiliser une cellule haute température [172] ou un canon à électrons [173] comme source de B à cause de sa faible pression de vapeur. Sur substrat GaP natif et crû par MOVPE, Hossain *et al.* [174] ont démontré en 2011 une émission à température ambiante d'un laser en utilisant des QWs GaAsPN/GaP par injection électrique pulsée avec un seuil important de 4,0 kA.cm<sup>-2</sup>. Les couches de confinements utilisés sont de l'AlGaP dopé Te pour le dopage n et Zn pour le dopage p.

Il ressort donc de la littérature que les performances des lasers GaP sur Si (et sur GaP) sont principalement limitées par l'efficacité de leurs zones actives : transitions optiques pseudo-directes pour les QWs Ga(AsPN) [175] et transitions optiques indirectes/directes pour les QDs (In,Ga)As [159]. L'efficacité de l'injection électrique et les alignements de bandes des couches de confinement AlGaP/GaP [176] et (BGa)(AsP)/(BGa)P [177] n'ont pas non plus été étudiées en détail.

#### ***1.2.4.4. Positionnement de la thèse***

L'activité de réalisation d'un laser monolithique sur Si dans la filière GaP est un des axes de recherche du laboratoire ainsi qu'un des objectifs du projet CominLabs 3D Optical Many Cores. Ma thèse s'inscrit dans ce cadre et se décline autour de plusieurs verrous au vue de l'état de l'art au début de ma thèse : (i) maîtrise de l'injection électrique et du confinement optique dans l'AlGaP, (ii) compréhension des transitions optiques et obtention d'une transition optique directe dans les nanostructures (In,Ga)As/GaP, (iii) réalisation de composants photoniques actifs sur Si à l'aide d'un bâti de croissance sous ultravide (Ultra High Vacuum, UHV) CVD-SSMBE [Annexe A] et (iv) analyse des performances des sources sur Si en vue d'une intégration dans une architecture de microprocesseurs hybrides.

## Références du chapitre 1

- [1] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, et R. O. Carlson, « Coherent Light Emission From GaAs Junctions », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 9, n° 9, p. 366-368, nov. 1962.
- [2] N. Holonyak, « Stimulated Emission Involving the Nitrogen Isoelectronic Trap in GaAs<sub>1-x</sub>P<sub>x</sub> », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 19, n° 8, p. 254, 1971.
- [3] M. I. Nathan, W. P. Dumke, G. Burns, F. H. Dill, et G. Lasher, « Stimulated emission of radiation from GaAs p-n junctions », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 1, n° 3, p. 62-64, nov. 1962.
- [4] T. M. Quist *et al.*, « Semiconductor maser of GaAs », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 1, n° 4, p. 91-92, déc. 1962.
- [5] D. Liang et J. E. Bowers, « Recent progress in lasers on silicon », *Nat. Photonics*, vol. 4, n° 8, p. 511-517, août 2010.
- [6] Y. P. Varshni, « Temperature dependence of the energy gap in semiconductors », *Physica*, vol. 34, n° 1, p. 149-154, janv. 1967.
- [7] P Offermans, « Study of III-V semiconductor nanostructures by cross-sectional scanning tunneling microscopy », Technische Universiteit Eindhoven, 2005.
- [8] N. Bertru *et al.*, « Spontaneous emission from InAs/GaSb quantum wells grown by molecular beam epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 85, n° 3, p. 1989-1991, févr. 1999.
- [9] N. Koshida, Éd., *Device applications of silicon nanocrystals and nanostructures*. New York, NY: Springer, 2009.
- [10] M. G. A. Bernard et G. Duraffourg, « Laser Conditions in Semiconductors », *Phys. Status Solidi B*, vol. 1, n° 7, p. 699-703, janv. 1961.
- [11] A. Y. Liu *et al.*, « High performance continuous wave 1.3  $\mu\text{m}$  quantum dot lasers on silicon », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 4, p. 041104, janv. 2014.
- [12] D. Inoue *et al.*, « Low-bias current 10 Gbit/s direct modulation of GaInAsP/InP membrane DFB laser on silicon », *Opt. Express*, vol. 24, n° 16, p. 18571-18579, août 2016.
- [13] Y. Koizumi, K. Toyoda, M. Yoshida, et M. Nakazawa, « 1024 QAM (60 Gbit/s) single-carrier coherent optical transmission over 150 km », *Opt. Express*, vol. 20, n° 11, p. 12508-12514, mai 2012.
- [14] M. H. Nayfeh *et al.*, « Observation of laser oscillation in aggregates of ultrasmall silicon nanoparticles », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 80, n° 1, p. 121-123, janv. 2002.
- [15] Y. Takahashi, Y. Inui, M. Chihara, T. Asano, R. Terawaki, et S. Noda, « A micrometre-scale Raman silicon laser with a microwatt threshold », *Nature*, vol. 498, n° 7455, p. 470-474, juin 2013.
- [16] Z. Zhou, B. Yin, et J. Michel, « On-chip light sources for silicon photonics », *Light Sci. Appl.*, vol. 4, n° 11, p. e358, nov. 2015.
- [17] R. Koerner *et al.*, « Electrically pumped lasing from Ge Fabry-Perot resonators on Si », *Opt. Express*, vol. 23, n° 11, p. 14815-14822, juin 2015.
- [18] K. P. Homewood et M. A. Lourenço, « Optoelectronics: The rise of the GeSn laser », *Nat. Photonics*, vol. 9, n° 2, p. 78-79, févr. 2015.
- [19] J. Liu, L. C. Kimerling, et J. Michel, « Monolithic Ge-on-Si lasers for large-scale electronic-photonic integration », *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 27, n° 9, p. 094006, 2012.
- [20] G. Roelkens *et al.*, « III-V-on-Silicon Photonic Devices for Optical Communication and Sensing », *Photonics*, vol. 2, n° 3, p. 969-1004, sept. 2015.

- [21] N. Daldosso *et al.*, « Comparison Among Various Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> Waveguide Geometries Grown Within a CMOS Fabrication Pilot Line », *J. Light. Technol.*, vol. 22, n° 7, p. 1734, juill. 2004.
- [22] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, D. Ferrand, et H. Mariette, « Geometrical Effects on the Optical Properties of Quantum Dots Doped with a Single Magnetic Atom », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, n° 4, p. 047403, juill. 2005.
- [23] L. Marsal *et al.*, « Zero-dimensional excitons in CdTe/ZnTe nanostructures », *J. Appl. Phys.*, vol. 91, n° 8, p. 4936-4943, mars 2002.
- [24] P. J. Sellin et J. Vaitkus, « New materials for radiation hard semiconductor detectors », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, vol. 557, n° 2, p. 479-489, févr. 2006.
- [25] S. Rujirawat, D. J. Smith, J. P. Faurie, G. Neu, V. Nathan, et S. Sivananthan, « Microstructural and optical characterization of CdTe(211)B/ZnTe/Si(211) grown by molecular beam epitaxy », *J. Electron. Mater.*, vol. 27, n° 9, p. 1047-1052, sept. 1998.
- [26] K. Iso, Y. Gokudan, M. Shiraishi, H. Murakami, et A. Koukitu, « Direct Growth of CdTe on a (211) Si Substrate with Vapor Phase Epitaxy Using a Metallic Cd Source », *J. Electron. Mater.*, p. 1-5, mai 2017.
- [27] H. Ebe *et al.*, « Direct growth of CdTe on (100), (211), and (111) Si by metalorganic chemical vapor deposition », *J. Electron. Mater.*, vol. 25, n° 8, p. 1358-1361, août 1996.
- [28] X. Luo *et al.*, « High-Throughput Multiple Dies-to-Wafer Bonding Technology and III/V-on-Si Hybrid Lasers for Heterogeneous Integration of Optoelectronic Integrated Circuits », *Front. Mater.*, vol. 2, avr. 2015.
- [29] D. Liang *et al.*, « High-Quality 150 mm InP-to-Silicon Epitaxial Transfer for Silicon Photonic Integrated Circuits », *Electrochem. Solid-State Lett.*, vol. 12, n° 4, p. H101-H104, janv. 2009.
- [30] W. Kissinger, G. Kissinger, J. Krüger, et H. Hofmann, « High yield in wafer bonding with surface structured wafers », *Mater. Lett.*, vol. 12, n° 4, p. 266-269, nov. 1991.
- [31] G. Roelkens *et al.*, « III-V/silicon photonics for on-chip and intra-chip optical interconnects », *Laser Photonics Rev.*, vol. 4, n° 6, p. 751-779, nov. 2010.
- [32] Stankovic, S., « Hybrid III-V/Si DFB lasers based on polymer bonding technology », Ghent University, Belgium, 2013.
- [33] K. Tanabe, D. Guimard, D. Bordel, S. Iwamoto, et Y. Arakawa, « Electrically pumped 1.3  $\mu\text{m}$  room-temperature InAs/GaAs quantum dot lasers on Si substrates by metal-mediated wafer bonding and layer transfer », *Opt. Express*, vol. 18, n° 10, p. 10604-10608, mai 2010.
- [34] T. Creazzo *et al.*, « Integrated tunable CMOS laser », *Opt. Express*, vol. 21, n° 23, p. 28048-28053, nov. 2013.
- [35] C. Cornet, Y. Léger, et C. Robert, *Integrated Lasers on Silicon*. ISTE-Elsevier, 2016.
- [36] L. F. Miller, « Controlled Collapse Reflow Chip Joining », *IBM J. Res. Dev.*, vol. 13, n° 3, p. 239-250, mai 1969.
- [37] M. J. Wale, « Self aligned, flip chip assembly of photonic devices with electrical and optical connections », in *40th Conference Proceedings on Electronic Components and Technology*, 1990, p. 34-41 vol.1.
- [38] W. R. Imler, K. D. Scholz, M. Cobarruviaz, V. K. Nagesh, C. C. Chao, et R. Haitz, « Precision flip-chip solder bump interconnects for optical packaging », *IEEE Trans. Compon. Hybrids Manuf. Technol.*, vol. 15, n° 6, p. 977-982, déc. 1992.

- [39] K. P. Jackson *et al.*, « A high-density, four-channel, OEIC transceiver module utilizing planar-processed optical waveguides and flip-chip, solder-bump technology », *J. Light. Technol.*, vol. 12, n° 7, p. 1185-1191, juill. 1994.
- [40] S. Lindgren *et al.*, « 24-GHz modulation bandwidth and passive alignment of flip-chip mounted DFB laser diodes », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 9, n° 3, p. 306-308, mars 1997.
- [41] M. Kostrzewa *et al.*, « InP dies transferred onto silicon substrate for optical interconnects application », *Sens. Actuators Phys.*, vol. 125, n° 2, p. 411-414, janv. 2006.
- [42] J. Justice, C. Bower, M. Meitl, M. B. Mooney, M. A. Gubbins, et B. Corbett, « Wafer-scale integration of group III-V lasers on silicon using transfer printing of epitaxial layers », *Nat. Photonics*, vol. 6, n° 9, p. 610-614, sept. 2012.
- [43] C. Zhang, S. Srinivasan, Y. Tang, M. J. R. Heck, M. L. Davenport, et J. E. Bowers, « Low threshold and high speed short cavity distributed feedback hybrid silicon lasers », *Opt. Express*, vol. 22, n° 9, p. 10202-10209, mai 2014.
- [44] A. W. Fang, H. Park, O. Cohen, R. Jones, M. J. Paniccia, et J. E. Bowers, « Electrically pumped hybrid AlGaInAs-silicon evanescent laser », *Opt. Express*, vol. 14, n° 20, p. 9203-9210, oct. 2006.
- [45] B. B. Bakir *et al.*, « Electrically driven hybrid Si/III-V Fabry-Pérot lasers based on adiabatic mode transformers », *Opt. Express*, vol. 19, n° 11, p. 10317-10325, mai 2011.
- [46] M. Lamponi *et al.*, « Low-Threshold Heterogeneously Integrated InP/SOI Lasers With a Double Adiabatic Taper Coupler », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 24, n° 1, p. 76-78, janv. 2012.
- [47] Y. De Koninck, G. Roelkens, et R. Baets, « Electrically pumped 1550 nm single mode III-V-on-silicon laser with resonant grating cavity mirrors », *Laser Photonics Rev.*, vol. 9, n° 2, p. L6-L10, mars 2015.
- [48] Panniccia, M., « Integrating silicon photonics », *Nat. Photonics*, vol. 4, n° 8, p. 498-499, août 2010.
- [49] A. Lee, H. Liu, et A. Seeds, « Semiconductor III-V lasers monolithically grown on Si substrates », *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 28, n° 1, p. 015027, 2013.
- [50] I. Lucci, C. Cornet, M. Bahri, et Y. Léger, « Thermal Management of Monolithic Versus Heterogeneous Lasers Integrated on Silicon », *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 22, n° 6, p. 35-42, nov. 2016.
- [51] C. Cornet, « Contribution to the study of monolithic integration of III-V semiconductors on silicon in the pseudomorphic approach for photonics and photovoltaics », "Habilitation à diriger les recherches", Université Rennes 1, 2014.
- [52] U. W. Pohl, *Epitaxy of Semiconductors*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2013.
- [53] P. J. McNally, « Techniques: 3D imaging of crystal defects », *Nature*, vol. 496, n° 7443, p. 37-38, avr. 2013.
- [54] Németh, I., « Transmission Electron Microscopic Investigations of Heteroepitaxial III-V Semiconductor Thin Layer and Quantum Well Structures », Thesis, Philipps Universität Marburg, 2008.
- [55] J. W. Matthews et A. E. Blakeslee, « Defects in epitaxial multilayers », *J. Cryst. Growth*, vol. 27, p. 118-125, déc. 1974.

- [56] R. People et J. C. Bean, « Calculation of critical layer thickness versus lattice mismatch for  $\text{GexSi}_{1-x}/\text{Si}$  strained-layer heterostructures », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 47, n° 3, p. 322-324, août 1985.
- [57] Y. Takagi, Y. Furukawa, A. Wakahara, et H. Kan, « Lattice relaxation process and crystallographic tilt in GaP layers grown on misoriented Si(001) substrates by metalorganic vapor phase epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 107, n° 6, p. 063506, mars 2010.
- [58] A. Ackaert, L. Buydens, D. Lootens, P. Van Daele, et P. Demeester, « Crack formation and thermal stress relaxation of GaAs on Si growth by metalorganic vapor phase epitaxy », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 55, n° 21, p. 2187-2189, nov. 1989.
- [59] N. Hayafuji *et al.*, « Crack Propagation and Mechanical Fracture in GaAs-on-Si », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 30, n° 3R, p. 459, mars 1991.
- [60] H. Kroemer, « Polar-on-nonpolar epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 81, n° 1, p. 193-204, févr. 1987.
- [61] K. Volz *et al.*, « GaP-nucleation on exact Si (001) substrates for III/V device integration », *J. Cryst. Growth*, vol. 315, n° 1, p. 37-47, janv. 2011.
- [62] E. Tea *et al.*, « Theoretical study of optical properties of anti phase domains in GaP », *J. Appl. Phys.*, vol. 115, n° 6, p. 063502, févr. 2014.
- [63] T. Quinci *et al.*, « Defects limitation in epitaxial GaP on bistedped Si surface using UHV-CVD-MBE growth cluster », *J. Cryst. Growth*, vol. 380, p. 157-162, oct. 2013.
- [64] M. Akiyama, Y. Kawarada, T. Ueda, S. Nishi, et K. Kaminishi, « Growth of high quality GaAs layers on Si substrates by MOCVD », *J. Cryst. Growth*, vol. 77, n° 1, p. 490-497, sept. 1986.
- [65] R. Fischer *et al.*, « Growth and properties of GaAs/AlGaAs on nonpolar substrates using molecular beam epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 58, n° 1, p. 374-381, juill. 1985.
- [66] Q. H. Xie, K. K. Fung, A. J. Ding, L. H. Cai, Y. Huang, et J. M. Zhou, « Asymmetric distribution of microtwins in a GaAs/Si heterostructure grown by molecular beam epitaxy », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 57, n° 26, p. 2803-2805, déc. 1990.
- [67] K. Madiomanana *et al.*, « Silicon surface preparation for III-V molecular beam epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 413, p. 17-24, mars 2015.
- [68] S. H. Huang, G. Balakrishnan, A. Khoshakhlagh, L. R. Dawson, et D. L. Huffaker, « Simultaneous interfacial misfit array formation and antiphase domain suppression on miscut silicon substrate », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 93, n° 7, p. 071102, août 2008.
- [69] J. B. Rodriguez, L. Cerutti, G. Patriarche, L. Largeau, K. Madiomanana, et E. Tournié, « Characterization of antimonide based material grown by molecular epitaxy on vicinal silicon substrates via a low temperature AlSb nucleation layer », *J. Cryst. Growth*, avr. 2017.
- [70] J. R. Reboul, L. Cerutti, J. B. Rodriguez, P. Grech, et E. Tournié, « Continuous-wave operation above room temperature of GaSb-based laser diodes grown on Si », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, n° 12, p. 121113, sept. 2011.
- [71] A. Castellano *et al.*, « Room-temperature continuous-wave operation in the telecom wavelength range of GaSb-based lasers monolithically grown on Si », *APL Photonics*, vol. 2, n° 6, p. 061301, mai 2017.
- [72] A. Y. Liu *et al.*, « Electrically pumped continuous-wave 1.3  $\mu\text{m}$  quantum-dot lasers epitaxially grown on on-axis (001) GaP/Si », *Opt. Lett.*, vol. 42, n° 2, p. 338-341, janv. 2017.

- [73] M. E. Groenert *et al.*, « Monolithic integration of room-temperature cw GaAs/AlGaAs lasers on Si substrates via relaxed graded GeSi buffer layers », *J. Appl. Phys.*, vol. 93, n° 1, p. 362-367, déc. 2002.
- [74] J. F. Geisz, J. M. Olson, M. J. Romero, C. s Jiang, et A. G. Norman, « Lattice-mismatched GaAsP Solar Cells Grown on Silicon by OMVPE », in *2006 IEEE 4th World Conference on Photovoltaic Energy Conference*, 2006, vol. 1, p. 772-775.
- [75] Q. Li *et al.*, « 1.3- $\mu\text{m}$  InAs quantum-dot micro-disk lasers on V-groove patterned and unpatterned (001) silicon », *Opt. Express*, vol. 24, n° 18, p. 21038-21045, sept. 2016.
- [76] S. Chen *et al.*, « Electrically pumped continuous-wave III-V quantum dot lasers on silicon », *Nat. Photonics*, vol. advance online publication, mars 2016.
- [77] S. Lourdudoss, « Heteroepitaxy and selective area heteroepitaxy for silicon photonics », *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 16, n° 2, p. 91-99, avr. 2012.
- [78] C. P. T. Svensson *et al.*, « Monolithic GaAs/InGaP nanowire light emitting diodes on silicon », *Nanotechnology*, vol. 19, n° 30, p. 305201, 2008.
- [79] R. Chen *et al.*, « Nanolasers grown on silicon », *Nat. Photonics*, vol. 5, n° 3, p. 170-175, mars 2011.
- [80] Z. Mi, J. Yang, P. Bhattacharya, et D. L. Huffaker, « Self-organised quantum dots as dislocation filters: the case of GaAs-based lasers on silicon », *Electron. Lett.*, vol. 42, n° 2, p. 121-123, janv. 2006.
- [81] J. Yang, P. Bhattacharya, et Z. Mi, « High-Performance In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaAs Quantum-Dot Lasers on Silicon With Multiple-Layer Quantum-Dot Dislocation Filters », *IEEE Trans. Electron Devices*, vol. 54, n° 11, p. 2849-2855, nov. 2007.
- [82] M. Tang *et al.*, « 1.3- $\mu\text{m}$  InAs/GaAs quantum-dot lasers monolithically grown on Si substrates using InAlAs/GaAs dislocation filter layers », *Opt. Express*, vol. 22, n° 10, p. 11528-11535, mai 2014.
- [83] Z. Wang *et al.*, « Room-temperature InP distributed feedback laser array directly grown on silicon », *Nat. Photonics*, vol. 9, n° 12, p. 837-842, déc. 2015.
- [84] T. Frost *et al.*, « Monolithic Electrically Injected Nanowire Array Edge-Emitting Laser on (001) Silicon », *Nano Lett.*, vol. 14, n° 8, p. 4535-4541, août 2014.
- [85] S. Liebich *et al.*, « Laser operation of Ga(NAsP) lattice-matched to (001) silicon substrate », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, n° 7, p. 071109-071109-3, août 2011.
- [86] J. P. van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, et W. A. Nordland, « Laser oscillation from quantum states in very thin GaAs-Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As multilayer structures », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 26, n° 8, p. 463-465, avr. 1975.
- [87] M. Asada, Y. Miyamoto, et Y. Suematsu, « Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers », *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 22, n° 9, p. 1915-1921, sept. 1986.
- [88] Y. Arakawa et H. Sakaki, « Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 40, n° 11, p. 939-941, juin 1982.
- [89] J.-M. Gérard, « Prospects of High-Efficiency Quantum Boxes Obtained by Direct Epitaxial Growth », in *Confined Electrons and Photons*, E. Burstein et C. Weisbuch, Éd. Springer US, 1995, p. 357-381.
- [90] R. P. Mirin, A. C. Gossard, et J. E. Bowers, « Characterization of InGaAs quantum dot lasers with a single quantum dot layer as an active region », *Phys. E Low-Dimens. Syst. Nanostructures*, vol. 2, n° 1, p. 738-742, juill. 1998.

- [91] D. Bimberg, M. Grundmann, et N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*. John Wiley & Sons, 1999.
- [92] I. N. Stranski et L. Krastanow, *Abh. Math.-Naturwissenschaftlichen Kl. Iib Akad. Wiss. Wien*, vol. 146, p. 797, 1938.
- [93] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, et G. Le Roux, « Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 47, n° 10, p. 1099-1101, nov. 1985.
- [94] J. Tersoff et F. K. LeGoues, « Competing relaxation mechanisms in strained layers », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 72, n° 22, p. 3570-3573, mai 1994.
- [95] P. Caroff-Gaonach, « Croissance de boîtes quantiques InAs/InP(113)B pour les applications télécommunications optiques », FOTON-OHM, 2005.
- [96] J. Drucker, « Coherent islands and microstructural evolution », *Phys. Rev. B*, vol. 48, n° 24, p. 18203-18206, déc. 1993.
- [97] J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, et G. Bastard, « Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, n° 5, p. 716-719, août 1994.
- [98] V. M. Ustinov *et al.*, « InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at 1.3  $\mu\text{m}$  », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, n° 19, p. 2815-2817, mai 1999.
- [99] F. Hatami *et al.*, « Carrier dynamics in type-II GaSb/GaAs quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 57, n° 8, p. 4635-4641, févr. 1998.
- [100] J. Heebner, R. Grover, et T. Ibrahim, *Optical microresonators: theory, fabrication, and applications*. London: Springer, 2008.
- [101] G. H. Duan *et al.*, « Hybrid III-V on Silicon Lasers for Photonic Integrated Circuits on Silicon », *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 20, n° 4, p. 158-170, juill. 2014.
- [102] G. C. Park *et al.*, « Hybrid vertical-cavity laser with lateral emission into a silicon waveguide », *Laser Photonics Rev.*, vol. 9, n° 3, p. L11-L15, mai 2015.
- [103] T. Spuesens, L. Liu, T. de Vries, P. R. Romeo, P. Regreny, et D. V. Thourhout, « Improved design of an InP-based microdisk laser heterogeneously integrated with SOI », in *2009 6th IEEE International Conference on Group IV Photonics*, 2009, p. 202-204.
- [104] K. Takeda *et al.*, « Few-fJ/bit data transmissions using directly modulated lambda-scale embedded active region photonic-crystal lasers », *Nat. Photonics*, vol. 7, n° 7, p. 569-575, juill. 2013.
- [105] I. R. Sellers *et al.*, « 1.3  $\mu\text{m}$  InAs/GaAs multilayer quantum-dot laser with extremely low room-temperature threshold current density », *Electron. Lett.*, vol. 40, n° 22, p. 1412-1413, oct. 2004.
- [106] R. Michalzik, « VCSEL Fundamentals », in *VCSELS*, vol. 166, R. Michalzik, Éd. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2013, p. 19-75.
- [107] C. F. R. Mateus, M. C. Y. Huang, Y. Deng, A. R. Neureuther, et C. J. Chang-Hasnain, « Ultrabroadband mirror using low-index cladded subwavelength grating », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 16, n° 2, p. 518-520, févr. 2004.
- [108] H. Lee *et al.*, « Chemically etched ultrahigh-Q wedge-resonator on a silicon chip », *Nat. Photonics*, vol. 6, n° 6, p. 369-373, juin 2012.
- [109] J. Van Campenhout *et al.*, « Electrically pumped InP-based microdisk lasers integrated with a nanophotonic silicon-on-insulator waveguide circuit », *Opt. Express*, vol. 15, n° 11, p. 6744, 2007.

- [110] S. Matsuo *et al.*, « Room-temperature continuous-wave operation of lateral current injection wavelength-scale embedded active-region photonic-crystal laser », *Opt. Express*, vol. 20, n° 4, p. 3773, févr. 2012.
- [111] D. G. Deppe, H. Huang, et O. B. Shchekin, « Modulation characteristics of quantum-dot lasers: the influence of p-type doping and the electronic density of states on obtaining high speed », *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 38, n° 12, p. 1587-1593, déc. 2002.
- [112] O. B. Shchekin et D. G. Deppe, « Low-threshold high-T<sub>0</sub> 1.3- $\mu$ m InAs quantum-dot lasers due to p-type modulation doping of the active region », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 14, n° 9, p. 1231-1233, sept. 2002.
- [113] W. T. Tsang, « A graded-index waveguide separate-confinement laser with very low threshold and a narrow Gaussian beam », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 39, n° 2, p. 134-137, juill. 1981.
- [114] C. Paranthoen *et al.*, « Room temperature laser emission of 1.5  $\mu$ m from InAs/InP(311)B quantum dots », *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 17, n° 2, p. L5, 2002.
- [115] P. Caroff *et al.*, « High-gain and low-threshold InAs quantum-dot lasers on InP », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, n° 24, p. 243107, déc. 2005.
- [116] Y. Furukawa, H. Yonezu, A. Wakahara, S. Ishiji, S. Y. Moon, et Y. Morisaki, « Growth of Si/III-V-N/Si structure with two-chamber molecular beam epitaxy system for optoelectronic integrated circuits », *J. Cryst. Growth*, vol. 300, n° 1, p. 172-176, mars 2007.
- [117] T. Soga, H. Nishikawa, T. Jimbo, et M. Umeno, « Characterization of Antiphase Domain in GaP on Misoriented (001) Si Substrate Grown by Metalorganic Chemical Vapor Deposition », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 32, n° Part 1, No. 11A, p. 4912-4915, nov. 1993.
- [118] T. Soga, T. George, T. Jimbo, et M. Umeno, « Nucleation mechanisms for compound semiconductors grown on Si by MOCVD », *J. Cryst. Growth*, vol. 115, n° 1, p. 418-422, déc. 1991.
- [119] J. M. Olson, M. M. Al-Jassim, A. Kibbler, et K. M. Jones, « MOCVD growth and characterization of GaP on Si », *J. Cryst. Growth*, vol. 77, n° 1, p. 515-523, sept. 1986.
- [120] H. Kawanami, T. Sakamoto, T. Takahashi, E. Suzuki, et K. Nagai, « Heteroepitaxial Growth of GaP on a Si (100) Substrate by Molecular Beam Epitaxy », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 21, n° Part 2, No. 2, p. L68-L70, févr. 1982.
- [121] S. L. Wright, M. Inada, et H. Kroemer, « Polar-on-nonpolar epitaxy: Sublattice ordering in the nucleation and growth of GaP on Si(211) surfaces », *J. Vac. Sci. Technol.*, vol. 21, n° 2, p. 534-539, juill. 1982.
- [122] S. L. Wright, H. Kroemer, et M. Inada, « Molecular beam epitaxial growth of GaP on Si », *J. Appl. Phys.*, vol. 55, n° 8, p. 2916, 1984.
- [123] Y. Takagi, H. Yonezu, K. Samonji, T. Tsuji, et N. Ohshima, « Generation and suppression process of crystalline defects in GaP layers grown on misoriented Si(100) substrates », *J. Cryst. Growth*, vol. 187, n° 1, p. 42-50, avr. 1998.
- [124] K. Yamane *et al.*, « Operation of Monolithically-Integrated Digital Circuits with Light Emitting Diodes Fabricated in Lattice-Matched Si/III-V-N/Si Heterostructure », *Appl. Phys. Express*, vol. 3, n° 7, p. 074201, juin 2010.
- [125] P. Guillemé *et al.*, « Antiphase domain tailoring for combination of modal and 4-quasi-phase matching in gallium phosphide microdisks », *Opt. Express*, vol. 24, n° 13, p. 14608, juin 2016.

- [126] T. J. Grassman *et al.*, « Control and elimination of nucleation-related defects in GaP/Si(001) heteroepitaxy », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, n° 23, p. 232106, juin 2009.
- [127] A. C. Lin, M. M. Fejer, et J. S. Harris, « Antiphase domain annihilation during growth of GaP on Si by molecular beam epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 363, p. 258-263, janv. 2013.
- [128] Y. P. Wang *et al.*, « Abrupt GaP/Si hetero-interface using birstepped Si buffer », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 107, n° 19, p. 191603, nov. 2015.
- [129] Y. Ping Wang *et al.*, « Quantitative evaluation of microtwins and antiphase defects in GaP/Si nanolayers for a III–V photonics platform on silicon using a laboratory X-ray diffraction setup », *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 48, n° 3, p. 702-710, juin 2015.
- [130] E. L. Warren, A. E. Kibbler, R. M. France, A. G. Norman, P. Stradins, et W. E. McMahon, « Growth of antiphase-domain-free GaP on Si substrates by metalorganic chemical vapor deposition using an in situ AsH<sub>3</sub> surface preparation », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 107, n° 8, p. 082109, août 2015.
- [131] A. Navarro, E. García-Tabarés, B. Galiana, P. Caño, I. Rey-Stolle, et C. Ballesteros, « MOVPE growth of GaP on Si with As initial coverage », *J. Cryst. Growth*, vol. 464, p. 8-13, avr. 2017.
- [132] J. A. Prieto, G. Armelles, M.-E. Pistol, P. Castrillo, J. P. Silveira, et F. Briones, « Optical studies of GaAs quantum wells strained to GaP », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, n° 25, p. 3449-3451, juin 1997.
- [133] C. Robert, M. Perrin, C. Cornet, J. Even, et J. M. Jancu, « Atomistic calculations of Ga(NAsP)/GaP(N) quantum wells on silicon substrate: Band structure and optical gain », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, n° 11, p. 111901, mars 2012.
- [134] A. Bondi *et al.*, « Light emitting diodes on silicon substrates: preliminary results », *Phys. Status Solidi C*, vol. 6, n° 10, p. 2212-2216, oct. 2009.
- [135] C. Robert *et al.*, « Room temperature operation of GaAsP(N)/GaP(N) quantum well based light-emitting diodes: Effect of the incorporation of nitrogen », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 98, n° 25, p. 251110, juin 2011.
- [136] B. Kunert, K. Volz, et W. Stolz, « Dilute nitride Ga(NAsP)/GaP-heterostructures: toward a material development for novel optoelectronic functionality on Si-substrate », *Phys. Status Solidi B*, vol. 244, n° 8, p. 2730-2739, août 2007.
- [137] K. Momose, H. Yonezu, Y. Fujimoto, Y. Furukawa, Y. Motomura, et K. Aiki, « Dislocation-free and lattice-matched Si/GaP<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub>/Si structure for photo-electronic integrated systems », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, n° 25, p. 4151-4153, déc. 2001.
- [138] F. Hatami *et al.*, « Optical emission from ultrathin strained type-II InP/GaP quantum wells », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, n° 18, p. 2886-2888, oct. 2001.
- [139] F. Hatami, W. T. Masselink, V. Lordi, et J. S. Harris, « Green emission from InP-GaP quantum-dot light-emitting diodes », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 18, n° 7, p. 895-897, avr. 2006.
- [140] F. Hatami, W. T. Masselink, et J. S. Harris, « Colour-tunable light-emitting diodes based on InP/GaP nanostructures », *Nanotechnology*, vol. 17, n° 15, p. 3703, 2006.
- [141] F. Hatami, V. Lordi, J. S. Harris, H. Kostial, et W. T. Masselink, « Red light-emitting diodes based on InP/GaP quantum dots », *J. Appl. Phys.*, vol. 97, n° 9, p. 096106, mai 2005.
- [142] A. R. Goñi, C. Kristukat, F. Hatami, S. Dreßler, W. T. Masselink, et C. Thomsen, « Electronic structure of self-assembled InP/GaP quantum dots from high-pressure photoluminescence », *Phys. Rev. B*, vol. 67, n° 7, p. 075306, févr. 2003.

- [143] F. Hatami *et al.*, « InP quantum dots embedded in GaP: Optical properties and carrier dynamics », *Phys. Rev. B*, vol. 67, n° 8, p. 085306, févr. 2003.
- [144] S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, et A. Forchel, « Growth and properties of high areal density GaIn<sub>1-x</sub>P quantum dots on GaP substrate », in *IEEE LEOS Annual Meeting Conference Proceedings, 2009. LEOS '09*, 2009, p. 149-150.
- [145] S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, et A. Forchel, « The structural and optical characterization of high areal density Ga<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>P quantum dots on GaP », *Nanotechnology*, vol. 20, n° 43, p. 434016, 2009.
- [146] W. Guo *et al.*, « First step to Si photonics: synthesis of quantum dot light-emitters on GaP substrate by MBE », *Phys. Status Solidi C*, vol. 6, n° 10, p. 2207-2211, oct. 2009.
- [147] T. S. Shamirzaev, D. S. Abramkin, A. K. Gutakovskii, et M. A. Putyato, « High quality relaxed GaAs quantum dots in GaP matrix », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, n° 2, p. 023108, juill. 2010.
- [148] S. Dadgostar *et al.*, « GaAs/GaP quantum dots: Ensemble of direct and indirect heterostructures with room temperature optical emission », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 108, n° 10, p. 102103, mars 2016.
- [149] C. Golz, S. Dadgostar, W. T. Masselink, et F. Hatami, « Thermal behavior and carrier injection of GaAs/GaP quantum dots light emitting diodes », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 110, n° 9, p. 091101, févr. 2017.
- [150] T. Nguyen Thanh *et al.*, « Room temperature photoluminescence of high density (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, n° 14, p. 143123-143123-3, oct. 2011.
- [151] G. Stracke *et al.*, « Indirect and direct optical transitions in In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 12, p. 123107, mars 2014.
- [152] K. Rivoire, S. Buckley, Y. Song, M. L. Lee, et J. Vučković, « Photoluminescence from In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaP quantum dots coupled to photonic crystal cavities », *Phys. Rev. B*, vol. 85, n° 4, p. 045319, janv. 2012.
- [153] C. Robert *et al.*, « Theoretical and experimental studies of (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Nanoscale Res. Lett.*, vol. 7, n° 1, p. 643, 2012.
- [154] C. R. Pidgeon et R. N. Brown, « Interband Magneto-Absorption and Faraday Rotation in InSb », *Phys. Rev.*, vol. 146, n° 2, p. 575-583, juin 1966.
- [155] J. C. Slater et G. F. Koster, « Simplified LCAO Method for the Periodic Potential Problem », *Phys. Rev.*, vol. 94, n° 6, p. 1498-1524, juin 1954.
- [156] C. Robert *et al.*, « Electronic, optical, and structural properties of (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 86, n° 20, p. 205316, nov. 2012.
- [157] J. Bardeen et W. Shockley, « Deformation Potentials and Mobilities in Non-Polar Crystals », *Phys. Rev.*, vol. 80, n° 1, p. 72-80, oct. 1950.
- [158] C. Robert *et al.*, « Strain-induced fundamental optical transition in (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 1, p. 011908, janv. 2014.
- [159] C. Robert *et al.*, « Electronic wave functions and optical transitions in (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 94, n° 7, p. 075445, août 2016.
- [160] C. Prohl *et al.*, « Spatial structure of In<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>As/GaAs/GaP quantum dots on the atomic scale », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, n° 12, p. 123102, mars 2013.
- [161] J. Shen, Y. Song, M. L. Lee, et J. J. Cha, « Spatially resolved In and As distributions in InGaAs/GaP and InGaAs/GaAs quantum dot systems », *Nanotechnology*, vol. 25, n° 46, p. 465702, 2014.

- [162] K. Gradkowski *et al.*, « Complex emission dynamics of type-II GaSb/GaAs quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 95, n° 6, p. 061102, août 2009.
- [163] J.-P. Gauthier *et al.*, « Effect of the nitrogen incorporation and fast carrier dynamics in (In,Ga)AsN/GaP self-assembled quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, n° 24, p. 243111, déc. 2014.
- [164] E. M. Sala *et al.*, « Growth and structure of In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>Sb quantum dots on GaP(001) », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 109, n° 10, p. 102102, sept. 2016.
- [165] S. Y. Moon, H. Yonezu, Y. Furukawa, S. M. Kim, Y. Morita, et A. Wakahara, « Dislocation-Free In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>P<sub>1-y</sub>N<sub>y</sub>/GaP<sub>1-z</sub>N<sub>z</sub> Double-Heterostructure Light Emitting Diode on Si Substrate », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, n° 4A, p. 1752-1755, avr. 2005.
- [166] K. Umeno *et al.*, « MBE growth of GaAsN/GaP(N) quantum wells with abrupt heterointerfaces for photonics applications on Si substrates », *J. Cryst. Growth*, vol. 311, n° 7, p. 1748-1753, mars 2009.
- [167] Y. Song et M. L. Lee, « InGaAs/GaP quantum dot light-emitting diodes on Si », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, n° 14, p. 141906, sept. 2013.
- [168] M. Heidemann, S. Höfling, et M. Kamp, « (In,Ga)As/GaP electrical injection quantum dot laser », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 1, p. 011113, janv. 2014.
- [169] S. R. Chinn, P. S. Zory, et A. R. Reisinger, « A model for GRIN-SCH-SQW diode lasers », *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 24, n° 11, p. 2191-2214, nov. 1988.
- [170] B. Kunert, S. Zinnkann, K. Volz, et W. Stolz, « Monolithic integration of Ga(NAsP)/(BGa)P multi-quantum well structures on (0 0 1) silicon substrate by MOVPE », *J. Cryst. Growth*, vol. 310, n° 23, p. 4776-4779, nov. 2008.
- [171] J. F. Geisz, D. J. Friedman, S. Kurtz, R. C. Reedy, et G. Barber, « Alternative boron precursors for BGaAs epitaxy », *J. Electron. Mater.*, vol. 30, n° 11, p. 1387-1391, nov. 2001.
- [172] A. A. Tonkikh *et al.*, « Structural and electronic properties of epitaxial multilayer h-BN on Ni(111) for spintronics applications », *Sci. Rep.*, vol. 6, p. srep23547, mars 2016.
- [173] N. Urakami, F. Fukami, H. Sekiguchi, H. Okada, et A. Wakahara, « Growth of dilute BGaP alloys by molecular beam epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 378, p. 96-99, sept. 2013.
- [174] N. Hossain *et al.*, « Reduced threshold current dilute nitride Ga(NAsP)/GaP quantum well lasers grown by MOVPE », *Electron. Lett.*, vol. 47, n° 16, p. 931, 2011.
- [175] N. Hossain *et al.*, « Efficiency-limiting processes in Ga(NAsP)/GaP quantum well lasers », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, n° 1, p. 011107-011107-4, juill. 2012.
- [176] C. Robert, « Study of III-V nanostructures on GaP for lasing emission on Si », Thesis, FOTON-OHM, 2013.
- [177] N. Hossain *et al.*, « Band structure properties of (BGa)P semiconductors for lattice matched integration on (001) silicon », 2013, p. 47-48.



## Chapitre 2 Croissance et dopage de l'AlGaP

Dans nos structures lasers GaP, le confinement optique et l'injection électrique sont assurés par des couches d'AlGaP entourant la zone active du laser. Notre but est d'obtenir une surface de qualité optique et des niveaux de dopage activés élevés par un choix judicieux de la température, de la vitesse et du rapport des flux d'éléments utilisés lors de la croissance. La croissance des échantillons a été réalisée par T. Rohel et les mesures par effet Hall par N. Chevalier. Pour ce qui est des mesures C(V) et de spectroscopie transitoire de centres profonds (Deep Level Transient Spectroscopy, DLTS), elles ont été réalisées par J.-P. Burin. Les procédés technologiques, le traitement des données et l'interprétation ont été réalisés par moi-même. Ce travail est en partie publié dans la référence [1].

### 2.1. Introduction

Le développement de structures laser à base de GaP requiert l'utilisation de couches de confinement optique telles que le BGaP [2] ou l'AlGaP [3] qui garantissent, d'une part un paramètre de maille proche du GaP et d'autre part, un contraste d'indice élevé pour le confinement optique. En effet, la différence de paramètre de maille de l'AlP avec le GaP (Si) est seulement de 0,23 % (0,6 %) à 300 K, ce qui permet de maintenir un cristal d'AlGaP pseudomorphique après un micromètre de croissance sur une couche de GaP non contrainte [4], [5]. De plus, le contraste d'indice entre l'AlP et le GaP atteint 0,3 à 1,8 eV [5]. Pour comparaison, le contraste d'indice entre l'AlAs et le GaAs est d'environ 0,5 à 0,9 eV. L'aspect confinement optique sera traité plus en détail dans le Chapitre 4. Au-delà des propriétés optiques et structurales intéressantes, l'alliage AlGaP doit avoir de bonnes propriétés électriques (et particulièrement de hauts niveaux de dopage actifs) afin de permettre une injection électrique efficace [6]. Il existe quelques travaux ayant utilisé des couches épitaxiées d'AlGaP pour des composants. Les principales réalisations concernent des lasers à boîtes quantiques [3], des lasers à puits quantiques [7], des photodiodes [8], des modulateurs [9], des super-réseaux [10], [11], des miroirs de Bragg sur GaP [12] et sur Si [13] et des cellules solaires [14]. Malgré ces démonstrations de composants, un nombre limité de recherches a été publié sur l'étude de la croissance de l'AlGaP que ce soit par épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, MOCVD) [15]–[19] ou par épitaxie par jets moléculaires (Molecular Beam Epitaxy, MBE) [4], [20], [21].

L'ensemble des études précédentes sur la croissance de l'AlGaP utilisaient une source gazeuse pour les éléments V ce qui n'est pas le cas dans notre étude. Takeda *et al.* [15] ont observé que l'AlGaP crû à 650 °C par MOCVD entraînait la formation d'une surface rugueuse. Ils ont attribué cette rugosité aux impuretés résiduelles comme l'oxygène et/ou l'eau présentes dans le tertiary-butylphosphine (TBP). Ceci souligne la difficulté d'obtenir des couches épitaxiées d'AlGaP de bonne qualité. Ozasa *et al.* [16] ont démontré que, pour une température de croissance au-dessus de 585 °C, une détérioration de la surface d'AlGaP est observée. La raison avancée est la désorption du phosphore qui influe sur la morphologie de la surface. Ensuite, Dadgostar *et al.* [20] ont souligné l'influence du flux de PH<sub>3</sub> sur la formation d'îlots 3D. De plus, ils ont effectué un lien entre la température de croissance et la formation de défauts structuraux. Une température de croissance au-dessus de 490 °C entraîne l'apparition de défauts dus à la désorption du phosphore comme cité précédemment. Pour une température inférieure à 490 °C, la présence des défauts provient d'une mobilité insuffisante des éléments III. Baillargeon *et al.* [21] ont obtenu une croissance 3D de l'AlGaP pour une température inférieure ou égale à 740 °C et une vitesse de croissance de 1,2-2 µm/h. La croissance 3D a été attribuée à la faible mobilité de surface des atomes d'Al. Pour ce qui est des propriétés électriques, ils ont étudié le dopage Si d'une couche épitaxiée d'Al<sub>0,28</sub>Ga<sub>0,72</sub>P par mesures C(V) et I(V). Ils ont obtenu un maximum de concentration de porteurs de  $1.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  pour une température de cellule Si de 1225 °C. Enfin, Adomi *et al.* [17] ont montré la possibilité d'incorporer du Zn et du Se comme dopant p- et n- pour l'AlGaP. De plus, ils ont aussi démontré la dépendance importante de la composition d'Al sur l'incorporation de dopants et ont observé des différences d'incorporation de ces dopants dans le GaP et l'AlGaP sans toutefois discuter leur activation dans ce dernier. En dépit de ces travaux, une étude systématique des propriétés structurales et de l'activation des dopants de l'AlGaP n'a pas encore été proposée.

Dans ce chapitre, la croissance de l'AlGaP est réalisée sur un substrat GaP par MBE afin d'étudier l'influence des paramètres de croissance comme le rapport de pression équivalente des éléments V sur les éléments III (rapport BEP V/III), la vitesse et la température de croissance sur les propriétés structurales et électriques de cet alliage. Premièrement, nous allons montrer l'influence importante de la température de croissance sur la rugosité de surface, déterminée par AFM [Annexe C]. Puis, les niveaux de dopage p-

(Be) et n-(Si) ainsi que leur activation sont discutés à l'aide de mesures C(V) [Annexe D], effet Hall [Annexe D], et d'analyses SIMS. Enfin, la présence de centres profonds dans l'AlGaP est mise en évidence par DLTS [22] [Annexe D] et DLTS isotherme (I-DLTS) [23] [Annexe D].

## 2.2. Expériences

Après la désorption de l'oxyde réalisée sous flux de phosphore à 650 °C, des échantillons d'AlGaP d'un micromètre sont crûs sur des substrats de GaP (001) en utilisant le bâti de croissance cristalline à source solide SSMBE décrit dans la référence [24] et en [annexe A]. La température de croissance est suivie à l'aide d'un thermocouple placé sous le substrat. Après la désorption de l'oxyde, une reconstruction 2 x 4 est observée par diffraction électronique de surface (RHEED). Pendant la croissance de l'AlGaP, le motif RHEED est constitué de points durant les premières monocouches, révélant une croissance tri-dimensionnelle (3D) et devient rapidement 2D durant le dépôt (motif constitué de lignes droites) excepté à basse température de croissance (500 °C) où le motif RHEED reste 3D. Les éléments III (Al et Ga) sont envoyés à partir d'une cellule à effusion conventionnelle de type Knusden. L'élément V, le P, est introduit à l'aide d'une cellule cracker à vanne. Les cellules de dopants sont du Si pour le dopage n et du Be pour le dopage p. Pour le dopage n, deux creusets ont été étudiés : un creuset conique avec une ouverture de 10° (grande divergence) et un creuset cylindrique avec une ouverture de 1° (faible divergence). Ces deux creusets seront appelés respectivement creuset à petite et grande ouverture par la suite. Le creuset ayant une grande ouverture a aussi un diamètre plus grand ce qui suppose que le flux de Si à la surface de l'échantillon doit être plus important. Ce dernier est utilisé afin d'augmenter le flux des dopants avec pour but d'accroître leur incorporation. Plus de 40 échantillons ont été réalisés pour cette étude. Certains d'entre eux sont spécifiques à un type de caractérisation (mesures SIMS par exemple) et seront présentés avec les résultats obtenus. Parmi eux, 20 échantillons d'AlGaP sont particulièrement importants afin de soutenir les conclusions du chapitre. Leurs paramètres de croissances sont présentés dans le tableau Tab. 2.1. Tous les échantillons de ces trois séries ont été crûs en utilisant une cellule d'Al à effusion de haute pureté 6N5 chargée récemment. Pour ce qui est du dopage Si, il a été réalisé en utilisant le creuset ayant une grande ouverture. Enfin, la composition d'Al visée est de 45 %. La première série (échantillons s1 à s12) inclue les échantillons d'AlGaP dopés n. Ici, l'AlGaP:n

est crû sur deux types de substrats GaP : non-intentionnellement dopé et dopé n. Dans la suite, ils seront appelés, respectivement, GaP:nid et GaP:n.

Sample	AlGaP layer doping	Doping cell T (°C)	Growth T (°C)	GaP substrate doping	Growth rate (ML/s)	V/III BEP ratio
s1 (S1603)	n (Si)	1039	710	n	0.6	13
s2 (S1603)				nid		
s3 (S1604)			680	n		
s4 (S1604)				nid		
s5 (S1605)			650	n		
s6 (S1605)				nid		
s7 (S1612)		1057	710	n	0.9	8
s8 (S1612)				nid		
s9 (S1613)			680	n		
s10 (S1613)				nid		
s11 (S1614)			650	n		
s12 (S1614)				nid		
s13 (S1646)	p (Be)	723	650	nid	0.6	13
s14 (S1645)			580			
s15 (S1644)			500			
s16 (S1681)	nid	/	710	n	0.6	13
s17 (S1682)			680			
s18 (S1683)			650			
s19 (S1680)			580			
s20 (S1683)			500			

**Tab. 2.1: Paramètres de croissance des échantillons AlGaP crûs sur substrat GaP par SS-MBE. Tableau issu de [1].**

Pour ces substrats, la densité de trous gravés (Etching Pit Density, EPD) donnée par le fabricant est inférieure ou égale à  $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ . Deux vitesses de croissances différentes seront considérées : 0,6 monocouche par seconde (ML/s) (avec un rapport BEP V/III de 13) et 0,9 ML/s (avec un rapport BEP V/III de 8) pour trois températures de croissance différentes : 650, 680 et 710 °C. La température de cellule Si a été ajustée afin de compenser la vitesse de croissance en se basant sur des échantillons GaP de calibration afin de viser le même niveau de dopage :  $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . La seconde série d'échantillons (échantillons s13 à s15) inclue les échantillons AlGaP dopé p. L'AlGaP:p est crû sur substrat GaP:nid avec une vitesse de croissance de 0.6 ML/s pour trois températures de croissances : 500, 580 et 650 °C. La température de cellule de Be a été ajustée afin de viser un niveau de dopage de  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Les substrats GaP:p n'ont pas été utilisés dans cette étude car ils sont difficilement disponibles commercialement avec une qualité raisonnable. La dernière série (échantillons s16 à s20) se concentre sur des échantillons d'AlGaP:nid crûs sur un substrat GaP:n avec une vitesse de croissance de 0,6 ML/s et pour cinq températures de croissances : 500, 580, 650,

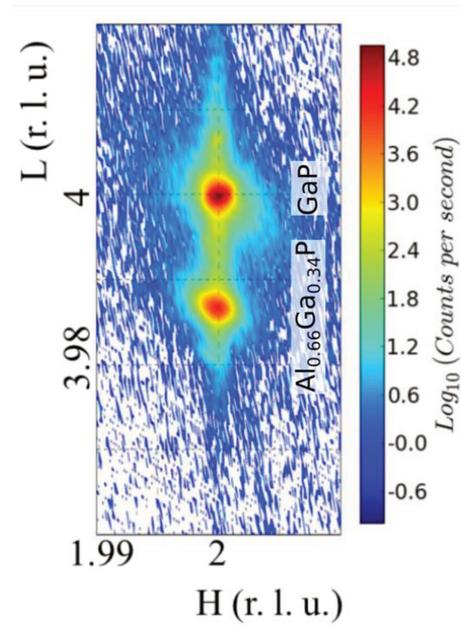
680 et 710 °C. Le choix de la vitesse de croissance : 0,6 et 0,9 ML/s permet un compromis entre la garantie d'une longueur de diffusion suffisante des atomes d'Al [25] pour une température inférieure ou égale à 740 °C comme discuté dans la référence [21] et le maintien d'un temps raisonnable de croissance pour des couches de confinement épaisses. Les vitesses de croissances ont été soigneusement calibrées par RHEED et par diffraction des rayons-X (X-ray diffraction, XRD) [Annexe B]. Des dépôts métalliques de type Pd/Zn/Pd [26], Ni/Au/Ge/Au/Ni/Au [27] et Ti/Au sont utilisés respectivement pour les contacts ohmiques p, n et les contacts Schottky. Avec ces métaux (sauf pour le contact Ti/Au), de bonnes caractéristiques ohmiques sont obtenues après un recuit thermique rapide. Une résistance série de l'ordre de 10  $\Omega$  et une résistivité de contact caractéristique pour le contact p de l'ordre de  $8 \times 10^{-6} \Omega/\text{cm}^2$  sont obtenues (pour plus de détails, voir la référence [6]). Aucune passivation n'est réalisée sur les échantillons d'AlGaP. L'oxyde natif présent est plus fin (typiquement quelques nanomètres) que celui obtenu sur AlGaAs [28]. Ainsi, nous ferons l'hypothèse que la possible apparition de défauts dus à l'oxydation de l'Al, et pouvant impacter les propriétés électriques de l'alliage, est compensée par la diffusion des contacts métalliques dans le semi-conducteur. Le choix de la température de croissance a été réalisé à partir d'études préliminaires (non présentées ici) dans le but de mettre en évidence les principaux processus physiques impliqués dans l'activation des dopants. La composition en Al de l'alliage et la possible relaxation du paramètre de maille ont été mesurées par diffraction des rayons X dans la configuration haute résolution  $\omega/2\theta$  (High resolution XRD, HRXRD) et par des cartographies de l'espace réciproque autour de la réflexion de Bragg du GaP (224). La teneur en Al mesurée était toujours dans la gamme [40-50]% pour tous les échantillons et la très petite dispersion observée est due aux différentes conditions de croissances utilisées. Par conséquent, les défauts structuraux et électriques sont considérés indépendants de la variation de la composition en Al. La morphologie de surface et la rugosité sont déterminées par AFM en mode contact et les propriétés électriques sont déduites des mesures effet Hall pour la concentration de porteurs libres, SIMS pour les dopants incorporés, C(V) pour les dopants ionisés et DLTS pour caractériser les centres profonds. Les mesures par effet Hall sont réalisées avec des contacts ohmiques sur des substrats GaP:nid, dû à l'absence de substrat commercial GaP semi-isolant. Ce choix entraîne une légère incertitude sur la détermination de la concentration de porteurs libres que nous estimons à être de 30 % au maximum pour les niveaux de dopage faibles. Cependant, les

différences obtenues entre les échantillons sont suffisamment larges pour conclure sans ambiguïté sur l'activation effective (ou non) des dopants. Les mesures C(V) et DLTS sont réalisées sur AlGaP:n/GaP:n en utilisant un contact Schottky au-dessus et un contact ohmique n en-dessous. Enfin, des niveaux de dopage inférieurs à  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  sont considérés comme étant en dehors de la gamme de mesures du fait des niveaux de dopages non-intentionnels et de la sensibilité des appareils de mesures utilisés.

### 2.3. Propriétés générales de l'AlGaP

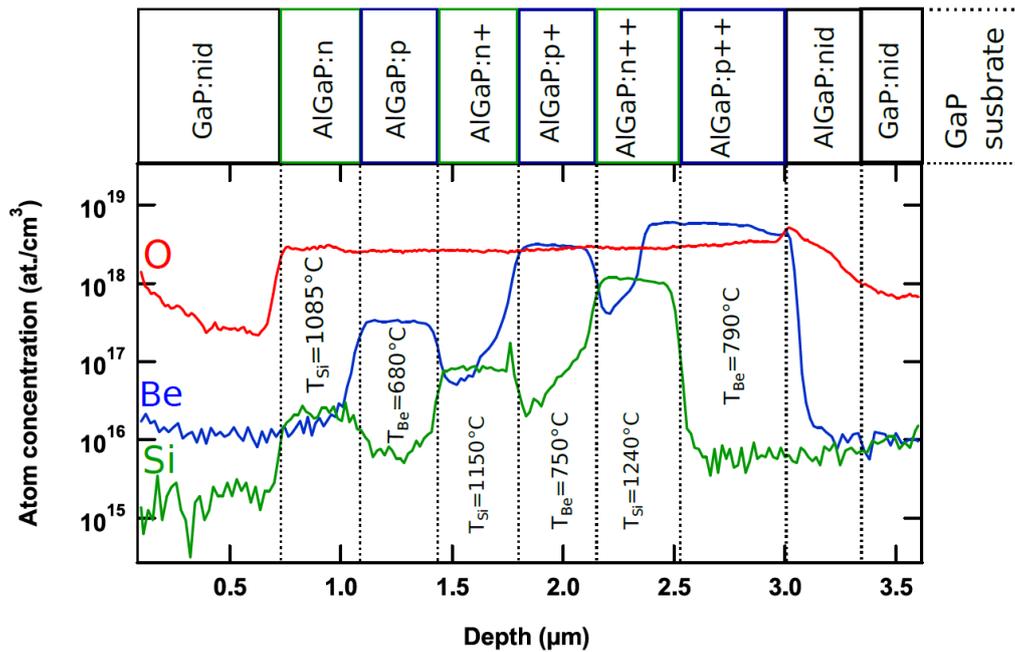
Tous les échantillons présents dans cette étude sont des échantillons épais d'un micromètre d'AlGaP dans le but d'être capable de déduire leurs propriétés électriques. Si la teneur en Al ne change pas de façon significative dans les échantillons avec des paramètres de croissances différents, la relaxation du paramètre de maille doit être étudiée avec précaution, car elle peut avoir un impact sur les propriétés structurales et électroniques. En effet, la différence de paramètre de maille entre AlP et GaP est de 0,24 % à température ambiante, ce qui est faible, mais pas insignifiant pour des couches épitaxiées épaisses. Il a été démontré que des couches épaisses d'AlGaP (300 nm) avec différentes compositions en Al restent parfaitement contraintes sur le substrat GaP [5].

Afin de vérifier si cette observation est vraie pour les échantillons présentés dans cette étude, une cartographie de l'espace réciproque XRD suivant la réflexion de Bragg (224) réalisée sur un échantillon épais d'une couche d'un micromètre d' $\text{Al}_{0.66}\text{Ga}_{0.34}\text{P}$  (non inclus dans le tableau Tab. 2.1) est présentée dans la Fig. 2.1. Cet échantillon représente un cas extrême pour la relaxation du cristal comparé aux autres échantillons étudiés du fait de sa composition en Al plus importante tout en gardant l'épaisseur d'un micromètre. La Fig. 2.1 indique clairement un alignement vertical parfait du pic de diffraction de l'AlGaP avec celui du substrat GaP. Ce résultat prouve un comportement pseudomorphique de la couche d'AlGaP épitaxiée et de plus, confirme une absence de relaxation de la contrainte dans l'ensemble des échantillons présentés dans ce chapitre. Il est intéressant de noter que la relaxation du cristal d'AlGaP n'a jamais été observée durant toute l'étude, ce qui tend à suggérer que des couches épaisses avec une composition d'Al encore plus importante peuvent être crûes en maintenant un comportement pseudomorphique pour les composants photoniques.



**Fig. 2.1:** Cartographie XRD de l'espace réciproque autour de la réflexion de Bragg (224) d'un échantillon épais d'une couche d'un micromètre d' $Al_{0.66}Ga_{0.34}P$  crû sur substrat GaP. La cartographie est représentée en fonction des indices de Miller  $h$  et  $l$  en unités de l'espace réciproque (r. l. u.). Figure issue de [1].

Dans la suite, les défauts structuraux et électriques sont par conséquent supposés être indépendants de tout processus de relaxation du cristal. Au-delà de la possible apparition de dislocations induites par les défauts du cristal, un autre problème fréquent lors de la croissance d'alliage contenant de l'Al et/ou dopé Be est le comportement piègeur (ou « getter ») de l'Al et du Be, spécifiquement avec l'oxygène. Les analyses SIMS sont ici utilisées pour suivre la concentration d'atomes de Si, Be et d'O dans les couches d'AlGaP épitaxiées. L'échantillon considéré a été crû à une température de 580 °C et à une vitesse de 0.9 ML/s en utilisant le creuset ayant une faible ouverture pour le dopage Si. La cellule d'Al utilisée a été chargée un an avant la croissance de l'échantillon et a été maintenue dans des conditions UHV standard à l'intérieur de la chambre MBE. Une description plus détaillée de l'échantillon est donnée dans la Fig. 2.2.



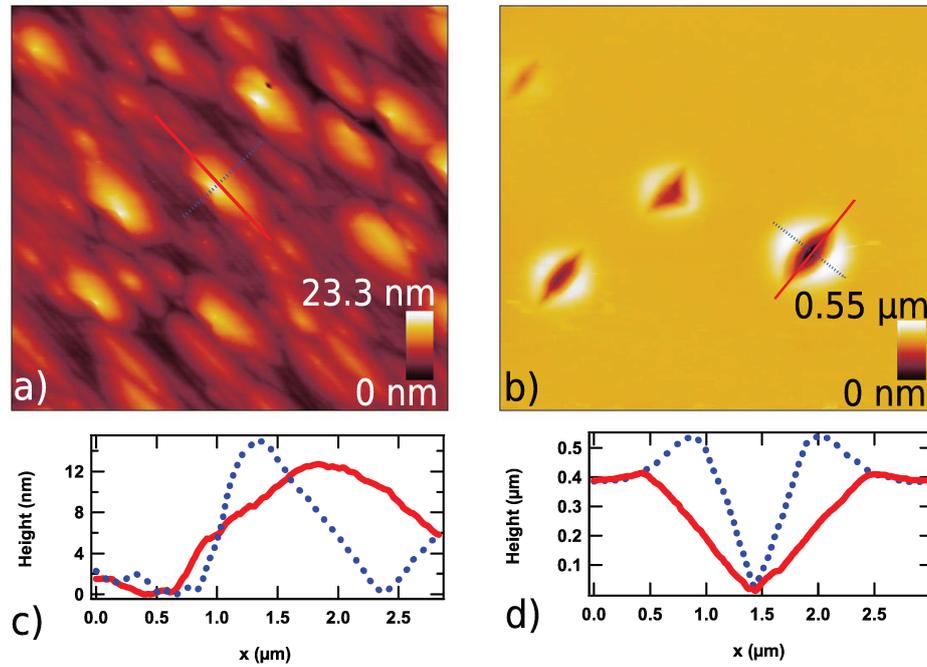
**Fig. 2.2:** Concentration d'atomes d'O (ligne rouge), de Be (ligne bleu) et de Si (ligne verte) déterminée par les analyses SIMS dans un échantillon dopé d'AlGaP. La structure de l'empilement de l'échantillon est donnée au-dessus de la courbe. La vitesse et la température de croissance utilisées sont 0,9 ML/s et 580° C. Figure issue de [1].

L'échantillon débute avec une couche épitaxiée de GaP:nid et d'AlGaP:nid suivie par des couches d'AlGaP dopées alternativement p et n en diminuant les niveaux de dopages. Les températures de cellules correspondantes sont données dans la Fig. 2.2. Enfin, une couche de GaP:nid est crûe au sommet de l'échantillon. Les profils de concentrations d'atomes sont représentés dans la Fig. 2.2. Les zones de dopage n et p sont clairement visibles en suivant la concentration des atomes Be et Si. Malgré la présence de régimes transitoires significatifs entre les zones de dopage dûe à la résolution verticale du SIMS et de la diffusion des dopants, l'identification des couches avec l'incorporation des dopants correspondants peut-être réalisée sans ambiguïté. Pour ce qui est de la concentration en O, la Fig. 2.2 montre qu'il n'existe pas de corrélation entre le niveau d'O et le dopant utilisé. Cependant, l'augmentation du niveau d'oxygène est totalement corrélée avec l'utilisation de la cellule d'Al. Ces résultats montrent que la cellule d'Al elle-même joue le rôle de source de contamination d'oxygène pour les couches d'AlGaP épitaxiées. Le niveau de contamination ( $>10^{18}$  atoms/cm<sup>3</sup>) est aussi une importante valeur à considérer. En effet, même si nous pouvons considérer que l'utilisation d'une cellule d'Al fraîchement chargée réduira cette valeur (ce qui a été fait pour les échantillons du tableau Tab. 2.1), l'ordre de grandeur sera comparable aux niveaux de dopage visés ce qui pourra avoir un impact fort sur l'activation

des dopants. Par conséquent, la contamination en O est considérée comme un important problème afin d'obtenir des couches épitaxiées d'AlGaP de haute qualité.

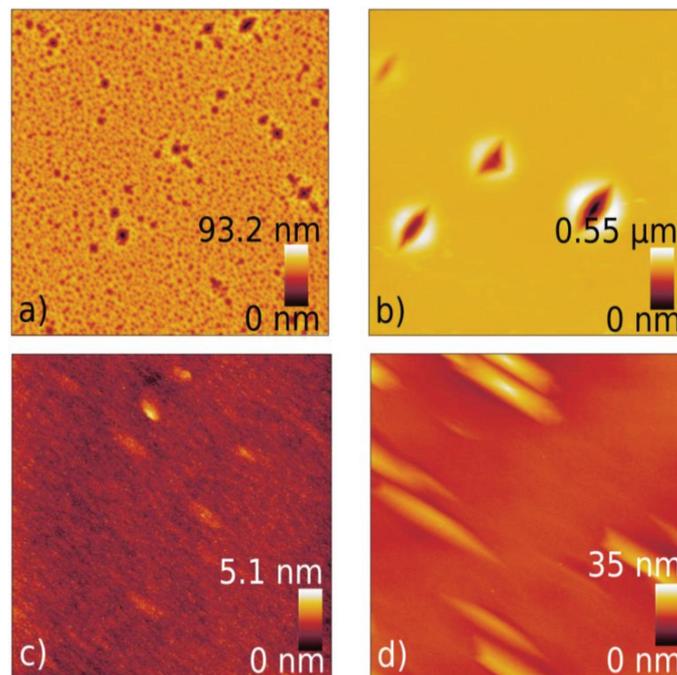
## 2.4. Morphologie de surface

Les mesures AFM sont réalisées sur l'ensemble des divers échantillons d'AlGaP présentés dans le tableau Tab. 2.1. A partir de ces mesures, les défauts apparaissant au niveau de la surface peuvent être classifiés en deux catégories : les défauts de type « bosse » et les défauts de type « yeux de chat ». Les caractéristiques de ces défauts sont présentées dans la Fig. 2.3. Dans certaines conditions de croissance, la surface apparaît rugueuse avec la présence de « bosses » 3D. Une image typique de ces défauts « bosses » est donnée dans la Fig. 2.3a. Les profils des sections transverses typiques d'un défaut « bosse » sont donnés dans la Fig. 2.3c (lignes continues et pointillées). Les « bosses » ont une hauteur de 12-14 nm et un diamètre autour de 1-2  $\mu\text{m}$ . Pour caractériser les défauts de type « bosse », la moyenne quadratique de l'histogramme des hauteurs appelée RMS sera utilisée. L'autre défaut commun présent dans les couches épitaxiées d'AlGaP est un défaut avec une forme de trou asymétrique à la surface de l'échantillon, qui impacte la rugosité seulement localement. L'échantillon peut être relativement plat ailleurs. Ces défauts de type « yeux de chat » sont présentés dans la Fig. 2.3b. Les profils des sections transverses typiques d'un défaut « yeux de chat » sont donnés dans la Fig. 2.3d (lignes continues et pointillées). Ces défauts de type « yeux de chat » ont une profondeur d'environ 400 nm et un diamètre entre 1 et 2  $\mu\text{m}$ . Pour caractériser ces défauts, la densité de défauts, ici des trous, sera déterminée directement à partir de l'image AFM. Du fait de la présence de ces derniers, la RMS sera mesurée localement dans une région sans trous. La morphologie de ce type de défauts a été observée dans des couches d' $\text{Al}_{0.85}\text{Ga}_{0.15}\text{P}$  crues sur substrat GaP par Dadgostar *et al.* [20]. Les conditions de croissances utilisées dans ces travaux sont cependant totalement différentes de celles utilisées dans notre étude car leur chambre d'épitaxie est à source gazeuse (GSMBE).



**Fig. 2.3:** Images AFM  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  et profils extraits montrant les défauts de type « bosses » ((a)-(c)) (s1) et les défauts de type « yeux de chat » ((b)-(d)) (s19). Figure issue de [1].

Des images AFM  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  correspondant à des échantillons AlGaP:nid/GaP:n avec différentes températures de croissance (s16, s18, s19 et s20) et une vitesse de croissance de 0,6 ML/s sont présentées dans la Fig. 2.4.



**Fig. 2.4:** Images AFM  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  correspondant aux différentes températures de croissances d'AlGaP : 500 °C (s20) a), 580 °C (s19), 650°C (s18) c) et 710 °C (s16) d). Figure issue de [1].

A 500 °C (Fig. 2.4a), la surface de l'échantillon est tellement rugueuse qu'il est difficile de distinguer les différentes contributions des défauts « bosses » et « yeux de chat » indépendamment les uns des autres. Les observations RHEED réalisées pendant la croissance de l'échantillon ont tendance à le confirmer car le motif RHEED composé de tâches quasi-isotropes est une signature du mode de croissance 3D. L'amplitude crête à crête de la hauteur est de 93,2 nm, la RMS de 5,7 nm et la densité de trous est 0,25 trous/ $\mu\text{m}^2$ . La croissance 3D est probablement due à la faible longueur de diffusion de l'Al à la surface à cette température basse (500 °C). Cet effet est renforcé par le relativement haut rapport BEP V/III utilisé dans ce cas (rapport BEP V/III de 13). Dans la Fig. 2.4b correspondant à une température de croissance de 580 °C, la présence de défauts de type « yeux de chat » est mise en évidence. L'amplitude crête à crête de la hauteur est de 0,55  $\mu\text{m}$ , la RMS locale est de 1,4 nm et la densité de trous est de 0,04 trous/ $\mu\text{m}^2$ . Le lien entre ce type de défauts et le type de substrat semble indiquer qu'ils sont générés au niveau du substrat et se propagent dans la structure. De plus, il est important de noter que ce n'est généralement pas observé pour des couches homoépitaxiées de GaP aux températures standards de croissance. Enterrer ces défauts requiert une mobilité suffisante des atomes à la surface ce qui est obtenu pour des températures au-dessus de 580 °C pour l'AlGaP. A 650 °C (Fig. 2.4c), la surface de l'échantillon est lisse comme le montre la rugosité RMS : 0,391 nm, la hauteur maximale de 5,1 nm et l'absence de défauts de type « bosses » ou « yeux de chat » à la surface. Dans la Fig. 2.4d correspondant à 710 °C, l'apparition de défauts de type « bosses » est mise en évidence. Le maximum de hauteur est 35 nm, la RMS est de 2,13 nm et il n'y a pas de trous à la surface. Nous attribuons l'apparition de défauts de type « bosses » à la désorption du phosphore qui peut apparaître à ces températures de croissances [29].

Dans la Fig. 2.5, la densité de trous et le niveau de RMS sont tracés en fonction de la température de croissance pour différents types de dopage de la couche d'AlGaP et du substrat (échantillons s1 à s6 et s13 à s20). A 500 °C, pour les échantillons AlGaP:nid/GaP:n, il est difficile d'identifier les différents types de défauts du fait de l'importante densité de trous qui est autour de 0,25 trous/ $\mu\text{m}^2$ . Cette grande densité est de plus liée à une valeur de rugosité importante. Pour cette même température, la densité de trous est de 0,07 trous/ $\mu\text{m}^2$  pour les échantillons AlGaP:p/GaP:nid, ce qui indique la présence de défauts de type « yeux de chat » décrits précédemment.

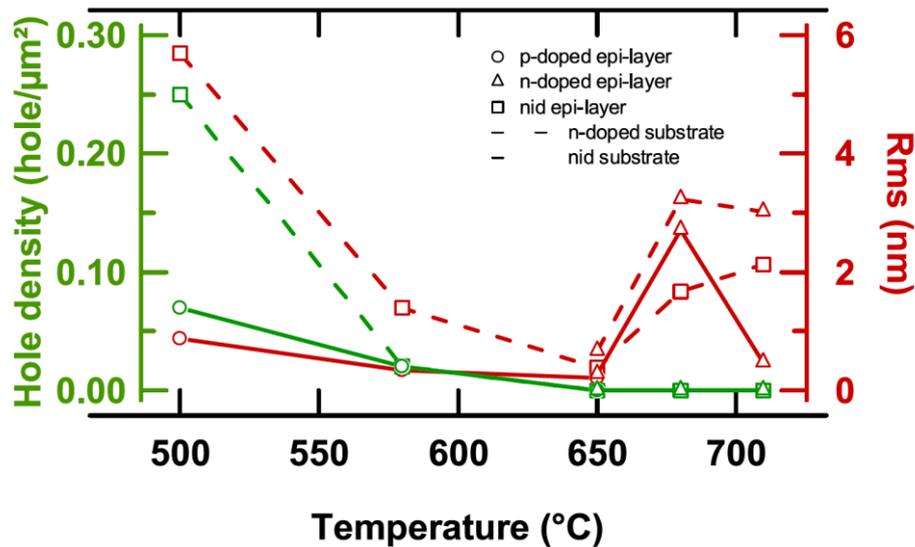


Fig. 2.5: Etude de la série d'échantillons AlGaP crûe à 0,6 ML/s correspondante aux échantillons s1 à s6 et s13 à s20 où la rugosité RMS (symboles rouges) et la densité de trous (symboles verts) sont tracées en fonction de la température de croissance. Cette série d'échantillons est composée de différentes couches dopées : type p (cercles), type n (triangles) et type nid (carrés) sur substrat GaP:n (lignes pointillées) et GaP:nid (ligne continue). Figure issue de [1].

Ces défauts sont aussi présents à 580 °C pour les échantillons suivants : AlGaP:nid/GaP:n et AlGaP:p/GaP:nid avec des densités de trous respectives autour de 0,04 et 0,02 trous/ $\mu\text{m}^2$ . Cette densité tombe à 0 pour une température de croissance égale ou supérieure à 650 °C quel que soit la nature de la couche épitaxiée et du substrat. Les défauts de type « yeux de chat » sont, par conséquent, formés quand la température de croissance est inférieure ou égale à 580 °C. A 650 °C, la valeur de la RMS est faible pour tous les échantillons : 0,40 nm pour AlGaP:nid/GaP:n, 0,27 nm pour AlGaP:n/GaP:nid, 0,21 nm pour AlGaP:p/GaP:nid et 0,65 nm pour AlGaP:n/GaP:n. Dans la gamme de température [680-710] °C, la rugosité augmente de façon significative pour les différents échantillons. Dans cette gamme, la RMS est de 3,2 nm et 3 nm pour AlGaP:n/GaP:n, 2,7 nm et 0,47 nm pour AlGaP:n/GaP:nid et 1,7 nm et 2,1 nm pour AlGaP:nid/GaP:n. Des valeurs élevées de RMS indiquent la présence de défauts de type « bosses » décrits précédemment. Une température inférieure à 680 °C est donc nécessaire afin de prévenir leurs formations. La désorption du phosphore est ici considérée comme le processus physique limitant qui génère de la rugosité de surface quand la température de croissance est trop haute [29]. Aucun impact de ces défauts sur les propriétés structurales cristallines n'a été observé par XRD. Ces défauts indiquent clairement que la température de croissance joue un rôle décisif

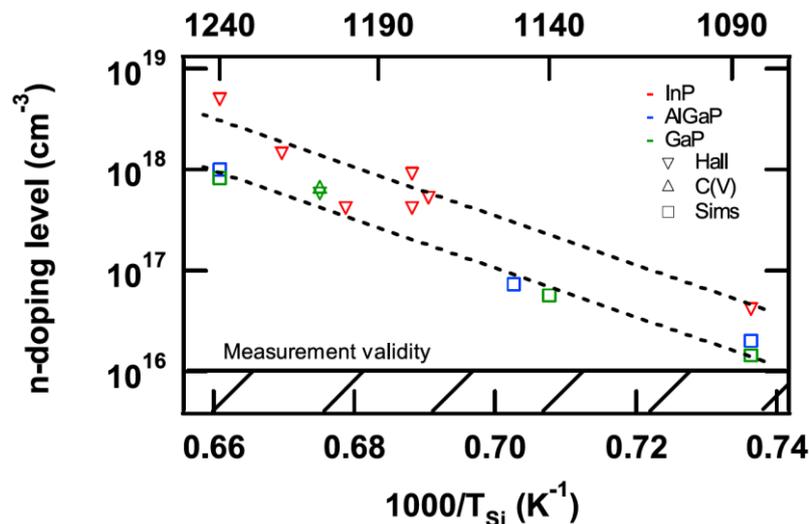
dans la morphologie de la surface avec un optimum autour de 650 °C. De plus, le choix du substrat décrit précédemment dans [30] et l'incorporation de dopants semblent avoir un rôle significatif sur la morphologie de surface. La température de croissance de l'AlGaP doit donc être assez élevée (>580 °C) afin de prévenir l'apparition d'une croissance 3D ou de défauts de type « yeux de chat » qui sont probablement dues à une faible mobilité des atomes d'Al à la surface et assez faible (<680 °C) afin de limiter l'augmentation de la rugosité provenant des « bosses » qui proviennent de la désorption du phosphore dans nos conditions de croissances.

Pour ce qui est de la vitesse de croissance et du rapport BEP V/III, une comparaison a été réalisée sur des échantillons AlGaP:n crûs avec deux vitesses de croissances différentes : 0.6 ML/s (échantillons : s1 à s6, avec un rapport BEP V/III égale à 13) et 0,9 ML/s (échantillons : s7 à s12, avec un rapport BEP V/III égale à 8). A 0,6 ML/s et un rapport BEP V/III égale à 13 (échantillons : s1 to s6), la valeur de la rugosité obtenue est égale à 0,7/0,3 (650 °C), 3,2/2,7 (680 °C) et 3,0/0,5 (710 °C) pour des échantillons crûs respectivement sur substrat GaP:n/GaP:nid. A 0,9 ML/s et un rapport BEP V/III égal à 8 (échantillons : s7 to s12), la valeur de la rugosité obtenue est égale à 1,5/6,1 (650 °C), 3,3/3,2 (680 °C) et 4,2/1,8 (710 °C) pour des échantillons crûs respectivement sur substrat GaP:n/GaP:nid. La rugosité est systématiquement plus importante à 0,9 ML/s (V/III=8) qu'à 0,6 ML/s (V/III=13), indépendamment de la température de croissance et du type de substrat. La nécessité de croître l'AlGaP à la plus basse vitesse de croissance possible a été discutée auparavant dans la réf. [25]. Là encore, la désorption du phosphore peut-être limitée par l'utilisation d'un ratio BEP V/III suffisamment élevé afin de prévenir la croissance 3D comme évoqué dans la réf. [20]. Cependant, de plus amples comparaisons avec des travaux précédents restent hasardeuses car les techniques et les paramètres de croissances utilisés sont différents (du point de vue de la technique de croissance, du rapport BEP V/III, de la vitesse et de la température de croissance). De toute façon, la problématique de la désorption du phosphore est critique en SSMBE où des flux de phosphore importants ne peuvent pas être atteints. Dans ce contexte, même si l'utilisation de la MOCVD permet d'atteindre de larges rapports V/III, elle doit faire face à une autre problématique qui est l'incorporation importante de dopants non-intentionnels. Par conséquent, la GSMBE apparaît comme un

compromis intéressant pour la croissance de l'AlGaP car elle n'est pas limitée par le dopage non-intentionnel et permet l'accès à une plus grande gamme de rapport V/III.

## 2.5. Propriétés électriques

La capacité à atteindre des hauts niveaux de dopage est un facteur clé afin de réaliser des composants à injection électrique. Dans un premier temps, le dopage n de l'AlGaP est étudié. La Fig. 2.6 présente le niveau de dopage en  $\text{cm}^{-3}$  mesuré par différentes techniques expérimentales en fonction de l'inverse de la température de la cellule de Si en  $\text{K}^{-1}$  pour différents matériaux. Le creuset, utilisé ici pour le dopage Si, est celui ayant une petite ouverture. Le niveau de dopage est normalisé à une vitesse de croissance de 1 ML/s dans le but d'éviter un dépassement artificiel de la limite de solubilité.

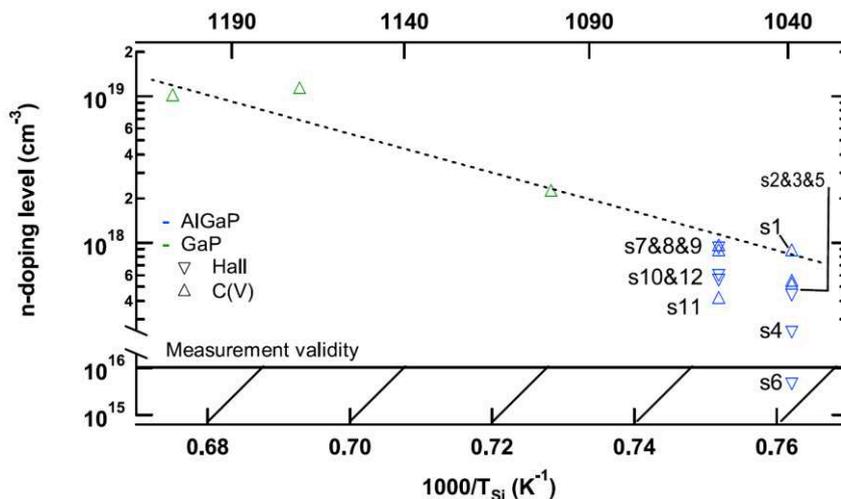


**Fig. 2.6:** Niveau de dopage n en fonction de l'inverse de la température de la cellule de Si avec le creuset ayant une petite ouverture pour différents matériaux : AlGaP (symboles bleus), GaP (symboles verts) et InP (symboles rouges) obtenus par mesures SIMS (carrés), C(V) (triangles avec pointe orientée vers le haut) et effet Hall (triangles avec pointe orientée vers le bas). Les lignes pointillées sont un guide pour les yeux. Le niveau de dopage est normalisé à une vitesse de croissance de 1 ML/s. Figure issue de [1].

Quelques échantillons d'InP crûs dans la même chambre MBE sont aussi ajoutés à la Fig. 2.6 et seront utilisés comme référence dans l'analyse. En effet, le dopage de l'InP est bien connu depuis des années et est maîtrisé, si le niveau de dopage attendu n'excède pas la limite de solubilité des dopants, comme en témoignent les nombreux composants de hautes performances développés avec ce matériau [31]. Pour les échantillons InP, les mesures Hall montrent qu'un niveau de dopage activé élevé est atteint, environ  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  à  $0,66 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  (1240 °C). Concernant les mesures SIMS réalisées sur GaP et AlGaP avec le même creuset

ayant une faible ouverture, l'incorporation des dopants est similaire pour les deux matériaux mais légèrement plus faible que dans l'InP. De plus, les dopants sont ionisés et activés pour le GaP comme le confirme les données Hall et C(V) pour  $0,675 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  (1208 °C) avec un niveau de dopage de  $6 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . La légère différence d'incorporation du Si entre les matériaux à base de GaP et ceux à base d'InP peut être expliquée par des considérations cinétiques : différence d'éléments III et différence de températures de croissance.

Malgré ces résultats encourageants, le creuset à petite ouverture a été remplacé par un creuset à grande ouverture dans le but d'atteindre des niveaux de dopages plus élevés pour des lasers à base de GaP et des architectures photovoltaïques. La Fig. 2.7 présente le niveau de dopage en  $\text{cm}^{-3}$  mesuré par différentes techniques expérimentales en fonction de l'inverse de la température de la cellule de Si en  $\text{K}^{-1}$  pour les échantillons s1 à s12. Le creuset utilisé pour le dopage Si, comme évoqué ci-dessus, est celui à grande ouverture.



**Fig. 2.7:** Niveau de dopage  $n$  en fonction de l'inverse de la température de la cellule de Si avec le creuset ayant une grande ouverture pour différents matériaux : AlGaP (symboles bleu), GaP (symboles vert) obtenus par mesures C(V) (triangles avec pointe orientée vers le haut) et effet Hall (triangles avec pointe orientée vers le bas). Les lignes pointillées sont un guide pour les yeux. Le niveau de dopage est normalisé à une vitesse de croissance de 1 ML/s. Figure issue de [1].

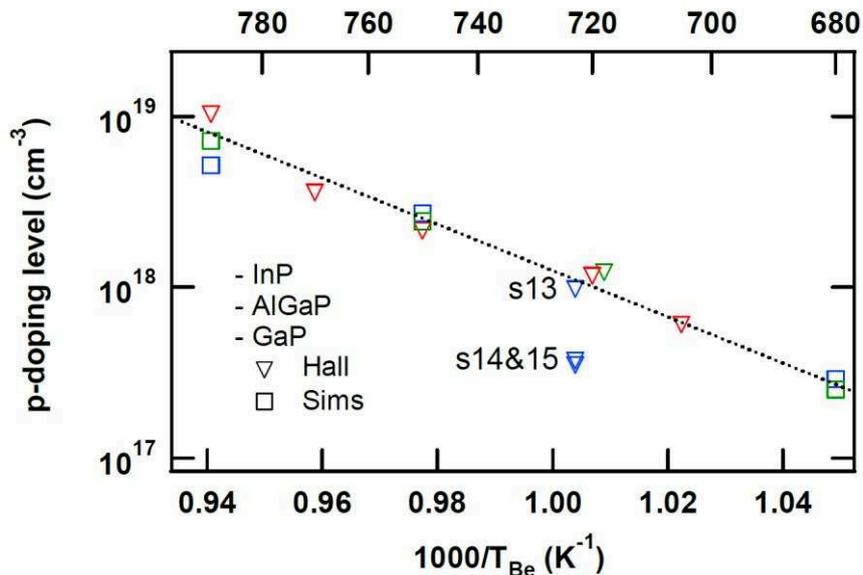
Dans ces conditions, un niveau de dopage de l'ordre de  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  est atteint à  $0,6963 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  (1170 °C) pour un échantillon de GaP dopé  $n$  par mesure C(V). Ce niveau de dopage montre le bénéfice du changement d'ouverture du creuset Si. Les échantillons d'AlGaP ont été réalisés en utilisant deux températures de cellule Si : 1057 °C ( $0.751 \text{ K}^{-1}$ ) pour les échantillons s7 à s12 et 1039 °C ( $0.762 \text{ K}^{-1}$ ) pour les échantillons s1 à s6. Les résultats de ces

deux séries, obtenus par mesures Hall et C(V), sont présentés dans la Fig. 2.7. La plupart des mesures de niveaux de dopage dans l'AlGaP sont en corrélation avec ceux obtenus précédemment pour les échantillons GaP. Les valeurs typiques des niveaux de dopage activés normalisés sont autour de  $6,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

Pour chaque matériau et creuset (Fig. 2.6 et Fig. 2.7), l'enthalpie de sublimation est extraite à partir du facteur exponentiel de l'ajustement des données par une loi d'Arrhenius sur la base des mesures C(V) et SIMS. L'enthalpie de sublimation mesurée (4,14 eV) correspond à la valeur théorique du Si (4,7 eV) avec une barre d'erreur d'au maximum 12 % indiquant que l'évaporation à partir de la cellule de dopant est réalisée sous des conditions standards. On peut noter cependant une exception pour l'échantillon s6 pour qui le niveau de dopage est beaucoup plus faible que celui attendu. Cette exception sera analysée en détails par la suite mais il est déjà clair que les dopants incorporés ne sont pas toujours activés dans l'AlGaP suivant le choix des conditions de croissances et plus spécifiquement de la température de croissance.

Les niveaux de dopage p dans l'InP, le GaP et l'AlGaP (échantillons s13 à s15) sont présentés en Fig. 2.8. Comme évoqué précédemment, il n'y a pas de mesures C(V) pour le dopage p du fait de la mauvaise qualité des substrats GaP:p. Les échantillons InP réalisés pour les mesures Hall sont pris comme référence. Un niveau de dopage élevé est atteint, environ  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  à  $0,94 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  (790 °C). Pour ce qui est des mesures SIMS pour le GaP et l'AlGaP, les niveaux de dopage sont en corrélation avec ceux mesurés en InP. De plus, les dopants sont activés pour le GaP comme le confirme la mesure Hall à  $1,009 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  (718 °C) avec un niveau de dopage mesuré et normalisé de  $1,26 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Pour les échantillons AlGaP:p crûs sur substrat GaP:nid à différentes températures, les dopants p sont totalement activés seulement pour un échantillon, le s13, avec un niveau de dopage de  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (à  $1,004 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  (723 °C) dans la Fig. 2.8). Cet échantillon a été crû avec une vitesse de croissance de 0,6 ML/s et est dopé avec une température de cellule Be de 723 °C. La dépendance à la température de croissance des échantillons AlGaP:p sera discutée dans la suite mais encore ici, l'activation des dopants p dépend des conditions de croissance même si leur impact semble être moindre que pour le dopage n. Pour ce qui est de l'enthalpie de sublimation des matériaux dopés p, la valeur issue des mesures (2,58 eV) correspond à la

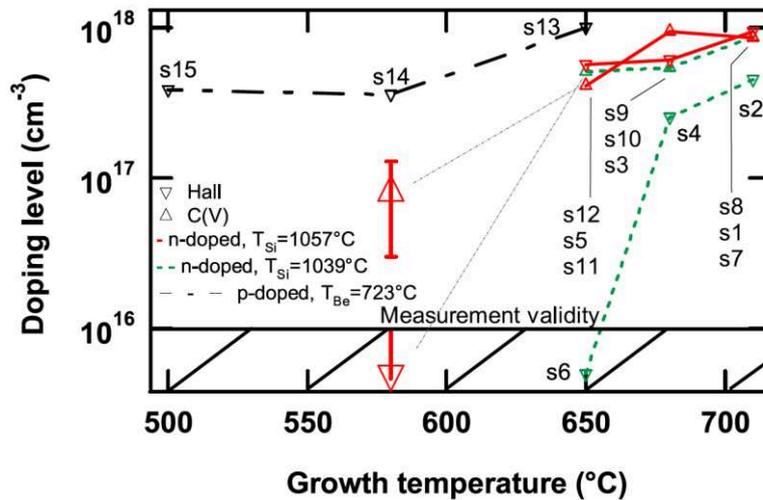
valeur théorique de celle du Be (3,36 eV) avec une barre d'erreur de 24 % maximum. Cette différence peut être expliquée par la diffusion du Be décrite précédemment dans la Fig. 2.2.



**Fig. 2.8:** Niveau de dopage p en fonction de l'inverse de la température de la cellule de Be pour différents matériaux : AlGaP (symboles bleu), GaP (symboles vert), InP (symboles rouges) obtenus par mesures SIMS (carrés) et effet Hall (triangles avec pointe orientée vers le bas). Les lignes pointillées sont un guide pour les yeux. Le niveau de dopage est normalisé à une vitesse de croissance de 1 ML/s. Figure issue de [1].

Finalement, l'influence de la température de croissance sur le niveau de dopage des échantillons d'AlGaP dopés est présentée en Fig. 2.9. Le niveau de dopage en cm<sup>-3</sup> est tracé en fonction de la température de croissance en °C pour deux mesures différentes : les mesures Hall représentant la concentration de porteurs libres et les mesures C(V) représentant les dopants ionisés. Le type de dopage et la température de la cellule associée sont représentés par des lignes avec des styles différents. Pour les échantillons AlGaP:p, les niveaux de dopage mesurés par effet Hall sont autour de 5 x 10<sup>17</sup> cm<sup>-3</sup> dans la gamme de température: [500-580] °C (échantillons: s15 et s14) et augmentent jusqu'à 10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup> à 650 °C (échantillon s13). Nous concluons donc que même si une température de 650 °C est préférable pour totalement activer le dopage Be (échantillon s13), les paramètres de croissance ne sont pas critiques et une activation efficace des dopants peut être réalisée même à des températures plus basses. La situation est plus critique du côté du dopage n où une importante variation des niveaux de dopage est observée. Les niveaux de dopage mesurés et normalisés pour les échantillons s1 à s12 sont représentés dans la Fig. 2.9. Deux points ont été ajoutés (triangles plus gros) et correspondent à des échantillons d'AlGaP crus

à 580 °C et à 0,9 ML/s sur substrat GaP:nid pour la mesure par effet Hall et sur substrat GaP:n pour les mesures C(V) en utilisant une température de cellule Si de 1057 °C (non présents dans le tableau Tab. 2.1). Ces deux points sont tous deux issus d'une moyenne réalisée sur une série de plus dix échantillons crûs dans les mêmes conditions. A partir de cette série, une barre d'erreur a été ajoutée pour chacun de ces deux échantillons.



**Fig. 2.9:** Niveau de dopage de l'AlGaP en fonction de la température de croissance obtenu par mesures C(V) (triangles avec pointe orientée vers le haut) et effet Hall (triangles avec pointe orientée vers le bas). Pour le dopage n, une ligne pointillée verte et une ligne solide rouge sont utilisées pour des températures de cellules de Si respectivement de 1039 °C (s1 à s6) et 1057 °C (s7 à s12). Pour le dopage p avec une température de cellule Be de 723 °C (s13 à s15), une ligne noire pointillée avec des tirets est utilisée. Deux points (symboles plus grands) ont été ajoutés avec leurs barres d'erreur correspondantes. Ces points sont issus d'une statistique sur dix d'échantillons d'AlGaP crûs à 580 °C et dopés avec une cellule de Si à 1057 °C. Le niveau de dopage est normalisé à une vitesse de croissance de 1 ML/s. Figure issue de [1].

Pour une température de croissance de 580 °C alors que le dopage n ionisé mesuré par mesures C(V) est aux alentours de  $5,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , aucune activation des dopants, mesurée par effet Hall, n'est observée. A plus hautes températures, le niveau de dopage n des échantillons s1, s3, s5, s7 et s9 et s11 obtenu par mesures C(V) tend à augmenter de  $10^{17}$  à  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  avec l'augmentation de la température de croissance. Pour les échantillons réalisés en vue de mesures par effet Hall (échantillons : s2, s4 et s6) et dopés à l'aide d'une température de cellule Si à 1039 °C, l'augmentation de la température de croissance tend à réduire la différence avec les niveaux de dopage mesurés par C(V) passant de deux décades à moins d'une (le niveau de dopage déterminé par mesures par effet Hall est la moitié de la valeur obtenue par mesures C(V)). Le comportement des échantillons dopés par une cellule

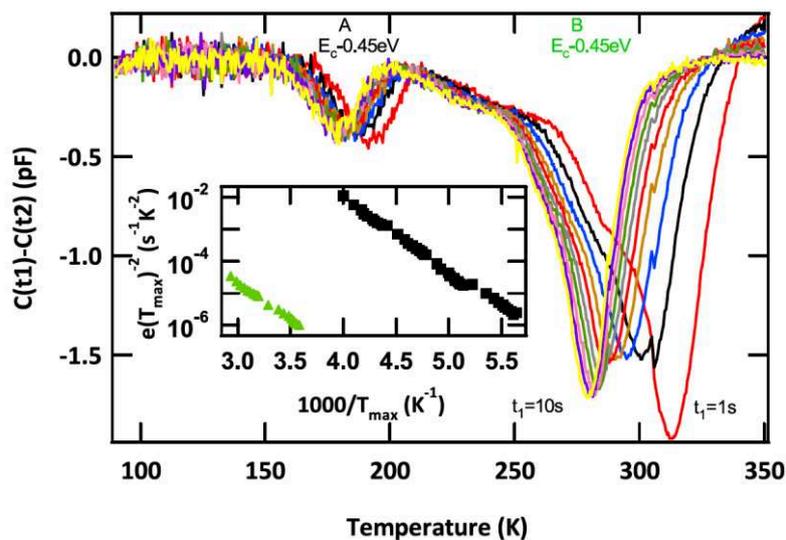
de Si à 1057 °C et crûs à une vitesse de 0,9 ML/s (rapport BEP V/III=8) : s8, s10 et s12 est similaire. Cependant, la différence entre mesures C(V) et effet Hall est moins importante que celle obtenue avec une température de cellule de Si de 1039 °C (le niveau de dopage déterminé par mesures Hall et C(V) diffère seulement de 20 %). En prenant en compte les incertitudes de mesures, les dopants ne peuvent être considérés totalement activés que dans la gamme de température [650-710] °C. Ici, la différence dans les rapports BEP V/III utilisés est aussi responsable de cette légère différence. Un ratio BEP V/III plus important et une température de croissance plus élevée pourraient être utilisés afin de garantir l'activation des dopants. La température de croissance joue un rôle important dans la capacité, d'une part à atteindre des niveaux de dopages élevés et d'autre part à les activer.

Pour résumer, pour le dopage p (Be), la température de croissance de l'AlGaP:p doit être supérieure à 580 °C afin d'atteindre des niveaux de dopages activés élevés mais une large tolérance sur les paramètres de croissance est possible. Pour le dopage-n (Si), la température de croissance doit être supérieure à 650 °C afin de minimiser la différence entre les dopants n ionisés et activés et donc d'atteindre des valeurs élevées de dopage n activé. La tolérance pour le dopage n est moindre que celle du côté p comme le montre le fait que l'AlGaP:n réalisé à 580 °C entraîne l'obtention d'une couche fortement isolante. Ces résultats (pour les deux types de dopages) ne sont apparemment pas corrélés aux données structurales précédemment montrées indiquant que la rugosité et l'activation des dopants sont deux problèmes distincts. Le régime de saturation (pour les niveaux de dopage importants) n'a pas été étudié dans ce travail et pourrait être différent pour l'AlGaP et le GaP. Dans la suite, la différence entre les niveaux de dopants ionisés et activés est étudiée par DLTS.

## 2.6. Etude du piégeage des porteurs par la DLTS

Dans la partie précédente, certaines différences ont été mises en évidence entre les mesures C(V) et effet Hall pour les échantillons AlGaP:n suivant les conditions de croissance. Dans la suite, la présence possible de centres profonds dans les échantillons AlGaP:n sera examinée. Les techniques de DLTS et de I-DLTS [23] ont été utilisées afin d'analyser le temps de vie caractéristique des centres profonds, leurs concentrations, le taux d'émission et l'énergie d'activation de ces centres profonds en se basant sur le travail de D. V. Lang [22]. Dans ces mesures, la fréquence de travail a été réglée à 1 MHz. La tension de l'impulsion

était de 0,5 V et la tension de mesure a été choisie de façon à minimiser le courant de fuite. Pour les mesures DLTS, la durée de l'impulsion était de 10 ms alors que le délai entre deux mesures de capacité était de 1 s. Le rapport  $\frac{t_2}{t_1}$  était fixé égale à 2 pour toutes les mesures avec  $t_1$  et  $t_2$  qui sont définis comme le temps auquel les mesures de capacité  $C(t_1)$  et  $C(t_2)$  sont réalisées. Une légère et abrupte variation du signal est systématiquement présente autour de 306 K. Elle correspond à un artefact de mesure. L'ensemble des valeurs négatives du signal DLTS met en évidence la présence de pièges pour les porteurs majoritaires qui sont des pièges à électrons en-dessous de la bande de conduction de l'AlGaP:n. A partir de de la Fig. 2.10, deux contributions majeures au signal DLTS sont observées : l'une située à 180 K (que l'on appellera pic A) et l'autre située à 300 K (que l'on appellera pic B dans la suite). Il est aussi clair que le pic B, étant structuré de manière complexe, est en fait composé au minimum de deux niveaux d'énergies de centres profonds.



**Fig. 2.10: Spectre DLTS expérimental mettant en évidence des centres profonds en bande de conduction dans une couche d'AlGaP:n crûe à 650 °C avec une vitesse de croissance de 0,6 ML/s (échantillon s5). Dix spectres différents sont présentés pour dix valeurs différentes de  $t_1$  : 1 s à 10 s (avec un pas de 1 s) mettant en évidence deux pics différents (A et B) dans le signal DLTS. L'encart montre le taux d'émission en fonction de l'inverse de la température pour les deux pièges à basse et haute températures : pic A (carrés noirs) et pic B (triangles verts). Les énergies d'activation autour de 0,45 eV sont mesurées pour les deux pics. Le facteur pré-exponentiel est égale à  $8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-2}$  pour le pic A et  $10^2 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-2}$  pour le pic B. Figure issue de [1].**

Cependant, la résolution de notre mesure ne nous permet pas d'analyser en profondeur les détails de ces centres profonds. Une analyse plus fine pourrait être réalisée par transformée de Laplace [32] ou de Fourier [33]. L'amplitude du pic B est au moins quatre

fois supérieure à celle du pic A. Même si la capacité en régime stationnaire évolue avec la température, cette augmentation d'amplitude est vraisemblablement attribuée à l'importante densité de défauts du pic B. L'insert présente le taux d'émission des électrons  $e_n$  défini par :

$$e_n = \frac{1}{\tau_{max}} = \frac{\sigma \langle v \rangle N_c}{g} e^{\frac{-\Delta E}{kT}} \quad (2.1)$$

avec le temps de vie des pièges  $\tau_{max}$  étant égal à :

$$\tau_{max} = \frac{t_2 - t_1}{\ln \frac{t_2}{t_1}} \quad (2.2)$$

Ici,  $\sigma$  représente la section efficace de capture,  $\langle v \rangle$  la vitesse thermique,  $N_c$  la densité d'états dans la bande de conduction,  $g$  le terme de dégénérescence,  $\Delta E$  l'énergie d'activation des pièges,  $T$  la température absolue et  $k$ , la constante de Boltzmann. Le ratio :

$$\frac{\sigma \langle v \rangle N_c}{g} \quad (2.3)$$

sera appelé facteur pré-exponentiel dans la suite. De plus, une correction peut être réalisée sur le taux d'émission en prenant en compte la dépendance en  $T^2$  du produit  $\langle v \rangle N_c$  [34]. Le ratio  $e_n T^{-2}$  est tracé en fonction de l'inverse de la température afin de déterminer  $\Delta E$  et le facteur pré-exponentiel pour chaque piège. Les carrés noirs et les triangles verts correspondent respectivement au pic A et au pic B. Les énergies d'activation obtenues sont très similaires pour les deux pics : 0,45 eV alors que le facteur pré-exponentiel diffère et est égal à  $8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-2}$  pour le pic A et  $10^2 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-2}$  pour le pic B. Cependant, une détermination précise de l'énergie d'activation requiert une connaissance exacte de la dépendance en température de la section efficace de capture  $\sigma$  ce qui n'est pas simple [32], [34]. Dans la suite, nous considérerons qu'il existe différents types de défauts situés autour de 0,45 eV sous le minimum de la bande de conduction et que parmi ceux-ci, les défauts activés à 300 K sont quantitativement les plus importants. L'origine de ces défauts ne peut être déterminée de manière définitive dans cette étude. Cependant, une incorporation d'oxygène dans les couches d'AlGaP:n, déjà soulignée dans la Fig. 2.2, peut être considérée afin d'expliquer ces résultats. Cette hypothèse est aussi soutenue par l'absence de corrélation entre les propriétés de rugosité de surface et les propriétés électriques.

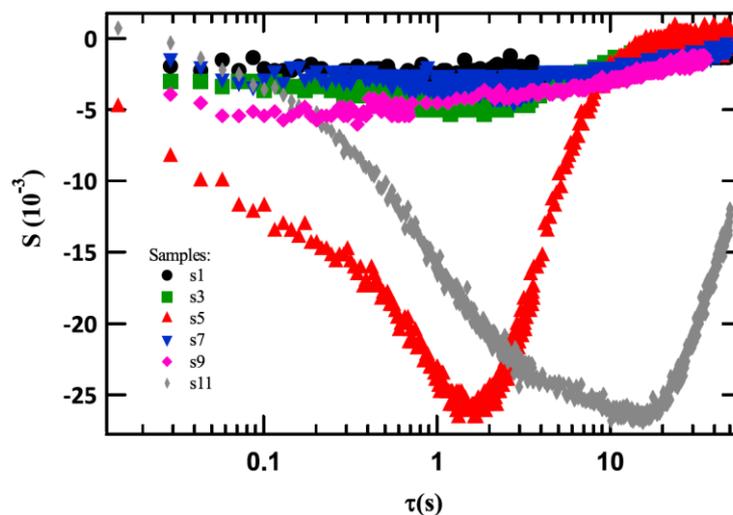
Dans la suite, nous nous restreindrons à l'analyse du pic B activé à 300 K pour les différents échantillons AlGaP:n/GaP:n. Une comparaison rapide entre les échantillons peut donc être effectuée sans nécessité d'effectuer des mesures à des températures cryogéniques. Pour l'ILDTS, la température est réglée à 296 K. La durée du pulse est de 2 s, le rapport  $\frac{t_2}{t_1}$  est fixé à 2 et  $t_1$  varie de 10 ms à 30 s. Dans la Fig. 2.11, le signal de spectroscopie de capacité est présenté pour différentes températures et vitesses de croissances des échantillons AlGaP:n/GaP:n : s1, s3, s5, s7, s9 et s11. L'axe de gauche correspond au signal de spectroscopie de capacité normalisée  $S$  donné par :

$$S = \frac{C(t_1) - C(t_2)}{C_0} \quad (2.4)$$

où  $C_0$  correspond à la capacité en régime établie et l'axe des abscisses correspond à  $\tau$  décrit comme :

$$\frac{t_2 - t_1}{\ln \frac{t_2}{t_1}} \quad (2.5)$$

$S$  atteint son extremum  $S_{min}$  qui est relié à la concentration de pièges quand  $\tau = \tau_{max}$  avec  $\tau_{max}$  déterminé par la dérivée de  $S$  par rapport à  $\tau$ .



**Fig. 2.11 :** Signal de spectroscopie de capacité mesuré à 296 K pour des échantillons AlGaP:n crûs avec différentes températures et vitesses de croissance. L'amplitude des impulsions est réglée à 0,5 V et la tension de mesure est de -6 V pour les échantillons crûs à 650 °C et -4 V pour les autres dans le but de minimiser le courant de fuite. La concentration de pièges est d'environ  $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  pour les échantillons crûs à 650 °C et est inférieure à  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  pour les échantillons crûs à plus hautes températures. Figure issue de [1].

Pour tous les échantillons AlGaP dopés n, la capacité transitoire est négative et est reliée à la présence de pièges d'électrons sous la bande de conduction de la couche AlGaP:n. Comme mentionné plus haut, au moins deux contributions sont présentes dans le pic B de l'échantillon s5. Ce comportement est aussi observé pour l'échantillon s11 crû à la même température de croissance mais avec une vitesse de croissance de 0,9 ML/s. Dans la suite une contribution unique sera considérée par simplicité. On peut noter que la profondeur du  $S$  diminue avec l'augmentation de la température de croissance. Pour l'AlGaP:n crû à 650 °C,  $S_{min}$  est d'environ  $-25 \times 10^{-3}$  pour  $\tau_{max}$  égale à 1,5 s et 15 s respectivement pour une vitesse de croissance de 0,6ML/s (s5) et 0,9 ML/s (s11) et est inférieure à  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  pour les autres échantillons : s1, s3, s7 et s9 crûs à plus haute température. L'amplitude du pic correspond à une concentration de pièges de  $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  pour les échantillons crûs à 650 °C (s5 et s11) et est inférieure à  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  pour les autres échantillons s1, s3, s7 et s9 crûs à plus haute température. La détermination de la concentration de pièges est basée sur l'équation (3) de [22] et est limitée par l'incertitude de la mesure. Ces niveaux correspondent à 10 % (3 %) des niveaux de dopages ionisés mesurés sur les échantillons crûs à 650 °C (>650 °C) ce qui souligne l'influence de la température de croissance sur la concentration de pièges. Le réglage de la température de croissance au-dessus de 650 °C semble être une condition nécessaire afin de limiter la formation de pièges à électrons dans l'AlGaP:n.

## 2.7. Conclusion

La morphologie de surface, les niveaux de dopages et l'activation des dopants dans des couches épitaxiées d'AlGaP crûes sur substrat GaP par épitaxie par jets moléculaires à sources solides, ont été étudiés en fonction des paramètres de croissance et plus spécifiquement de la température de croissance. A partir des analyses de microscopie à force atomique, il a été montré qu'une surface lisse pouvait être obtenue seulement dans la gamme de température de croissance [580-680] °C avec un ratio BEP V/III suffisamment élevé afin de promouvoir à la fois la migration des atomes d'Al sur le front de croissance et de limiter la désorption du phosphore. En ce qui concerne le dopage p (Be), une valeur raisonnable de dopage activé (typiquement  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) peut être atteinte si la température de croissance est maintenue au-dessus de 580 °C. Pour le dopage n (Si), la situation est plus critique car une température de croissance inférieure à 650 °C entraîne la formation d'une

couche fortement isolante dans nos conditions de croissance. Le problème d'activation des dopants n est lié à l'apparition de centres profonds en bande de conduction qui sont générés lorsque la température de croissance n'est pas assez élevée comme le montre les mesures DLTS. Par conséquent, les dispositifs électriquement contrôlés comme les cellules photovoltaïques ou les lasers utilisant des couches épitaxiées d'AlGaP doivent être soigneusement conçus afin d'assurer à la fois une faible rugosité de surface et une activation efficace des dopants à l'aide de la température, de la vitesse de croissance et du rapport BEP V/III.

## Références du chapitre 2

- [1] R. Tremblay *et al.*, « MBE growth and doping of AlGaP », *J. Cryst. Growth*, vol. 466, p. 6-15, mai 2017.
- [2] B. Kunert *et al.*, « Laser operation of the III/V compound material Ga(NAsP) grown lattice matched on (001) Si substrate », in *Device Research Conference, 2009. DRC 2009*, 2009, p. 213-214.
- [3] M. Heidemann, S. Höfling, et M. Kamp, « (In,Ga)As/GaP electrical injection quantum dot laser », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 1, p. 011113, janv. 2014.
- [4] W. G. Bi, F. Deng, S. S. Lau, et C. W. Tu, « High resolution x-ray diffraction studies of AlGaP grown by gas-source molecular-beam epitaxy », *J. Vac. Sci. Technol. B*, vol. 13, n° 2, p. 754-757, mars 1995.
- [5] C. Robert *et al.*, « Structural and optical properties of AlGaP confinement layers and InGaAs quantum dot light emitters onto GaP substrate: Towards photonics on silicon applications », *Thin Solid Films*, vol. 541, p. 87-91, août 2013.
- [6] J.-P. Gauthier *et al.*, « Electrical injection in GaP-based laser waveguides and active areas », in *26th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM)*, 2014, p. 1-2.
- [7] B. Kunert, A. Klehr, S. Reinhard, K. Volz, et W. Stolz, « Near room temperature electrical injection lasing for dilute nitride Ga(NAsP)/GaP quantum-well structures grown by metal organic vapour phase epitaxy », *Electron. Lett.*, vol. 42, n° 10, p. 601-603, mai 2006.
- [8] A. Chen et J. M. Woodall, « Photodiode characteristics and band alignment parameters of epitaxial Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>P », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, n° 2, p. 021102, janv. 2009.
- [9] H. P. Kleinknecht et A. E. Widmer, « (GaAl)P optical-waveguide modulators fabricated by liquid-phase epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 45, n° 8, p. 3453-3459, août 1974.
- [10] X.-L. Wang, A. Wakahara, et A. Sasaki, « Structure and photoluminescence of AlP/GaP short-period superlattices grown by organometallic vapor phase epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 76, n° 1, p. 524-532, juill. 1994.
- [11] K. Asami, H. Asahi, T. Watanabe, M. Enokida, S. Gonda, et S. Fujita, « Optical properties of GaP/AlP short-period superlattices grown by gas source molecular beam epitaxy », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 62, n° 1, p. 81-83, janv. 1993.
- [12] V. Emberger, F. Hatami, W. T. Masselink, et S. Peters, « AlP/GaP distributed Bragg reflectors », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, n° 3, p. 031101, juill. 2013.
- [13] A. C. Lin *et al.*, « Epitaxial growth of GaP/AlGaP mirrors on Si for low thermal noise optical coatings », *Opt. Mater. Express*, vol. 5, n° 8, p. 1890, août 2015.
- [14] O. V. Sulima *et al.*, « High-temperature AlGaP/GaP solar cells for NASA space missions », in *Proceedings of 3rd World Conference on Photovoltaic Energy Conversion, 2003*, 2003, vol. 1, p. 737-740 Vol.1.
- [15] Y. Takeda, S. Araki, S. Noda, et A. Sasaki, « OMVPE growth of GaP and AlGaP using tertiarybutylphosphine as the phosphorus source », *J. Cryst. Growth*, vol. 110, n° 3, p. 571-575, mars 1991.
- [16] K. Ozasa, M. Yuri, et H. Matsunami, « Temperature dependence of InGaP, InAlP, and AlGaP growth in metalorganic molecular-beam epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 102, n° 1-2, p. 31-42, avr. 1990.
- [17] K. Adomi, N. Noto, A. Nakamura, et T. Takenaka, « Characterization of AlGaP/GaP heterostructures grown by MOVPE », *J. Cryst. Growth*, vol. 124, n° 1-4, p. 570-575, nov. 1992.

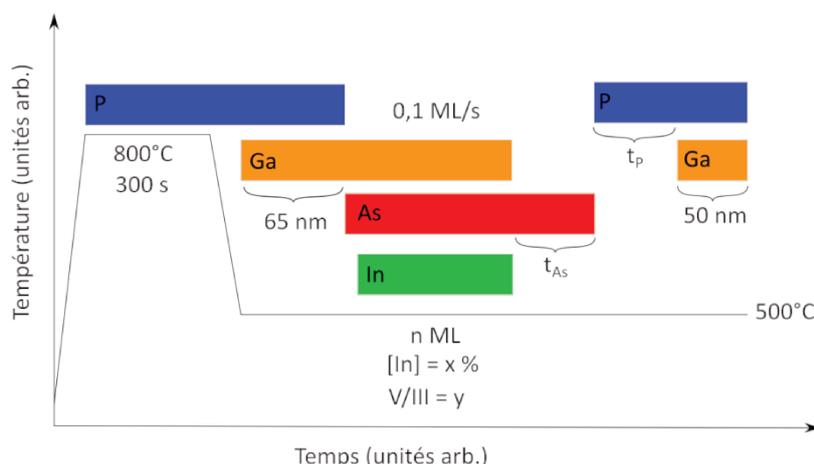
- [18] H. Beneking et H. Roehle, « MO-CVD growth of GaP and GaAlP », *J. Cryst. Growth*, vol. 55, n° 1, p. 79-86, oct. 1981.
- [19] Morii, A., Okagawa, H., Kazuhiko, H., Yoshino, J., et Kukimoto, K, « Band Discontinuity at Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>P/GaP Heterointerfaces Studied by Capacitance Measurements », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 31, n° 8B, 1992.
- [20] S. Dadgostar, E. H. Hussein, J. Schmidbauer, T. Boeck, F. Hatami, et W. T. Masselink, « Structural properties of AlGaP films on GaP grown by gas-source molecular-beam epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 425, p. 94-98, sept. 2015.
- [21] J. N. Baillargeon, K. Y. Cheng, K. C. Hsieh, et G. E. Stillman, « The gas source molecular beam epitaxial growth of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>P on (100) GaP », *J. Appl. Phys.*, vol. 68, n° 5, p. 2133-2139, sept. 1990.
- [22] D. V. Lang, « Deep-level transient spectroscopy: A new method to characterize traps in semiconductors », *J. Appl. Phys.*, vol. 45, n° 7, p. 3023, 1974.
- [23] V. I. Turchanikov, V. S. Lysenko, et V. A. Gusev, « Isothermal DLTS method using sampling time scanning », *Phys. Status Solidi A*, vol. 95, n° 1, p. 283-289, mai 1986.
- [24] T. Quinci *et al.*, « Defects limitation in epitaxial GaP on bisteped Si surface using UHVCVD-MBE growth cluster », *J. Cryst. Growth*, vol. 380, p. 157-162, oct. 2013.
- [25] M. Heiblum, E. E. Mendez, et L. Osterling, « Growth by molecular beam epitaxy and characterization of high purity GaAs and AlGaAs », *J. Appl. Phys.*, vol. 54, n° 12, p. 6982-6988, déc. 1983.
- [26] L. Baojun, L. Enke, et Z. Fujia, « Pd/Zn/Pd ohmic contacts to p-type GaP », *Solid-State Electron.*, vol. 41, n° 6, p. 917-920, juin 1997.
- [27] L. Peternai, J. Jakabovič, et M. Michalka, « Ohmic contacts to n- and p-type GaP », in *9th International Workshop APCOM*, 2003, p. 157-160.
- [28] J. H. Epple, K. L. Chang, G. W. Pickrell, K. Y. Cheng, et K. C. Hsieh, « Thermal wet oxidation of GaP and Al<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>P », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, n° 8, p. 1161-1163, août 2000.
- [29] X. Wallart, « A combined RHEED and photoemission comparison of the GaP and InP(0 0 1) (2×4) surface reconstructions », *Surf. Sci.*, vol. 506, n° 3, p. 203-212, mai 2002.
- [30] C. Cornet *et al.*, « Preferential incorporation of substitutional nitrogen near the atomic step edges in diluted nitride alloys », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, n° 25, p. 251906, déc. 2012.
- [31] P. Caroff *et al.*, « High-gain and low-threshold InAs quantum-dot lasers on InP », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, n° 24, p. 243107, déc. 2005.
- [32] L. Dobaczewski, A. R. Peaker, et K. B. Nielsen, « Laplace-transform deep-level spectroscopy: The technique and its applications to the study of point defects in semiconductors », *J. Appl. Phys.*, vol. 96, n° 9, p. 4689-4728, nov. 2004.
- [33] A. L. Bloa, D. T. Quan, et Z. Guennouni, « FTDLTS: a novel isothermal DLTS method using Fourier transforms », *Meas. Sci. Technol.*, vol. 4, n° 3, p. 325, 1993.
- [34] C. H. Henry et D. V. Lang, « Nonradiative capture and recombination by multiphonon emission in GaAs and GaP », *Phys. Rev. B*, vol. 15, n° 2, p. 989-1016, janv. 1977.

## Chapitre 3 Boîtes quantiques (In,Ga)As/GaP

Après avoir discuté du confinement optique et de l'injection électrique dans les couches d'AlGaP, passons maintenant à l'analyse de la zone active composée de boîtes quantiques (Quantum Dots, QDs) (In,Ga)As/GaP. L'objectif est ici de comprendre l'origine des transitions optiques observées et de favoriser l'émission de type gap direct dans ces nanostructures.

Dans cette partie, nous présenterons, dans un premier temps, la technique d'analyse utilisée afin de rendre compte du comportement de photoluminescence (PL) des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP. Puis, dans un second temps, une comparaison entre les résultats expérimentaux et la structure électronique théorique de ces QDs sera effectuée, afin d'identifier l'origine des transitions optiques dans ce système. Enfin, la modification de la structure électronique par la variation des conditions de croissance sera discutée, par rapport aux objectifs d'obtention de transitions directes.

La croissance des échantillons a été réalisée par T. Rohel. Les échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP présentés par la suite sont tous réalisés sur substrat GaP:nid en utilisant le bâti de croissance cristalline à source solide SSMBE décrit dans la référence [1] et en [annexe A]. Les éléments III : Ga, In sont envoyés à partir d'une cellule à effusion conventionnelle de type Knusden et les éléments V : As, P sont introduits à l'aide d'une cellule cracker à vanne. Une séquence de croissance type est présentée dans la Fig. 3.1. Après désorption de l'oxyde sous flux de P, une couche tampon de GaP:nid d'une épaisseur de 65 nm est réalisée à une température de 500 °C. L'épitaxie se poursuit par une couverture d'(In,Ga)As entre 2,5 et 6 ML à une vitesse de 0,1 ML/s et à 500 °C pour quatre compositions nominales d'In : 10 %, 25 %, 35 % et 50 % correspondant à un désaccord de maille de 4,5, 5,6, 6,3 et 7,4 % respectivement, à température ambiante. Lors de cette couverture, le rapport BEP V/III peut varier entre 3,8 à 9,7 et il correspond à un rapport de la pression équivalente en éléments V sur celle en éléments III, mesurées avec la jauge « Flux » du bâti d'épitaxie. La formation ou non de QDs (In,Ga)As/GaP est vérifiée par l'observation de la transition 2D-3D à l'aide du RHEED.



**Fig. 3.1** Séquence de croissance type de QDs (In,Ga)As/GaP sur substrat GaP. Les paramètres de croissance qui varient sont  $n$ , le nombre de monocouches d'(In,Ga)As déposées, la composition d'In nominale  $x$ , le rapport V/III  $y$  et les temps d'arrêts de croissance sous flux d'As  $t_{As}$  et de  $t_p$ . Les autres paramètres sont fixes.

Puis, un arrêt de croissance sous flux d'As de 30 s est réalisé. Pour les mesures AFM, les échantillons sont refroidis jusqu'à température ambiante puis sortis du réacteur MBE. Pour ce qui est des échantillons destinés aux mesures de PL, une couche épitaxiée de GaP:nid de 50 nm est ajoutée, précédée d'un arrêt de croissance sous flux de P de 5 s. Sauf contre-indication explicite dans le texte, ces paramètres de croissance ne varient pas. Les échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP utilisés au sein de ce chapitre sont présentés dans le Tab. 3.1.

Composition d'In nominale (%)	Épaisseur d'(In,Ga)As déposée							
	2,5	3	3,5	4	4,5	5	5,25	6
10	S1882			S1773		S1777 S1883	S1794	S1884
25						S1787		
30		S1562 S1631						
35	S1813 S1858 S1877 S1933 S1934		S1815 S1878		S1817 S1822 S1823 S1825 S1826 S1879 S1880 S1908 S1909 S1911 S1932			S1860 S1861
50		S1804						

**Tab. 3.1** Tableau récapitulatif des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP destinés aux mesures AFM (en noir) et aux mesures de PL (en rouge).

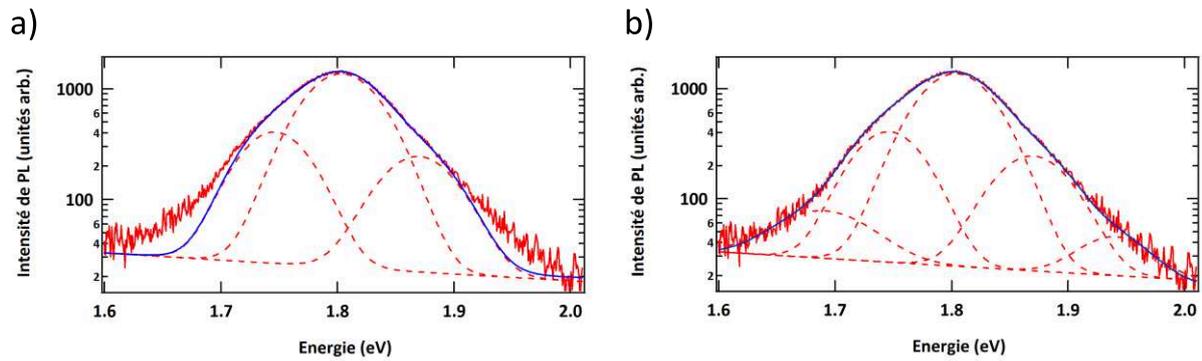
### 3.1. Méthode d'analyse

#### 3.1.1. Présentation de la méthode utilisée

La technique d'analyse présentée ici a pour but de retranscrire de manière efficace mais quantitative, l'évolution de la photoluminescence d'un échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP en fonction d'une part, de la puissance d'excitation et d'autre part, de la température. En effet, les spectres observés sont larges et non standards pour des QDs, en comparaison des 50 meV habituellement observé sur des systèmes de référence, comme InAs/InP [2] ou InAs/GaAs [3]. Ces mesures ont été effectuées à l'aide du dispositif expérimental décrit en [annexe E] où la PL est excitée par un laser continu à 405 nm. Le modèle retenu permet de suivre l'évolution des transitions optiques présentes au sein du spectre de PL à l'aide de l'ajustement multi-gaussien suivant :

$$y(E) = f(E) + \sum_{i=1}^{i=5} A_i * e^{\left(\frac{-(x-E_i)}{w_i}\right)^2} \quad (3.1)$$

Le premier terme  $f(E)$  correspond à la ligne de base ainsi qu'à la contribution des centres profonds du substrat GaP et de la luminescence de la fenêtre du cryostat. Le deuxième terme correspond à une somme de gaussiennes avec  $A_i$ , l'amplitude,  $E_i$  la position du centre de la gaussienne et  $w_i$ , sa largeur. Un compromis est donc à trouver entre le nombre de gaussiennes (3 paramètres chacune) et la volonté de pouvoir ajuster au minimum 80 % du signal de PL. Une illustration est donnée sur la Fig. 3.2. Les trois gaussiennes utilisées (Fig. 3.2a) ne sont pas suffisantes pour ajuster une courbe de tendance au spectre de PL pour des énergies inférieures à 1,65 eV et supérieures à 1,95 eV. Cela n'est pas le cas quand on utilise cinq gaussiennes, comme on le voit sur la Fig. 3.2b. Pour la suite, le nombre de gaussienne sera limité à cinq afin de limiter le nombre de paramètres d'ajustement. Le modèle utilise certes au maximum 15 paramètres (sans compter  $f(E)$ ) mais sa pertinence est basée sur la corrélation de 30 spectres : 12 en fonction de la densité d'excitation et 18 en fonction de la température.



**Fig. 3.2** Intensité de photoluminescence de l'échantillon S1861 pour une température de 10 K et une densité de puissance injectée de  $95 \text{ W.cm}^{-2}$ . La courbe rouge correspond aux données expérimentales et la courbe bleue à la somme des gaussiennes incluant la ligne de base. Les lignes pointillées correspondent aux contributions individuelles de chaque gaussienne : trois gaussiennes pour a) et cinq pour b).

### 3.1.1.1. Densité d'excitation

Le modèle présenté est tout d'abord utilisé pour reproduire l'évolution de photoluminescence en fonction de la densité d'excitation à 10 K. Le protocole est le suivant : on commence par le spectre correspondant à la densité d'excitation la plus faible. Dans un premier temps, on définit la ligne de base. Puis, dans un second temps, on ajuste les paramètres des gaussiennes nécessaires de façon à minimiser la différence entre les mesures expérimentales et la somme des gaussiennes. La densité d'excitation la plus faible utilisée est de l'ordre du  $0,02\text{-}0,03 \text{ mW.cm}^{-2}$ , nous supposons donc l'absence d'états excités et ainsi, nous fixerons  $E_i$  et  $w_i$ . On ajustera donc la ligne de base et l'amplitude des gaussiennes pour les spectres correspondant aux densités d'excitation de plus en plus grandes. Si besoin, on ajoute une nouvelle gaussienne dans la limite des cinq que nous nous sommes fixées. Malgré le fait qu'on ait fixé  $E_i$  et  $w_i$ , des variations peuvent être nécessaires afin d'effectuer un léger ajustement mais ne doivent pas excéder 5 % de la valeur fixée à l'aide du spectre de PL à 10 K et correspondant à la plus faible densité d'excitation. Une méthodologie similaire a aussi été utilisée pour retranscrire le comportement de QDs Ge/Si [4]. La méthode décrite précédemment, a été appliquée sur l'ensemble des échantillons de QDs étudiés dans cette thèse. Pour chaque échantillon, les courbes suivantes sont tracées (illustration en Fig. 3.3) :

- L'Énergie des transitions  $E_i$  en fonction de la densité d'excitation
- La largeur à mi-hauteur (Full Width at Half Maximum, FWHM) en fonction de la densité d'excitation :

$$FWHM = w * 2 * \sqrt{\ln(2)} \quad (3.2)$$

- L'intensité intégrée en fonction de la densité d'excitation :

$$I = A * w \quad (3.3)$$

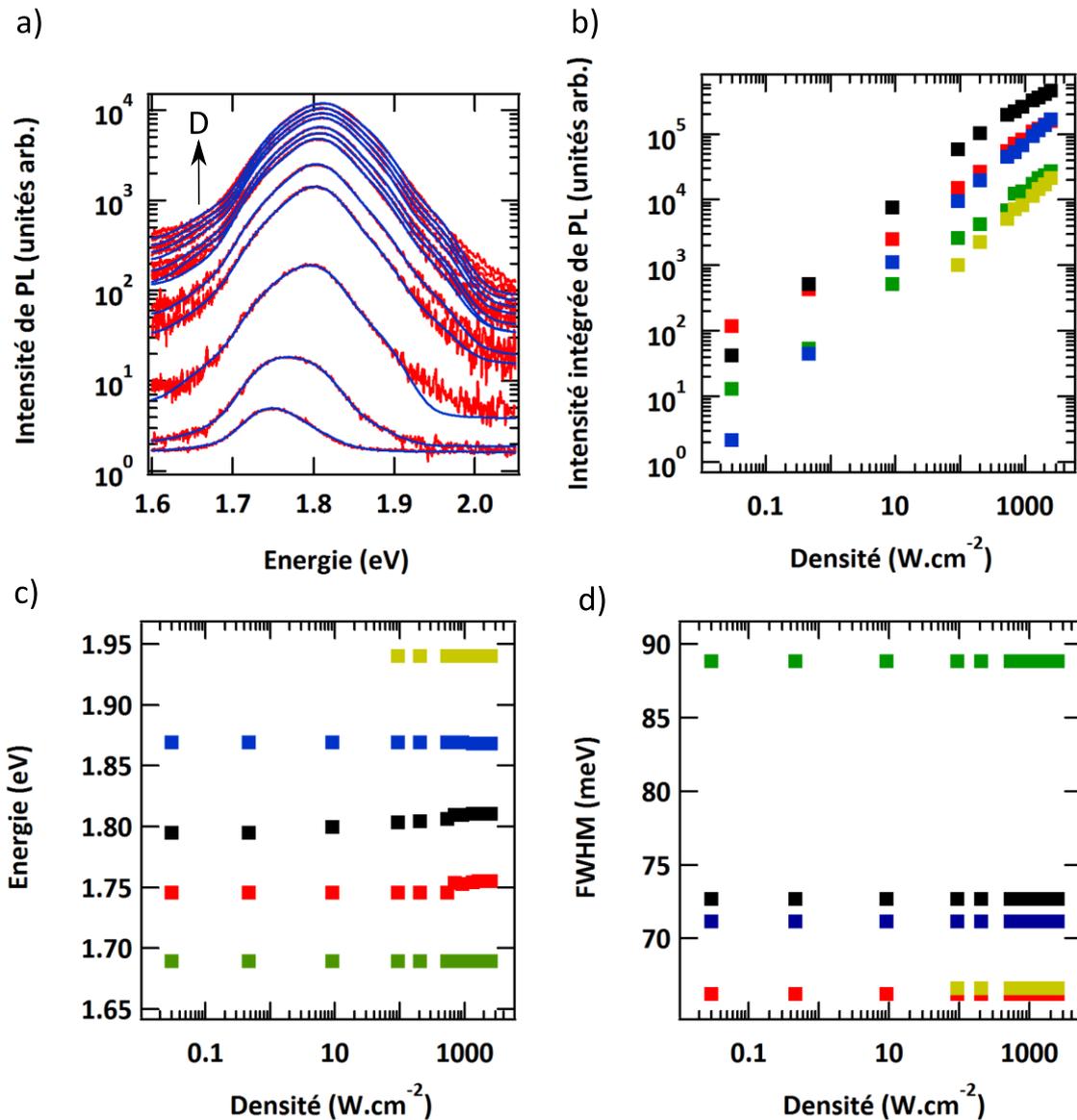


Fig. 3.3 a) Superposition des spectres de PL expérimentaux de l'échantillon S1861 (courbes rouges) aux résultats de l'ajustement multi-Gaussien (courbes bleues) en fonction de la densité d'excitation à 10 K. b) Intensité intégrée de PL des différentes contributions gaussiennes, c) énergie des transitions et d) FWHM en fonction de la densité d'excitation.

L'évolution des spectres de PL ainsi que les résultats de l'ajustement en fonction de la densité d'excitation sont présentés dans la Fig. 3.3a. A la densité d'excitation la plus

faible, on peut identifier deux transitions majeures au sein du spectre de PL à 1,75 et 1,8 eV. Le rapport d'intensité entre ces deux transitions évolue en fonction de la densité d'excitation : pour la plus basse densité d'excitation, la contribution majoritaire correspond à la transition à plus basse énergie puis, pour des densités d'excitation supérieures, les contributions des deux transitions deviennent équivalentes. Sur le reste de la gamme, la contribution majoritaire correspond à la transition à plus haute énergie. Ce comportement est parfaitement retranscrit sur l'évolution de l'intensité intégrée de PL des différentes transitions Fig. 1.1b. De cette évolution, on peut définir une loi de puissance [4]–[6]:

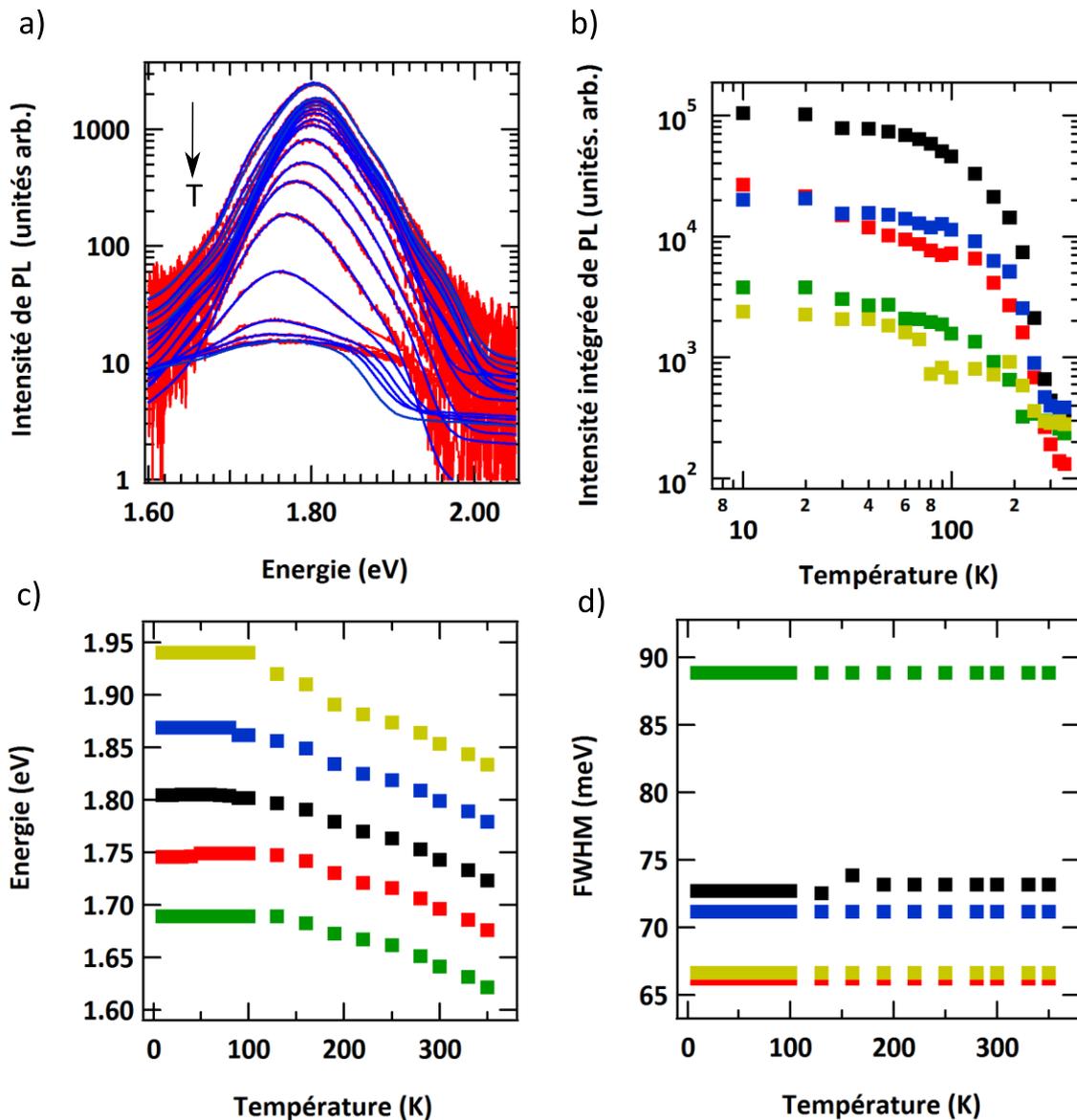
$$I(D) = C + A * D^q \quad (3.4)$$

Où  $I$  est l'intensité intégrée,  $C$  est une constante qui traduit la contribution du bruit,  $A$  est un facteur multiplicatif,  $D$  est la densité de puissance injectée et  $q$ , le coefficient de linéarité. L'évolution de chaque transition identifiée est sous-linéaire. Pour des densités optiques supérieures à  $10^2 \text{ W.cm}^{-2}$ , une transition est ajoutée dans la limite des cinq maximum de façon à retranscrire au mieux le comportement à haute énergie du spectre de PL ce qui est en accord avec la présence d'états excités à ces fortes densités de puissances. L'évolution de l'énergie et de la FWHM des diverses transitions est présentée au sein des Fig. 3.3c et Fig. 3.3d. Comme souhaité, ces valeurs varient au maximum de 5 %. Les valeurs de FWHM des transitions sont entre 90 et 67 meV.

### 3.1.1.2. Température

Ce traitement est ensuite appliqué à l'évolution de la PL en fonction de la température pour une densité d'excitation de  $10^2 \text{ W.cm}^{-2}$ . Cette densité d'excitation est utilisée de façon à avoir une photoluminescence exploitable (rapport signal sur bruit suffisant) à 350 K pour l'ensemble des échantillons étudiés. Elle induit en revanche la prise en compte d'états excités dans les spectres. Le protocole est le suivant : l'ensemble des paramètres pour le spectre à 10 K a été obtenu suite à l'analyse de l'évolution de la PL en fonction de la densité optique. En fonction de la température, on considère que  $w_i$  reste fixe et  $E_i$  suit en première approximation une loi de Varshni [7] standard basée sur la composante principale du spectre de PL. On ajustera donc la ligne de base et l'amplitude des gaussiennes pour les spectres correspondant aux températures de plus en plus importantes. Cette méthode, utilisée pour l'ensemble des échantillons, (cf. exemple proposé en Fig. 3.4), permet de représenter :

- Les énergies des transitions  $E_i$  en fonction de la température
- La FWHM en fonction de la température
- L'intensité intégrée en fonction de la température



**Fig. 3.4** a) Superposition des spectres de PL expérimentaux de l'échantillon S1861 (courbes rouges) aux résultats de l'ajustement multi-Gaussien (courbes bleues) en fonction de la température. b) Intensité intégrée de PL, c) énergie des transitions et d) FWHM en fonction de la température.

L'évolution des spectres de PL ainsi que les résultats de l'ajustement en fonction de la température sont présentés dans la Fig. 3.4a. Pour des températures supérieures ou égales à 250 K, la limitation à cinq gaussiennes du modèle implique que le spectre de PL à haute énergie n'est pas bien retranscrit. A densité d'excitation constante, on constate que la PL

diminue avec l'augmentation de la température. Ce comportement se retrouve bien sûr sur l'évolution en température de l'intensité intégrée de PL des différentes transitions Fig. 3.4b, que l'on peut modéliser par une loi d'Arrhenius [5], [6]:

$$I(T) = \frac{I_0}{1 + \alpha_1 * e^{\left(\frac{-E_{a1}}{kT}\right)} + \alpha_2 * e^{\left(\frac{-E_{a2}}{kT}\right)}} \quad (3.5)$$

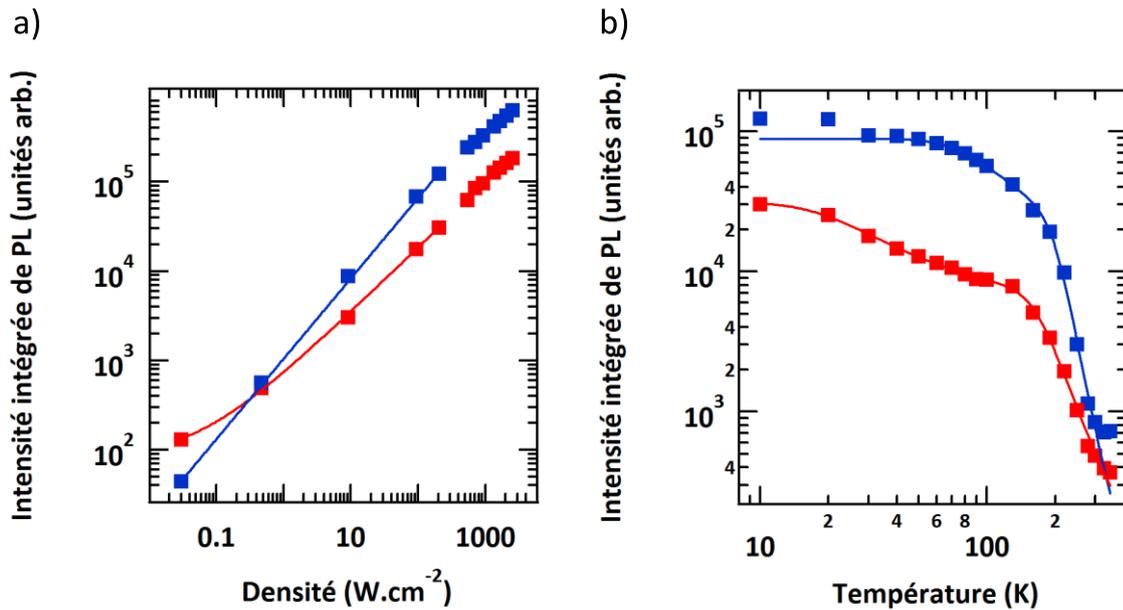
Où I est l'intensité intégrée, T est la température absolue,  $I_0$  est l'intensité intégrée à 0 K, k est la constante de Boltzmann,  $E_{ai}$  est l'énergie d'activation et  $\alpha_i$ , l'efficacité d'échappement des porteurs. La légère variation de l'intensité de PL intégrée observée entre 20 K et 30 K n'est pas reproductible par la loi d'Arrhenius et provient de la difficulté de séparer les contributions des gaussiennes qui se chevauchent. En passant outre cette variation, on peut identifier deux comportements différents entre 10 K et 100 K : pas de variation de l'intensité intégrée de PL pour les transitions bleues et noires mais une décroissance de l'intensité pour les transitions vertes et rouges. Sur le reste de la gamme, l'intensité intégrée de PL diminue. Ces comportements se traduisent donc par des valeurs de  $\alpha_i$  et  $E_{ai}$  différentes. Comme identifié dans la partie 3.1.1.1, la transition principale est la transition à 1.8 eV. La position de cette transition et des autres évolue en fonction de la température (Fig. 3.4c) au contraire des valeurs de FWHM qui restent globalement fixes (Fig. 3.4d).

### 3.1.1.3. Regroupement des transitions

L'évolution de l'intensité intégrée de PL en fonction de la température (Fig. 3.4b) a mis en lumière deux types de comportements différents pour les transitions identifiées :

- Transition dont la baisse de l'intensité de PL à basse température (typiquement <100 K) est significative (Low Activation Energy Transition, LAET)
- Transition dont la baisse de l'intensité de PL avant 100 K n'est pas significative (High Activation Energy Transition, HAET)

Ainsi, les transitions présentant le même comportement peuvent être regroupées. L'évolution de l'intensité intégrée de PL de ces deux groupes de transitions en fonction de la densité d'excitation à 10 K (Fig. 3.3a) et en fonction de la température à densité d'excitation constante (Fig. 3.4b) est ainsi présentée en Fig. 3.5 :



**Fig. 3.5** Evolution de l'intensité intégrée de groupe de transitions LAET (marqueurs rouges) et HAET (marqueurs bleus) de l'échantillon S1861 en fonction a) de la densité de puissance injectée et b) de la température. Les lignes continues correspondent à la loi de puissance pour a) et à la loi d'Arrhenius pour b).

Dans le cas de l'échantillon S1861 présenté en Fig. 3.3 et Fig. 3.4, la LAET comprend les transitions verte et rouge car elles présentent une décroissance significative de leur intensité à basse température, au contraire du reste des transitions qui composent HAET. L'énergie de référence de chaque famille de transition est basée sur la transition ayant l'intensité intégrée la plus importante à 10 K. Dans le cas présenté ci-dessus, l'énergie de référence est 1,8 eV pour HAET et 1,74 eV pour LAET. On a donc accès à plusieurs paramètres qui sont résumés dans le tableau ci-dessous :

	LAET	HAET
E (eV)	1,74	1,8
q	0,7	0,9
$\alpha_1$	4,5	12
$E_{a1}$ (meV)	5	25
$\alpha_2$	3,3E+03	5,7E+05
$E_{a2}$ (meV)	106	217

**Tab. 3.2** Paramètres extraits de l'analyse pour les transitions LAET et HAET de l'échantillon S1861 présentée dans la Fig. 3.5.

L'évolution des transitions LAET et HAET en fonction de la densité d'excitation est sous-linéaire pour les deux transitions. La transition à plus haute énergie, ici HAET, présente un coefficient d'évolution  $q$  plus important que la transition à plus basse énergie, ici LAET. Pour l'évolution en fonction de la température, la valeur de  $\alpha_1$  doit être comparée à celle d'  $\alpha_2$  pour quantifier son efficacité (un facteur  $7 \times 10^2$  pour LAET contre  $5 \times 10^4$  pour HAET). Cette comparaison indique que la baisse de PL significative pour HAET observée pour des températures supérieures à 100 K est essentiellement traduite par les paramètres  $\alpha_2$  et  $E_{a2}$ .

Il est important de noter que les valeurs d'efficacité d'échappement des porteurs ainsi que de l'énergie d'activation sont sujettes à une incertitude importante car le comportement de l'intensité intégrée de PL peut être retranscrit avec succès pour différents couples de valeurs  $\alpha_i$  et  $E_{ai}$ . Cependant, le comportement mis en lumière sur cet échantillon est bien récurrent sur l'ensemble des échantillons de l'étude.

### 3.1.2. Limitation de la méthode

La méthode d'analyse, présentée ci-dessus, permet de décrire le comportement de photoluminescence des échantillons de QDs en fonction de la densité d'excitation et de la température. Cependant, la superposition spectrale partielle des différentes transitions rend difficile la distinction de leurs comportements. Ainsi dans l'évolution de l'intensité de PL en fonction de la température, à la fois la LAET et la HAET présentent deux énergies d'activation dans nos traitements. Par exemple, il est difficile de dire si la contribution  $\alpha_1$  et  $E_{a1}$  de HAET a un sens physique ou si elle est liée à sa superposition avec des états excités de LAET. Etant donnée la différence qualitative de comportement des deux transitions en fonction de la température, nous nous concentrerons essentiellement, pour chacune d'elle, sur la première contribution d'Arrhenius significative ; à savoir  $\alpha_1$  et  $E_{a1}$  pour LAET,  $\alpha_2$  et  $E_{a2}$  pour HAET.

## 3.2. Structure électronique du système de QDs (In,Ga)As/GaP

### 3.2.1. Contrainte et déformations : Concepts généraux

Avant de présenter la structure électronique du système de QDs (In,Ga)As/GaP, prenons l'exemple du GaAs sur substrat GaP (001) afin d'étudier l'influence des déformations sur les structures de bandes électroniques selon la théorie du potentiel de déformation linéaire [8]. Le GaAs et le GaP ont des structures de type Zinc-Blende. La déformation dans un cristal

peut être définie comme une modification du paramètre de maille du cristal par rapport à sa forme d'équilibre. Dans la plupart des cas, le déplacement est très inférieur au paramètre de maille du cristal donc la déformation peut être décrite par le second ordre du tenseur de déformations symétrique :

$$\bar{\varepsilon} = (\varepsilon_{xx} \ \varepsilon_{yy} \ \varepsilon_{zz} \ \varepsilon_{xy} \ \varepsilon_{yz} \ \varepsilon_{xz})^t \quad (3.6)$$

Le tenseur de contrainte est lié au tenseur de déformation par la loi de Hooke suivant la formule :

$$\bar{\tau} = \bar{\bar{C}} \bar{\varepsilon} \quad (3.7)$$

Où  $\bar{\bar{C}}$ , est le tenseur de raideur élastique définit à l'aide de la formule suivante dans le cas de la structure de type Zinc Blende :

$$\bar{\bar{C}} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Commençons par la déformation purement hydrostatique. Dans ce cas, on a :  $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz}$  et  $\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{xz} = 0$ . Cette déformation étant liée à une variation du volume, on peut écrire :

$$\frac{\Delta V}{V} = \varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz} \quad (3.9)$$

Quand un matériau de paramètre de maille  $a$  est crû sur un matériau de paramètre de maille  $a_0$ , la déformation n'est pas purement hydrostatique. En effet, le substrat impose le paramètre de maille dans le plan donc  $a_{\parallel} = a_0$ . Dans la direction de croissance, le paramètre de maille tend à se relaxer avec un paramètre de maille  $a_{\perp}$ . Dans le cas de la déformation bi-axiale, on écrit :

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \frac{a_{\parallel} - a}{a} = \frac{a_0 - a}{a} \quad (3.10)$$

$$\varepsilon_{zz} = \frac{a_{\perp} - a}{a} \quad (3.11)$$

$$\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{xz} = 0 \quad (3.12)$$

$\varepsilon_{zz}$  et  $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$  peuvent être reliés grâce à la loi de Hooke et à l'absence de déformation dans la direction de croissance, ce qui donne :

$$\varepsilon_{zz} = -2 \frac{C_{12}}{C_{11}} \varepsilon_{xx} \quad (3.13)$$

Dans notre exemple, on a une croissance en compression car  $a_{GaAs} = a = 5,6533 \text{ \AA} > a_{GaP} = a_0 = 5,4505 \text{ \AA}$  (à température ambiante) et on obtient :

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \frac{a_0 - a}{a} = -0,036, \quad \varepsilon_{zz} = -2 \frac{C_{12}}{C_{11}} \varepsilon_{xx} = 0,033 \quad \text{et} \quad \frac{\Delta V}{V} = \varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz} = -0,039$$

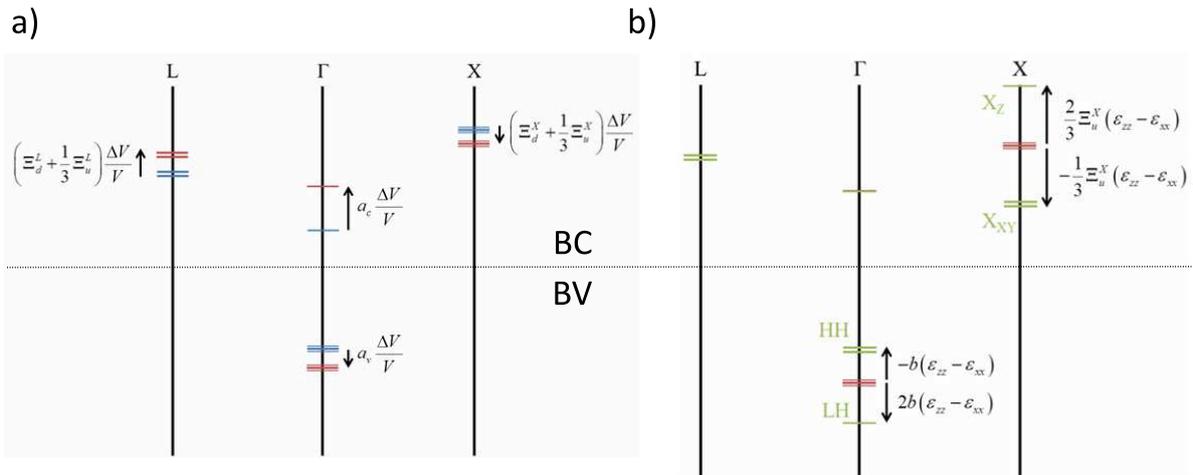
où  $C_{11} = 1,221 \text{ GPa}$  et  $C_{12} = 56,6 \text{ GPa}$ .

L'ensemble des valeurs du diagramme de bande à 0 K non contraint ainsi que les potentiels de déformation du GaAs sont présentés dans le Tab. 3.3 :

$E_g^L$ (eV)	$E_g^\Gamma$ (eV)	$E_g^X$ (eV)	$a_c$ (eV)	$a_v$ (eV)	$b$ (eV)	$\Xi_d^X + \frac{1}{3}\Xi_u^X$ (eV)	$\Xi_d^L + \frac{1}{3}\Xi_u^L$ (eV)	$\Xi_u^X$ (eV)
1,815	1,519	1,981	7,17	1,16	-2,0	1,7	-2,0	6,5

**Tab. 3.3 Bande interdite directe et indirecte du GaAs non contraint à 0 K ainsi que les différents potentiels de déformation du GaAs [9], [10] [11]: Pour X et L,  $\Xi_d + \frac{1}{3}\Xi_u$  et  $\Xi_u$  correspondent respectivement aux potentiels de déformations dans le cas hydrostatique et biaxial. Pour  $\Gamma$ , les potentiels de déformation caractéristiques sont  $a_c$  et  $b$  pour la bande de conduction et  $a_v$  pour la bande de valence.**

Dans le cas de la déformation hydrostatique, le décalage des niveaux d'énergie est proportionnel à la variation de volume comme présenté dans la Fig. 3.6a. Les niveaux d'énergies de la bande de conduction en  $\Gamma$  et L se décalent vers les hautes énergies alors que les niveaux d'énergies de la bande de conduction en X et de la bande de valence en  $\Gamma$  se décalent vers les basses énergies. En ajoutant la déformation biaxiale, on observe d'une part, une levée de dégénérescence de la bande de conduction X en  $X_z$  et  $X_{xy}$  et d'autre part, de la bande de valence  $\Gamma$  en HH et LH. Aucun effet n'est observé sur la bande L pour des raisons de symétrie. La modification de la structure de bande résultante est présentée dans la Fig. 3.6b.

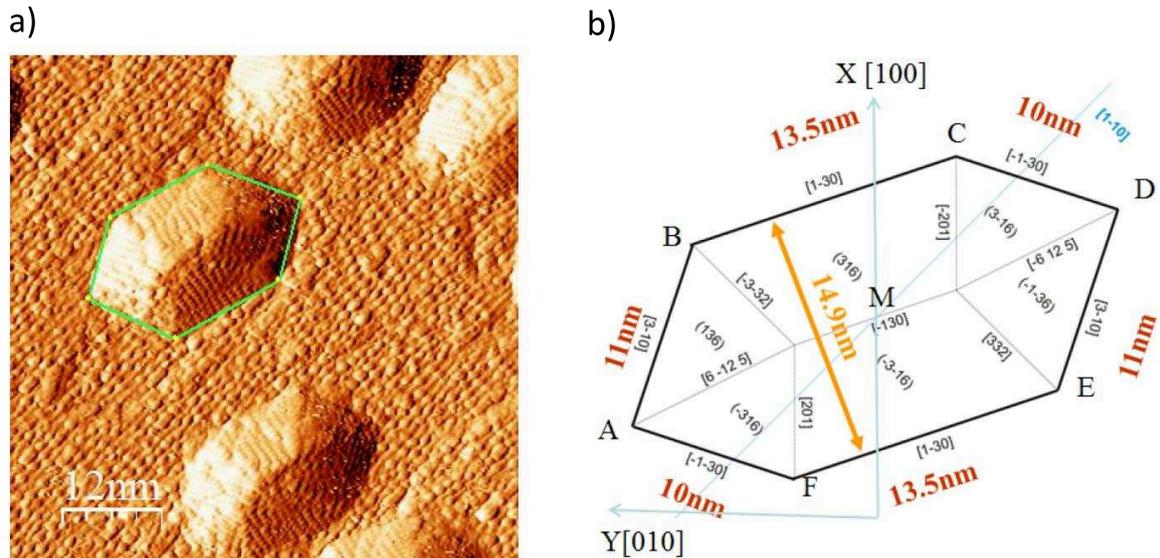


**Fig. 3.6 a) Effet de la déformation hydrostatique (en rouge) sur une couche épaisse de GaAs non contrainte (en bleu). b) Effet de l'ajout de la contrainte biaxiale (en vert) sur une couche épaisse de GaAs contrainte de façon hydrostatique. Figures issues de [12].**

Le GaAs contraint biaxialement sur GaP présente une structure de bande indirecte car le minimum de la bande de conduction est en  $X_{xy}$  et non plus en  $\Gamma$  comme dans le cas du GaAs non contraint ce qui montre bien l'importance de la prise en compte de l'impact des contraintes. Il est important de noter que le cas des QDs est plus complexe car le cristal peut se relaxer dans les trois dimensions et que la contrainte n'est pas homogène dans toute la structure comme le soulignent Grundmann *et al.* [13] dans le cas de QDs InAs/GaAs. La connaissance théorique du champ de déformation peut ainsi permettre de déterminer la structure électronique théorique des QDs [14].

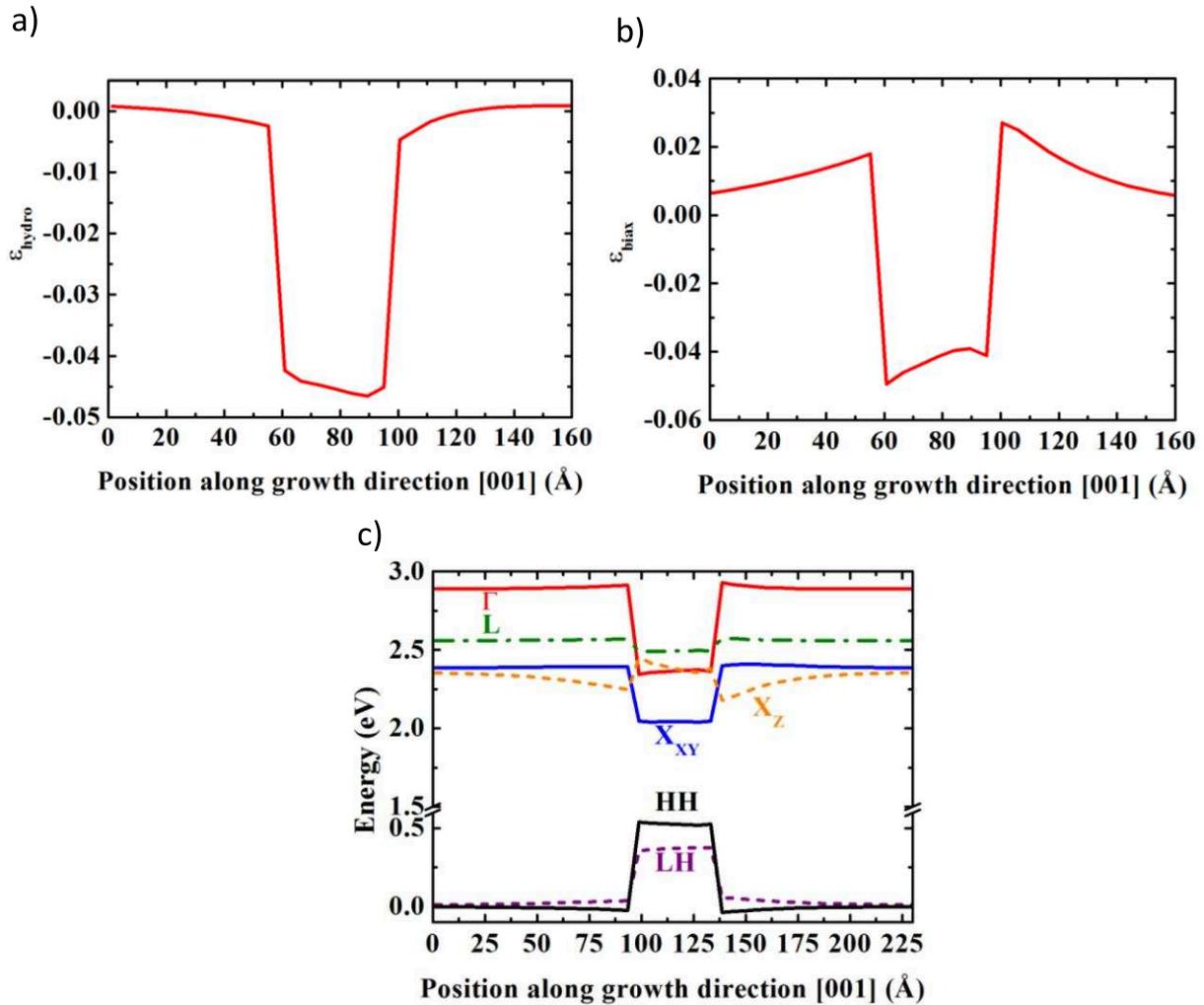
### 3.2.2. Structure électronique théorique

La structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP a été calculée par C. Robert à l'aide d'un calcul supercellule en liaisons fortes (Tight Binding, TB). Ce modèle est basé sur une représentation réaliste des QDs et des déformations en se basant sur les dimensions réelles et les orientations des facettes issues d'images STM [15] données dans la Fig. 3.7. Les QDs (In,Ga)As/GaP ont donc une forme de pyramide asymétrique [16], [17] avec la présence de facettes suivant des plans bien définis [17]. En revanche, ce modèle ne prend en compte ni l'interaction coulombienne ni la présence d'In au sein des QDs qui sera discutée par la suite. Les composantes de déformations hydrostatiques et biaxiales au sein de ces QDs sont présentées dans la Fig. 3.8a et Fig. 3.8b respectivement.



**Fig. 3.7 a) Image STM de QDs (In,Ga)As/GaP. b) Géométrie, orientation des facettes et dimensions des QDs extraites de l'image STM et utilisées dans le modèle TB supercellule. La hauteur des QDs est de 3.4 nm. Figures issues de [12].**

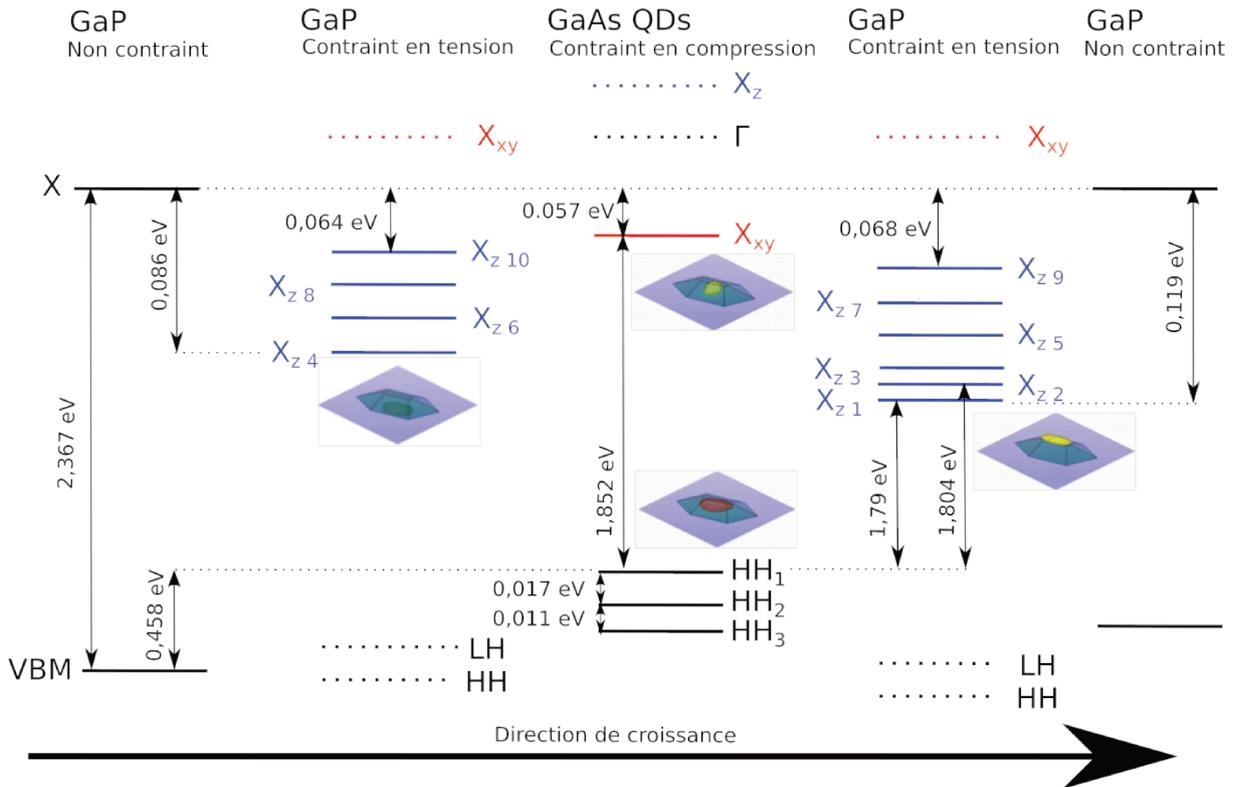
La contrainte hydrostatique est présente principalement au sein de la QD car le GaP, utilisé comme matériau barrière, a un module de Young plus important que le matériau actif qui est ici le GaAs [18]. En ce qui concerne la déformation biaxiale, elle est négative au sein des QDs ce qui implique que le GaAs est en compression. Dans les barrières, elle est par contre positive et s'étend sur plus d'une dizaine d'Angströms. Le GaP soumis à cette contrainte est donc en tension. De plus, on peut remarquer que la déformation est plus importante à l'apex qu'à la base de la QD. Les observations effectuées sur les déformations dans les QDs GaAs/GaP sont aussi observées dans les QDs InAs/GaAs [13]. Le potentiel de confinement résultant est présenté en Fig. 3.8c. La levée de dégénérescence trous légers-trous lourds de la bande de valence est donc inversée : pour le GaP contraint, le minimum est LH, tandis que pour le GaAs, le minimum est HH. Il en est de même pour la levée de dégénérescence des niveaux X : le minimum est  $X_z$  dans le GaP contraint et  $X_{xy}$  dans le GaAs. Pour les bandes de conduction X, on constate la présence d'un gradient de potentiel  $X_z$  de part et d'autre de la QD GaAs dans le GaP contraint mais le potentiel de confinement est plus important pour les électrons  $X_{xy}$  au sein de la QD GaAs.



**Fig. 3.8 Déformation a) hydrostatique ( $\epsilon_{hydro} = \epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}$ ), b) biaxiale ( $\epsilon_{biax} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) - \epsilon_{zz}$ ) et c) potentiel de confinement calculé en utilisant la théorie du potentiel de déformation linéaire pour des QDs GaAs/GaP suivant la direction de croissance à travers le centre de la QD. Figures issues de [12].**

Une fois le potentiel de confinement obtenu, il est possible d'en déduire la structure électronique des QDs GaAs/GaP (Fig. 3.9). On observe alors que l'état fondamental électronique se trouve en  $X_z$  et pas en  $X_{xy}$  pour deux raisons : le profil plus doux du potentiel de confinement et la masse effective  $X$  plus importante dans le GaP que dans le GaAs [9]. Le potentiel de confinement  $X_z$  peut être approximé par un profil de confinement triangulaire comme c'est le cas dans les QWs InAs/GaSb [19]. La nature du confinement des états  $X_z$  dans le GaP contraint donne lieu à de multiples niveaux  $X_z$  au-dessus de l'apex de la QD mais aussi au-dessous de la QD. Le minimum de la bande de conduction correspond à un niveau  $X_z$  au-dessus de l'apex de la QD dans le GaP contraint en tension. La transition est donc indirecte et de type-II avec des trous en HH du GaAs et des électrons dans le GaP contraint en tension

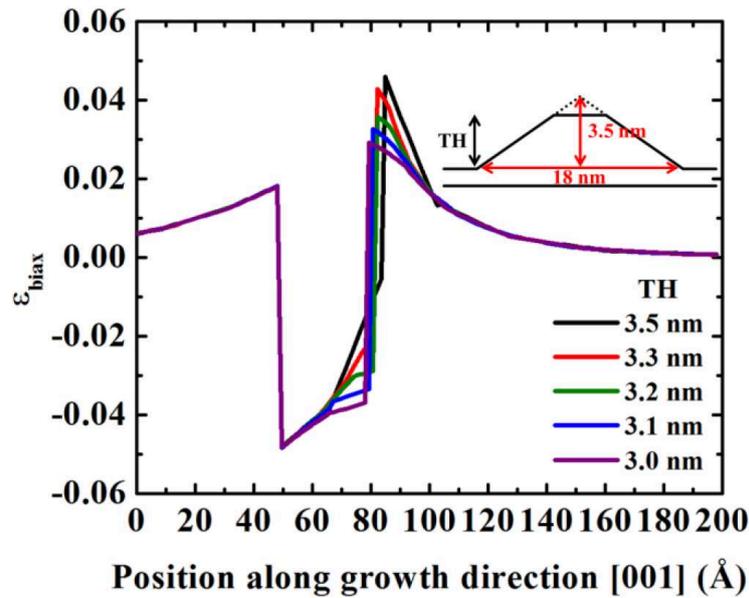
à l'apex de la QD. Cette localisation de porteurs à l'interface GaAs/GaP induite par les contraintes est aussi observée dans le système de QDs Si/Ge [19]–[21] mais diffère d'un type-II standard comme les QDs GaSb/GaAs [23].



**Fig. 3.9 Structure électronique de QDs GaAs/GaP à 0 K et fonctions d'ondes associées, à partir de [15].**

Dans ce dernier cas, les électrons sont délocalisés dans le matériau barrière et ne sont localisés que grâce à l'interaction Coulombienne. On peut donc s'attendre, dans le cas des QDs GaAs/GaP à ce que cette interaction favorise la localisation de porteurs à l'interface. Il existe aussi une transition indirecte de type I entre le niveau  $X_{xy}$  et HH du GaAs mais il est à 0,062 eV au-dessus du niveau  $X_z$  le plus bas et présente un caractère «  $\Gamma$  » très inférieur aux niveaux  $X_z$  (et donc une moindre efficacité radiative), si l'on décompose les fonctions d'onde sur les orbitales élémentaires [15].

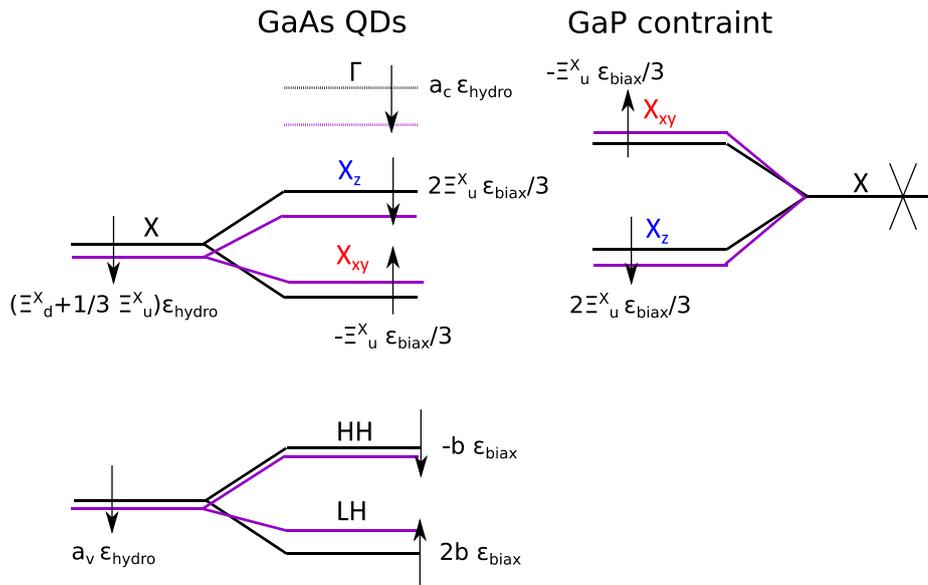
La taille et la forme des QDs vont influencer la structure électronique précédemment décrite par une modification d'une part, du confinement quantique [18] et d'autre part, des contraintes du système. Le confinement quantique va principalement affecter la bande  $\Gamma$  et peu les bandes X à cause de leur masse effective importante [17].



**Fig. 3.10** Evolution de la déformation biaxiale ( $\epsilon_{biax} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) - \epsilon_{zz}$ ) pour différentes hauteurs de troncature (TH) de QDs GaAs/GaP suivant la direction de croissance à travers le centre de la QD. Figure issue de [12].

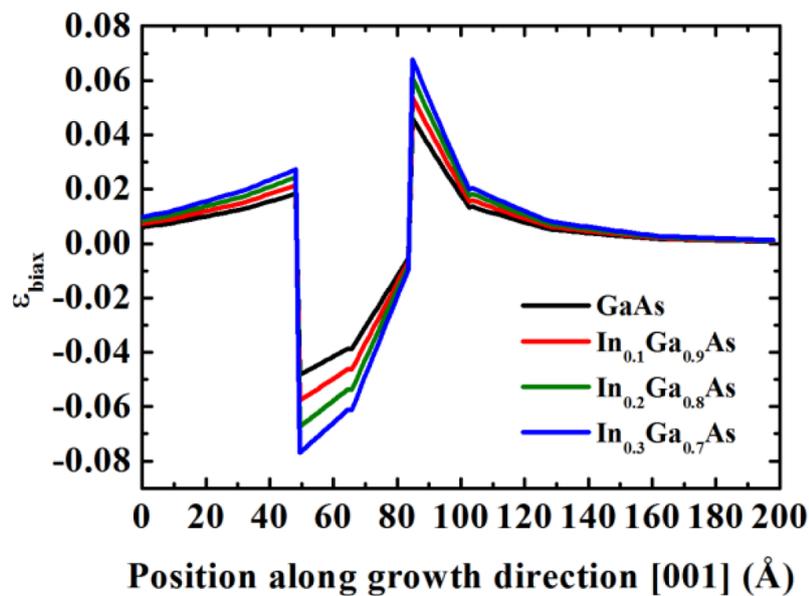
Pour ce qui est des déformations de la QD et des barrières, elles vont être modifiées par la morphologie de la QD comme en témoigne la Fig. 3.10. Pour une QD de plus en plus pointue, la contrainte en tension de la barrière supérieure de GaP va augmenter au voisinage de l'apex et ainsi entraîner un renforcement du potentiel de confinement  $X_z$ . On ne constate pas de modification à la base de la QD. Au sein de la QD, la contrainte en compression va diminuer et ainsi modifier le potentiel de confinement de  $X_{xy}$  et de HH. En se basant sur [13], la déformation hydrostatique ne va pas avoir d'influence sur les barrières mais sur  $\Gamma$  et X des QDs GaAs.

L'influence des déformations sur le potentiel de confinement est résumée dans la Fig. 3.11. L'ajout d'In au sein des QDs GaAs/GaP va avoir une influence forte sur la structure électronique présentée ci-dessus avec d'une part, une réduction du gap du matériau actif non contraint dû au décalage attendu vers les basses énergies de la bande de conduction  $\Gamma$  (et de la bande X) et d'autre part, une modification des contraintes du système par l'augmentation du désaccord de paramètre de maille entre l' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  et le GaP.



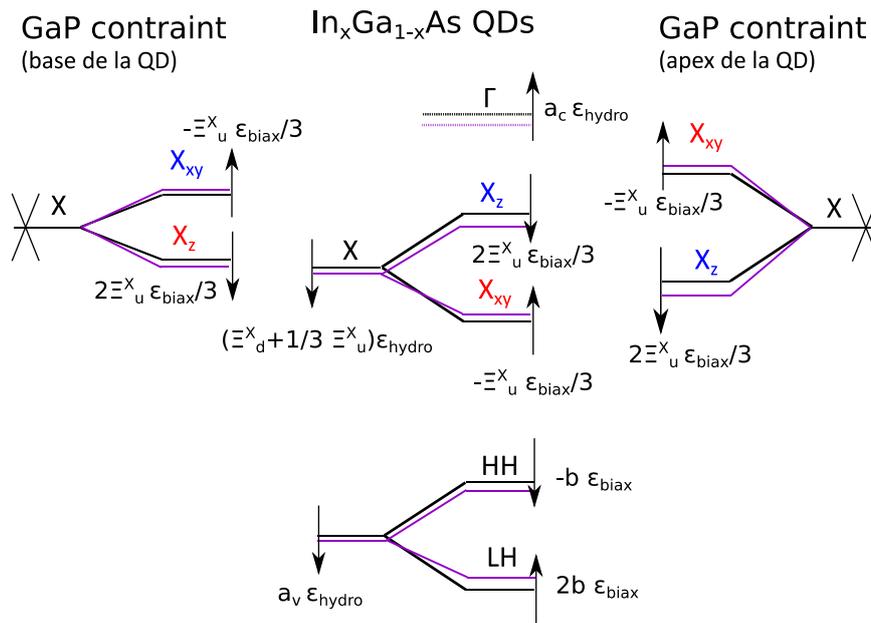
**Fig. 3.11** Influence des déformations sur le potentiel de confinement électronique en fonction de la hauteur des QDs GaAs/GaP.

Les déformations de la QD et des barrières vont être modifiées comme en témoigne la Fig. 3.12. Avec l'augmentation d'In, la contrainte en tension des barrières de GaP va donc augmenter avec une influence plus importante à l'apex qu'à la base de la QD entraînant un renforcement des potentiels de confinement  $X_z$ . Au sein de la QD, la contrainte en compression va elle aussi augmenter et ainsi modifier le potentiel de confinement de  $X_{xy}$  et de HH.



**Fig. 3.12** Evolution de la déformation biaxiale ( $\epsilon_{biax} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) - \epsilon_{zz}$ ) en fonction de la composition d'In du système de QDs (In,Ga)As/GaP suivant la direction de croissance à travers le centre de la QD. Figure issue de [12].

La modification du potentiel de confinement correspondant est présentée dans la Fig. 3.13. La distribution de l'In est inhomogène dans les QDs (In,Ga)As/GaP [24] avec la présence d'une zone In riche au sommet de la QD et une couche de mouillage (WL) plutôt de type GaAs<sub>x</sub>P<sub>1-x</sub> [16], [24]. Cette inhomogénéité affecte fortement la localisation et le recouvrement des électrons et des trous. Le recouvrement des fonctions d'ondes d'électrons et de trous étant lié à l'efficacité de photoluminescence, on s'attend donc à une modification de celle-ci en fonction de la composition d'In.



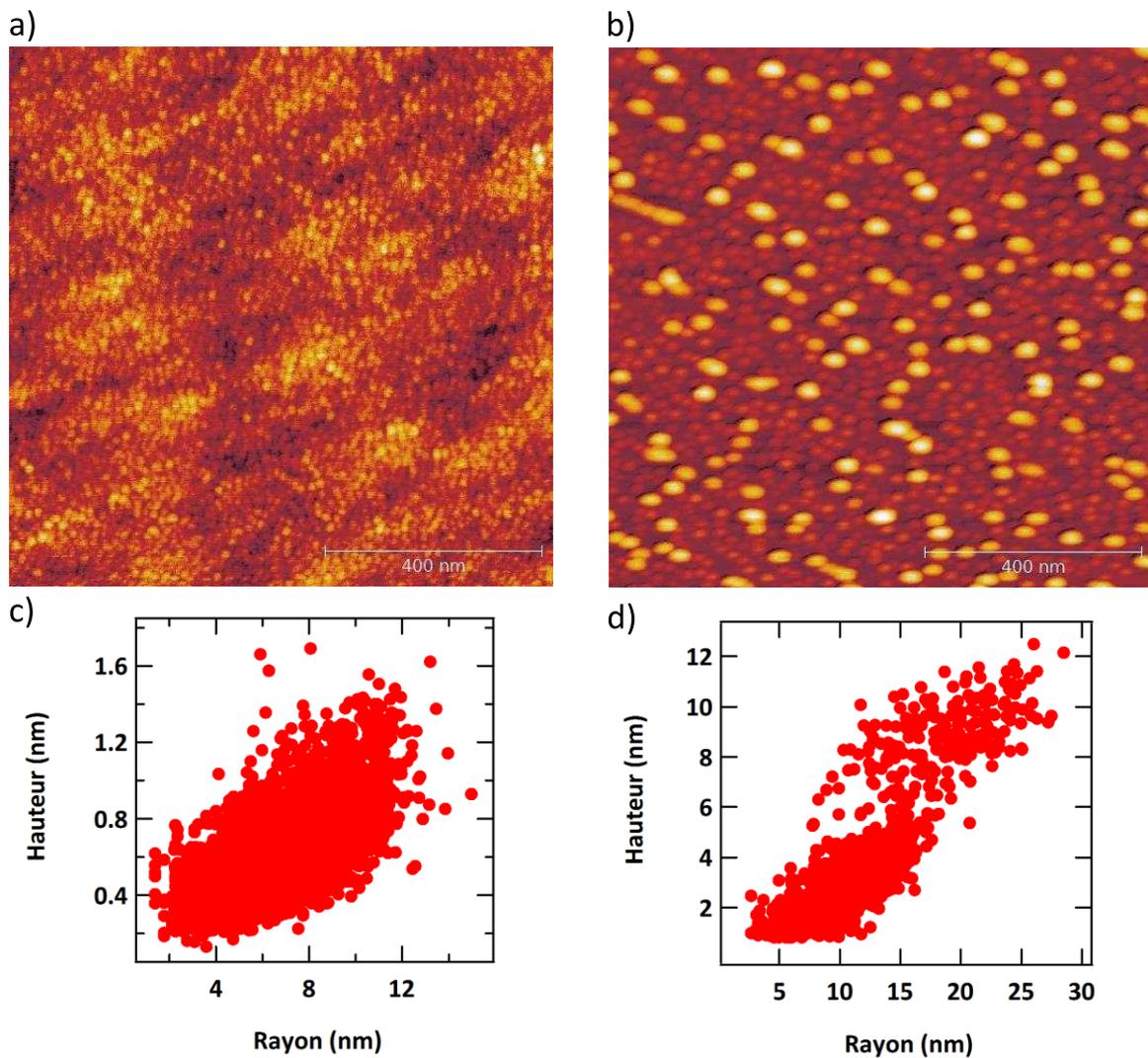
**Fig. 3.13 Contribution des déformations au potentiel de confinement électronique en fonction de la composition d'In des QDs (In,Ga)As/GaP.**

### 3.2.3. Identification expérimentale

Dans la partie 3.1.1.3, nous avons identifié deux familles de transitions optiques récurrentes dans les spectres des QDs (In,Ga)As/GaP, notées LAET et HAET et correspondant à des transitions optiques ayant des énergies d'activations faibles et grandes, respectivement. L'objectif de cette section est d'identifier ces deux familles de transitions dans le cadre théorique exposé en section 3.2. Trois éléments sont à prendre en compte la morphologie des QDs, les temps de vie des transitions, l'efficacité de PL et l'évolution des spectres de PL en température.

Dans un premier temps, il est important d'exclure ou non le lien avec la distribution et/ou la morphologie des QDs. Pour cela, deux images AFM ainsi que la distribution des rapports d'aspect associée sont présentées en Fig. 3.14. Les dimensions et la densité des

QDs sont déterminées à l'aide de la méthode des partitions de Voronoi. Les images AFM correspondent à des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP avec 10 % d'In (Fig. 3.14a) et 35 % d'In (Fig. 3.14b). Dans la Fig. 3.14a, une forte densité de QDs est mesurée :  $3,7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . La distribution des QDs est monomodale en hauteur et en rayon comme le souligne les données morphologiques données en Fig. 3.14c où la hauteur moyenne et le rayon moyen des QDs sont de  $0,6 \pm 0,2 \text{ nm}$  et  $6,7 \pm 2,2 \text{ nm}$  respectivement. Ces QDs sont plus petites que celles décrites dans [25] malgré un pourcentage d'In incorporé comparable [17].



**Fig. 3.14** Images AFM  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  et diagrammes hauteurs/rayons extraits pour les échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP avec a) et c) 10% d'In (S1883) et b) et d) 35% d'In (S1826) réalisés à 500 °C.

Cette différence s'explique par le fait qu'une température de croissance plus importante entraîne une augmentation de la longueur de diffusion et ainsi modifie la zone effective de collections des atomes [26] entraînant la croissance de QDs ayant des

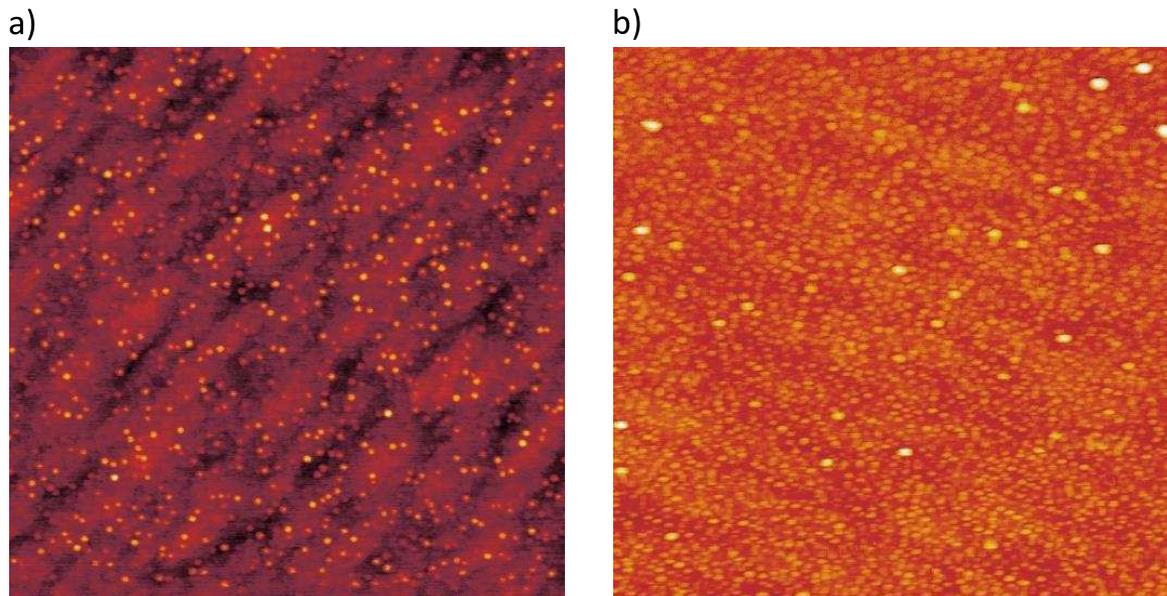
dimensions plus importantes [27]. Une distribution monomodale a toujours été observée pour des QDs avec un faible pourcentage d'In [28]. Pour l'échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP avec 35 % d'In (Fig. 3.14b), la densité de QDs est légèrement inférieure :  $1,4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  mais la morphologie de QDs est très différente. Dans la Fig. 3.14d, on constate la présence d'une distribution bimodale claire en hauteur et en rayon. Cette distribution est aussi observée (non présentée ici) pour des QDs (In,Ga)As/GaP avec 50% d'In (échantillon S1804). La population de QDs (grosses et petites) sera donc analysée de façon statistique. Les dimensions ainsi que les densités des QDs (In,Ga)As/GaP analysées sont présentées dans la Tab. 3.4.

Composition d'In nominale (%)	Echantillon	Densité ( $\text{cm}^{-2}$ )	Petites QDs			Grosses QDs		
			Hauteur (nm)	Rayon (nm)	Densité ( $\text{cm}^{-2}$ )	Hauteur (nm)	Rayon (nm)	Densité ( $\text{cm}^{-2}$ )
10	S1883	$3,7\text{E}+11$	$0,6 \pm 0,2$	$6,7 \pm 2,2$	$3,7\text{E}+11$	-	-	-
35	S1826	$1,4\text{E}+11$	$2,8 \pm 1,1$	$10,5 \pm 2,9$	$1,2\text{E}+11$	$8,9 \pm 1,3$	$18,9 \pm 3,8$	$2\text{E}+10$
50	S1804	$4,9\text{E}+10$	$3,9 \pm 1,5$	$11,5 \pm 2,3$	$4,3\text{E}+10$	$12,7 \pm 2,9$	$22,1 \pm 4,8$	$5\text{E}+09$

**Tab. 3.4 Dimensions et densités des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 10% (S1883), 35% (S1826) et 50% (S1804) d'In réalisées à 500 °C**

Une distribution bimodale a aussi été observée par Heidemann *et al.* [29] pour des QDs (In,Ga)As/GaP avec 45 % d'In réalisées à 500 °C. La densité de QDs obtenue est de  $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Pour ce qui est de la distribution bimodale de hauteur, ils constatent une hauteur moyenne de  $3,1 \pm 1,1 \text{ nm}$  pour les petites QDs et de  $9,0 \pm 2,3 \text{ nm}$  pour les grosses boîtes. La densité de leurs QDs ainsi que les hauteurs moyennes associées sont comparables à celles obtenues pour 35 % d'In, cependant le ratio petites QDs/grosses QDs est inversé. Cette différence vient probablement de l'utilisation d'un ratio V/III plus important lors de la croissance des QDs grâce à l'utilisation d'un bâti MBE à source gazeuse. La présence d'une distribution monomodale/bimodale semble à première vue être liée au pourcentage d'In. Cependant, Stracke *et al.*[30] obtiennent une distribution monomodale pour des QDs (In,Ga)As/GaAs(2.2 ML)/GaP avec 50 % d'In réalisées à 500 °C. La densité de QDs est  $1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  et la hauteur (le rayon) des QDs est  $3,1 \pm 0,5 \text{ nm}$  ( $21,7 \pm 2,0 \text{ nm}$ ). Cette différence peut s'expliquer d'une part, par l'utilisation d'un réacteur MOVPE et d'autre part, par la croissance d'une couche tampon de GaAs avant les QDs qui vient modifier les contraintes du système ainsi que l'épaisseur critique. L'épaisseur déposée joue aussi un rôle important comme en témoigne le passage d'une distribution monomodale pour 2.5 ML (Fig. 3.15a) à

une distribution bimodale pour 3.5 ML (Fig. 3.15b) d'(In,Ga)As déposé dans le cas de QDs (In,Ga)As/GaP avec 35 % d'In réalisées à 500 °C.



**Fig. 3.15** Images AFM  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In et réalisées à 500 °C pour a) 2.5 ML (S1877) et b) 3.5 ML (S1878) d'(In,Ga)As déposé.

L'origine de la présence ou non d'une bi-distribution est complexe [31] et est au-delà du contexte de cette thèse, cependant il est important de noter que la coexistence de deux familles de QDs a aussi été démontrée pour d'autres systèmes comme InAs/GaAs [32], Ge/Si [32] et GaAs/GaP [33]. Un meilleur contrôle de la densité et des dimensions des QDs peut être obtenu grâce à des méthodes comme la croissance d'îlots par intermittence [34] ou la croissance par dépôt de quantité variable [35].

Les spectres de PL correspondant aux échantillons non encapsulés présentés dans la Fig. 3.14 sont donnés dans la Fig. 3.16. Ils sont composés de deux transitions : LAET et HAET. Dans notre cas, la présence de ces transitions n'est donc pas liée à la distribution des QDs au contraire de ce qu'on trouve dans la littérature pour les systèmes (In,Ga)As/GaAs [36], [37], InAs/GaAs [38] et GaAs/GaP [33].

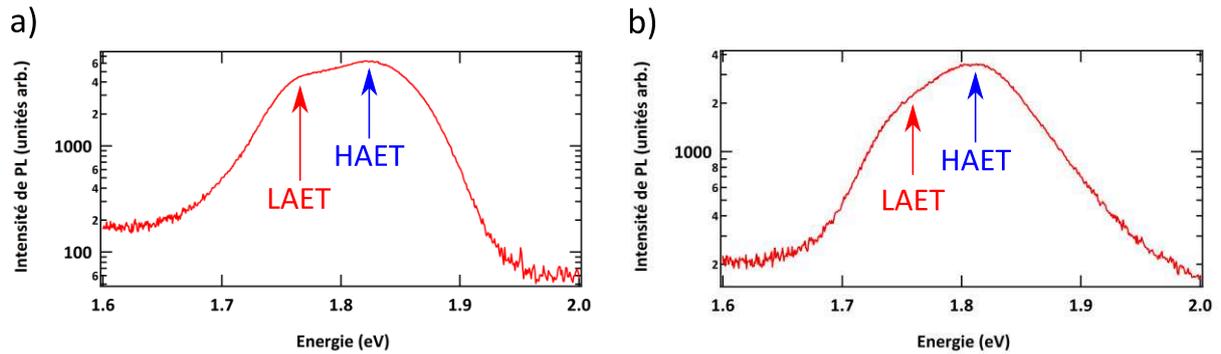


Fig. 3.16 Intensité de PL de QDs (In,Ga)As/GaP correspondant aux échantillons non encapsulés présentés dans la Fig. 3.14 a) pour 10% d'In (S1777-distribution monomodale) et b) 35 % d'In (S1817-distribution bimodale) à 20 K et pour une densité de puissance injectée de  $207 \text{ W.cm}^{-2}$ .

Dans notre cas, la présence de ces transitions n'est donc pas liée à la distribution des QDs au contraire de ce qu'on trouve dans la littérature pour les systèmes (In,Ga)As/GaAs [36], [37], InAs/GaAs [38] et GaAs/GaP [33]. Des mesures de photoluminescence résolues en temps (Time Resolved PhotoLuminescence, TRPL) ont été réalisées au LPCNO à Toulouse (Fig. 3.17) à 10 K sur un échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP par A. Balocchi.

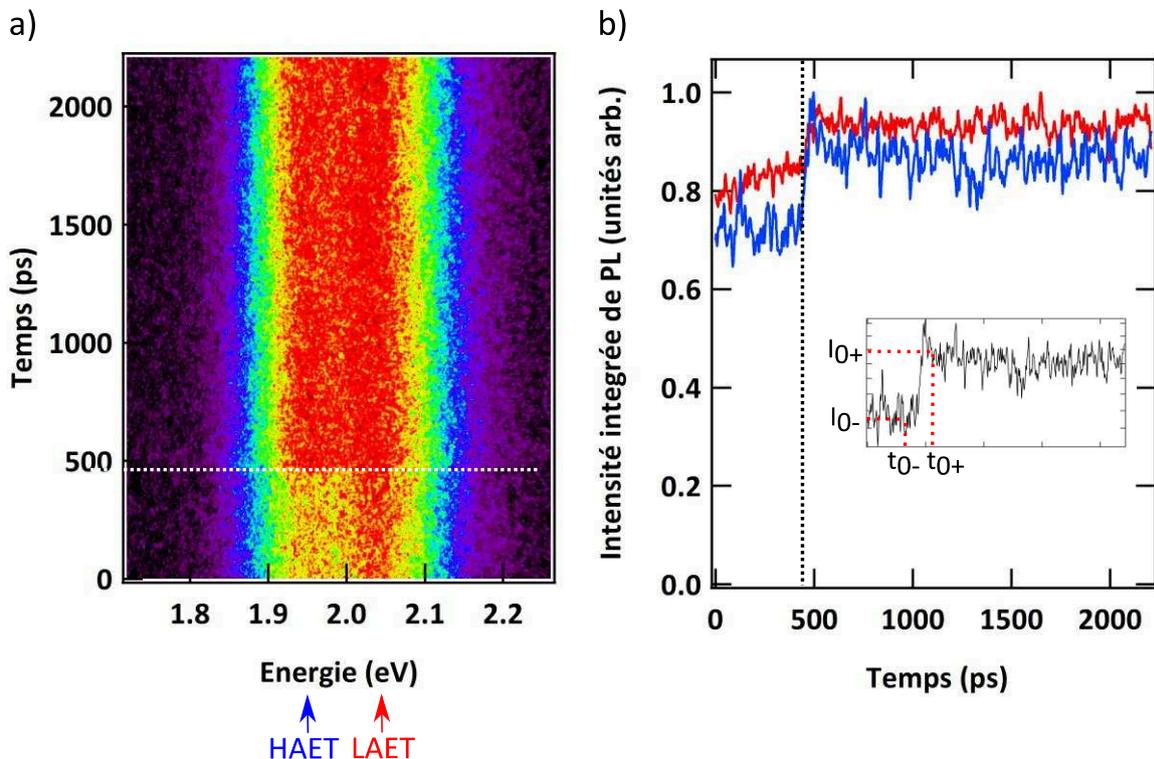
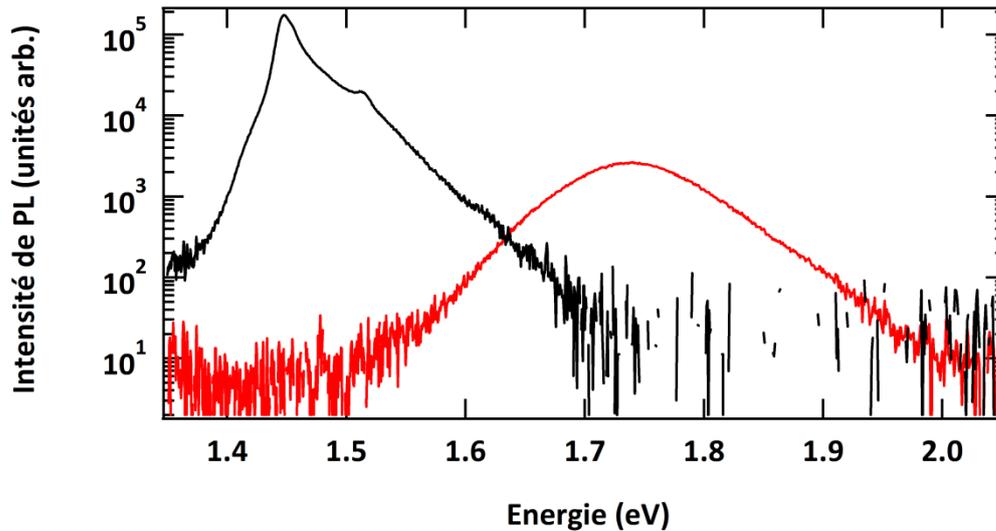


Fig. 3.17 Image de la streak camera d'un échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP (S1562) à 10K avec un taux de répétition de 80 MHz. b) Dynamique de PL des transitions LAET (rouge) et HAET (bleue). La ligne pointillée indique l'arrivée du pulse laser d'excitation. L'insert présente la méthode utilisée afin d'extraire le temps de vie.

Les temps de vie des deux transitions présentes au sein de l'échantillon sont supérieurs au taux de répétition du laser Ti-saphir d'excitation qui est de 12,5 ns. A l'aide de la méthode illustrée dans l'insert de la Fig. 3.17b, on peut extraire un temps de vie par la formule suivante :

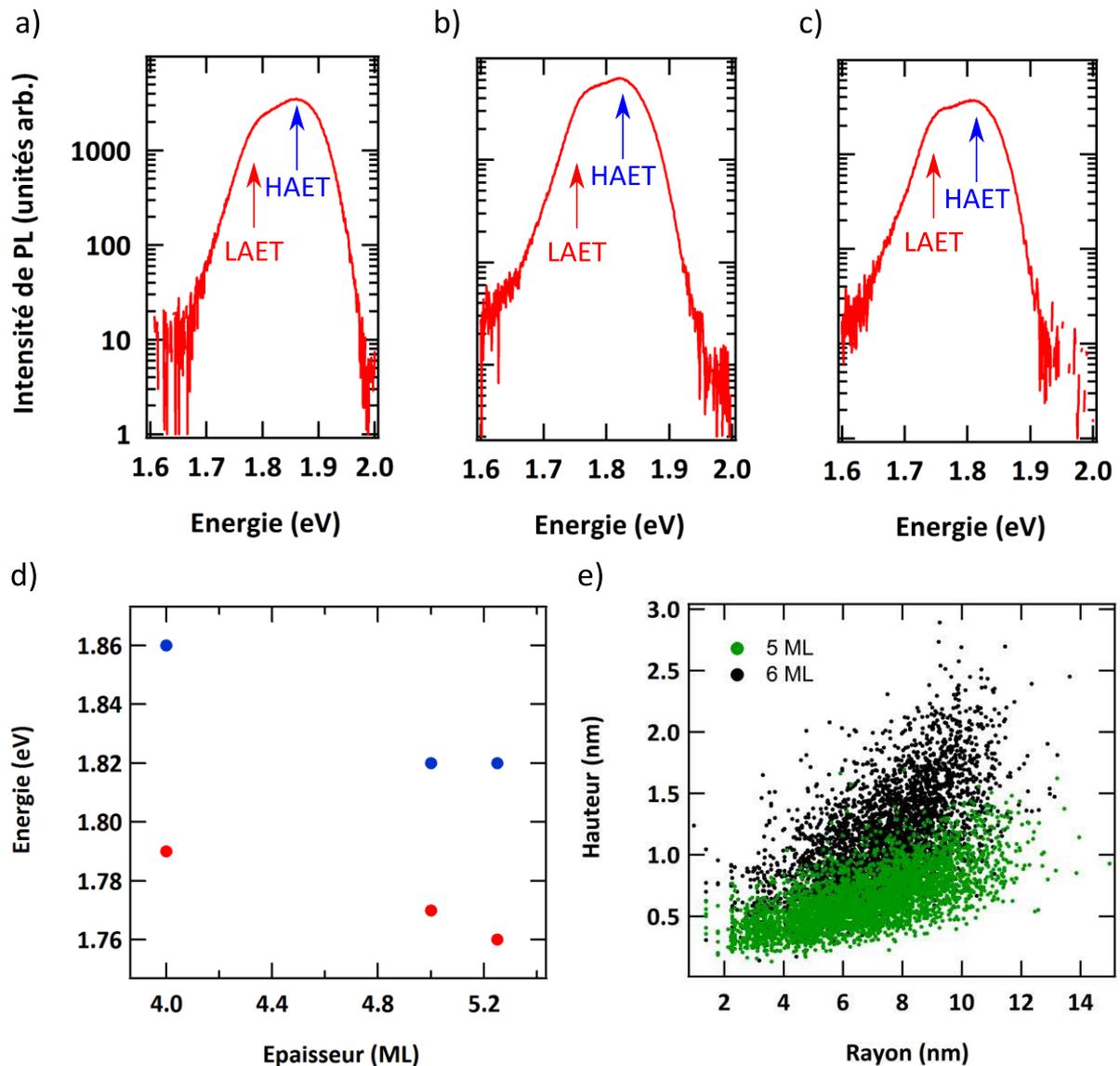
$$\tau = (T_{pulse} - (t_{0+} - t_{0-})) \left[ \ln \left( \frac{I_{0+}}{I_{0-}} \right) \right]^{-1} \quad (3.14)$$

Où  $\tau$  est le temps de vie et  $T_{pulse}$  est la durée du pulse d'excitation qui est ici de 12,5 ns (80 Mhz).  $I_{0+}$  est l'intensité intégrée après le pulse ( $t_{0+}$ ) et  $I_{0-}$  est l'intensité intégrée avant l'arrivée du pulse ( $t_{0-}$ ). Cette mesure de temps de vie est peu précise car elle est basée sur l'hypothèse d'une décroissance mono-exponentielle sur la plage :  $(T_{pulse} - (t_{0+} - t_{0-}))$ . Pour les transitions identifiées, on obtient un temps caractéristique de l'ordre de 140 ns pour LAET et de 70 ns pour HAET. Fait intéressant, la durée de vie de la transition à basse énergie est plus courte que celle à haute énergie. Les transitions sont donc de natures différentes et la relaxation interne entre les niveaux est négligeable vis-à-vis de l'injection directe sur chaque niveau dans les expériences résolues en temps. Ces temps sont donc très longs comparé au 1 ns du système de QDs direct de type I InAs/GaAs [39] ainsi qu'aux 5 ns d'un système direct de type II comme les QDs GaSb/GaAs [23] ce qui suggère une nature indirecte des transitions. Ces temps de vie longs sont associés à une assez faible efficacité quantique comme le montre une comparaison de PL obtenue dans les mêmes conditions expérimentales entre un échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP et un système direct (3 QWs GaAs/(Al,Ga)As) comme illustré dans la Fig. 3.18. Le rapport de 65 entre les intensités intégrées des 2 systèmes est comparable au rapport du temps de vie de nos QDs à celui de QWs GaAs/(Al,Ga)As [40]. Ceci confirme que le temps de vie non-radiatif dans nos systèmes reste long, signe d'une bonne qualité structurale.



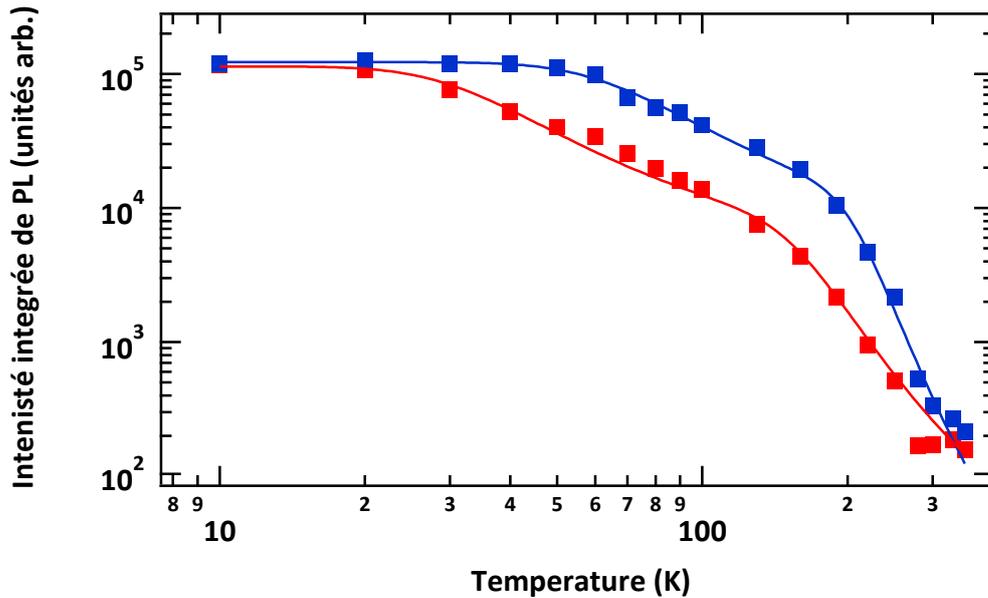
**Fig. 3.18** Comparaison de l'intensité de photoluminescence à température ambiante entre un échantillon comportant 3 QWs GaAs/(Al,Ga)As (courbe noire, S1841) à l'échantillon le plus optimisé comportant un plan de QDs (In,Ga)As/GaP (courbe rouge, S1932) pour une même puissance d'excitation.

Les spectres de PL à 10 K d'échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 10 % d'In réalisés à 500 °C sont présentés en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée : 4 (Fig. 3.19a), 5 (Fig. 3.19b) et 5.25 ML (Fig. 3.19c). Les trois spectres de PL ont la même allure malgré des différences au niveau de l'intensité avec la contribution majoritaire au signal de PL qui est la transition à plus haute énergie, HAET. La position des transitions LAET et HAET en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée est présentée dans la Fig. 3.19d. Une baisse de l'énergie des deux transitions est observée traduisant la diminution de l'énergie de confinement quantique. L'augmentation effective des dimensions des QDs en fonction de l'épaisseur déposée est présentée dans la Fig. 3.19e. Selon la structure électronique présentée en 3.2.2, les transitions présentent très certainement le même état de trous, lequel correspond aux niveaux HH dans l'(In,Ga)As. La variation d'énergie observée correspond à la modification de la bande de valence en fonction de l'augmentation des dimensions de QDs (In,Ga)As/GaP calculée par la méthode k.p [17]. L'effet du confinement quantique semble donc principalement dû à un changement du confinement en bande de valence. Ce type de comportement est aussi observé dans le cas de QDs Si/Ge [22]. Le cas de la bande de conduction est plus complexe car l'augmentation des dimensions des QDs va modifier le confinement quantique mais aussi les contraintes induites qui agissent de façon différente sur la bande  $X_{xy}$  de l'(In,Ga)As et  $X_z$  du GaP.



**Fig. 3.19** Spectres de PL correspondant à des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 10 % d'In réalisés à 500 °C pour différentes épaisseurs d'(In,Ga)As déposées : a) 4 ML (S1773), b) 5 ML (S1777) et c) 5.25 ML (S1794). Les spectres de PL ont été réalisés à 10 K pour une densité de puissance injectée de 207 W.cm<sup>-2</sup>. d) Evolution de l'énergie à 10 K des transitions LAET (en rouge) et HAET (en bleu) en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée. e) Diagramme hauteur/rayon extrait des images AFM 1x1 μm<sup>2</sup> des échantillons de QDs correspondant à 2 (S1882), 5 (S1883) et 6 ML (S1884) d'(In,Ga)As déposée. Aucune QD n'est observée pour 2 ML d'(In,Ga)As. Les marqueurs verts et noirs correspondent à 5 et 6 ML respectivement. La hauteur (le rayon) des QDs pour 5,0 ML sont 0,6 ± 0,2 nm (6,7 ± 2,2 nm) et 1,1 ± 0,4 nm (7,2 ± 1,9 nm) pour 6 ML.

Cette différence semble être observée dans la Fig. 3.19d pour des épaisseurs d'InGaAs supérieures à 5 ML où LAET diminue au contraire de HAET qui reste constante. L'évolution en fonction de la température des transitions LAET et HAET est présentée dans la Fig. 3.20.



**Fig. 3.20** Evolution de l'intensité intégrée de la transition LAET (marqueurs rouges) et HAET (marqueurs bleus) en fonction de la température pour une épaisseur d'(In,Ga)As déposée de 5.25 ML. Les lignes continues correspondent à la loi d'Arrhenius. L'échantillon présenté correspond à un plan de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 10 % d'In réalisé à 500 °C (S1794).

Comme discuté dans la partie 3.1.1.3, l'intensité intégrée de LAET diminue fortement à basse température au contraire de l'intensité intégrée de HAET qui reste constante sur une gamme de température plus étendue. A l'aide de la loi d'Arrhenius, on a donc accès aux paramètres suivants :  $\alpha_1$ ,  $E_{a1}$  pour LAET et  $\alpha_2$ ,  $E_{a2}$  pour HAET. Les paramètres obtenus pour 5,25 ML ainsi que ceux pour 4 ML et 5 ML sont rassemblés dans le Tab. 3.5.

Epaisseur d'(In,Ga)As (ML)	Echantillon	LAET		HAET	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
4	S1773	30	10	1E+04	110
5	S1777	30	10	4,6E+07	355
5,25	S1794	30	10	1,1E+06	210

**Tab. 3.5** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions LAET et HAET des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 10 % d'In réalisés à 500 °C.

L'efficacité d'échappement des porteurs et l'énergie d'activation caractéristique de la transition LAET ne varient pas en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée au contraire des paramètres de la transition HAET. L'influence de l'épaisseur déposée sera discutée dans la partie 3.3.1. L'énergie d'activation caractéristique de LAET est faible et correspond

vraisemblablement à des énergies d'activation électroniques au contraire des énergies d'activations importantes de HAET qui correspondent à des énergies d'activations de trous. Une hypothèse crédible est que l'absence d'énergie d'activation électronique de HAET provient du gradient de confinement des niveaux  $X_z$  dans le GaP contraint, illustré dans la Fig. 3.8c, qui implique un potentiel d'échappement faible pour l'énergie d'activation à basse énergie traduisant la capacité à re-capturer les électrons au sein de ce potentiel. La transition optique liée à ce niveau présentera donc une seule énergie d'activation à haute énergie liée à l'échappement effectif des trous.

Aux vues de ces observations, nous en déduisons que la transition HAET est une transition indirecte de type-II entre les niveaux  $X_z$  du GaP et les trous HH de l'(In,Ga)As. La transition LAET est une transition indirecte de type-I entre les niveaux  $X_{xy}$  et HH de l'(In,Ga)As. La robustesse de cette hypothèse sera confirmée dans l'ensemble de l'étude présentée ci-dessous. Dans la suite, la transition LAET sera donc appelée  $X_{xy} \text{ (In,Ga)As}$  et la transition HAET  $X_z \text{ GaP}$ .

### 3.2.4. Objectifs expérimentaux

Notre objectif est l'obtention d'une transition directe de type-I au sein des QDs (In,Ga)As/GaP ce qui implique que le niveau  $\Gamma$  soit à une énergie plus basse que les niveaux  $X$ . Afin d'atteindre ce but, nous allons modifier les paramètres de croissances des QDs (In,Ga)As/GaP de façon à susciter une modification des contraintes du système, du confinement quantique (partie 3.3) et de la composition des QDs (partie 3.4) afin de favoriser le décalage de  $\Gamma$  vers les basses énergies. Dans notre cas, la position de  $\Gamma$  n'est pas connue. Nous chercherons donc à diminuer au maximum l'énergie de la transition  $X_{xy} \text{ (In,Ga)As}$  ce qui doit correspondre à une diminution de la bande  $\Gamma$  en première approximation.

## 3.3. Confinement quantique dans les QDs (In,Ga)As/GaP

La façon la plus intuitive de modifier le confinement quantique est de faire varier la hauteur des QDs par l'épaisseur d' (In,Ga)As déposée.

### 3.3.1. Epaisseur d' (In,Ga)As déposée

La formation des QDs a lieu quand l'épaisseur déposée dépasse une épaisseur critique (on parle alors de transition 2D-3D). Elle est inférieure à 2,5 ML pour le cas des QDs (In,Ga)As/GaP avec 35 % d'In comme illustré dans la Fig. 3.21 qui présente l'évolution de la

densité ainsi que les diagrammes hauteurs/rayons correspondant de QDs (In,Ga)As/GaP avec 35 % d'In en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée. La distribution des QDs est monomodale pour 2,5 ML puis devient bimodale au-delà. La densité des grosses QDs augmente de façon continue passant de 0 à  $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  sur la plage [2,5-4,5] puis reste constante. La densité de petites QDs quant à elle varie peu malgré une légère augmentation pour 3,5 ML. Pour ce qui est des dimensions des QDs (Tab. 3.6), elles augmentent en fonction de l'épaisseur déposée.

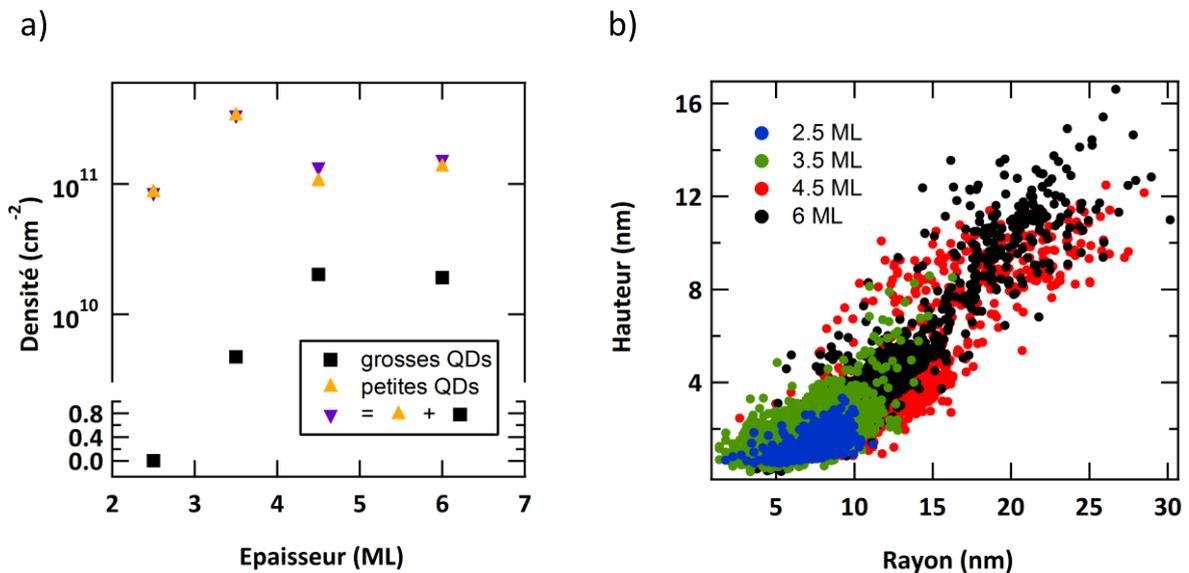


Fig. 3.21 a) Densité des QDs (In,Ga)As/GaP avec 35 % d'In en fonction de l'épaisseur (In,Ga)As déposée. Les marqueurs oranges, noirs et violets correspondent aux petites, aux grosses QDs et à la somme des deux. b) Diagramme Hauteur/rayon de l'ensemble des QDs extraits des images AFM  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ . Les marqueurs bleus, verts, rouges et noirs correspondent aux épaisseurs d'(In,Ga)As déposées : 2,5 (S1877), 3,5 (S1878), 4,5 (S1826) et 6 ML (S1860).

Epaisseur d'(In,Ga)As (ML)	Echantillon	Petites QDs		Grosses QDs	
		Hauteur (nm)	Rayon (nm)	Hauteur (nm)	Rayon (nm)
2,5	S1877	$1,4 \pm 0,5$	$8,0 \pm 1,7$	-	-
3,5	S1878	$1,9 \pm 0,7$	$7,2 \pm 1,7$	$5,5 \pm 1,3$	$11,2 \pm 2,2$
4,5	S1826	$2,8 \pm 1,1$	$10,5 \pm 2,9$	$8,9 \pm 1,3$	$18,9 \pm 3,8$
6	S1860	$3,3 \pm 1,4$	$10,4 \pm 2,5$	$10,7 \pm 1,6$	$20,5 \pm 3,0$

Tab. 3.6 Dimensions des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée.

Des observations similaires ont été obtenues dans le cas de QDs InAs/GaAs [41], QDs GaAs/GaP [33] et (In,Ga)As/GaP [30]. Les résultats des analyses de PL sont reportés dans la Fig. 3.22. L'augmentation des dimensions des QDs en fonction de l'épaisseur déposée

entraîne un croisement des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP sur la plage [2,5-4,5] ML comme illustré en Fig. 3.22a),b) et c). La position des transitions en fonction de l'épaisseur d'InGaAs déposée est présentée dans la Fig. 3.22d. Une baisse de l'énergie des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP est observée et est due à une modification du confinement quantique. Cette modification est principalement due à une variation de la bande de valence comme discuté dans la partie 3.2.3. Pour une épaisseur de 2,5 ML, on constate bien que la transition  $X_z$  GaP est à une énergie plus basse que celle de  $X_{xy}$  (In,Ga)As. Les niveaux  $X_z$  du GaP contraint sont donc à une énergie plus basse que les niveaux  $X_{xy}$  de l'(In,Ga)As. Cette configuration est similaire à celle obtenue par simulation dans le cas de QDs GaAs/GaP et est discutée dans la partie 3.2.2. La hauteur des QDs GaAs/GaP simulée est de 3,4 nm et correspond aux hauteurs des QDs (In,Ga)As/GaP obtenues à 2,5 ML déposées et aux petites QDs obtenues à 3,5 ML déposées. Pour une épaisseur déposée de 3,5 ML, la transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As n'est pas visible car elle n'a pas pu être discriminée vis-à-vis de la transition  $X_z$  GaP. Il est fort possible que les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP soient au même niveau ou très proches ce qui se traduit par la présence d'une contribution à basse et haute énergies d'activation pour le pic d'émission. Pour une épaisseur égale ou supérieure à 4,5 ML, la transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As est à une énergie inférieure à  $X_z$  GaP. Les niveaux  $X_{xy}$  de l'(In,Ga)As sont donc à une énergie plus basse que les niveaux  $X_z$  du GaP contraint. Ainsi, la transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As semble être plus sensible aux variations de hauteur et à la modification de contraintes qui en résultent que la transition  $X_z$  GaP. Ce croisement n'est pas observé pour les QDs (In,Ga)As/GaP avec 10 % d'In dans l'intervalle [4-5,25] ML (Fig. 3.19b) malgré une hauteur de QDs inférieure à celles obtenues pour 35 %.

L'intensité intégrée à 10 K et 300 K des échantillons correspondants est présentée dans la Fig. 3.22e. Les mesures de PL en fonction de la température ont été effectuées dans un cryostat avec un seul échantillon. Ils peuvent être soumis à des dérèglements de montage. Afin de pouvoir comparer quantitativement les échantillons entre eux, leur PL a été mesurée dans un dispositif de mesure à température ambiante avec systématiquement un échantillon de référence.

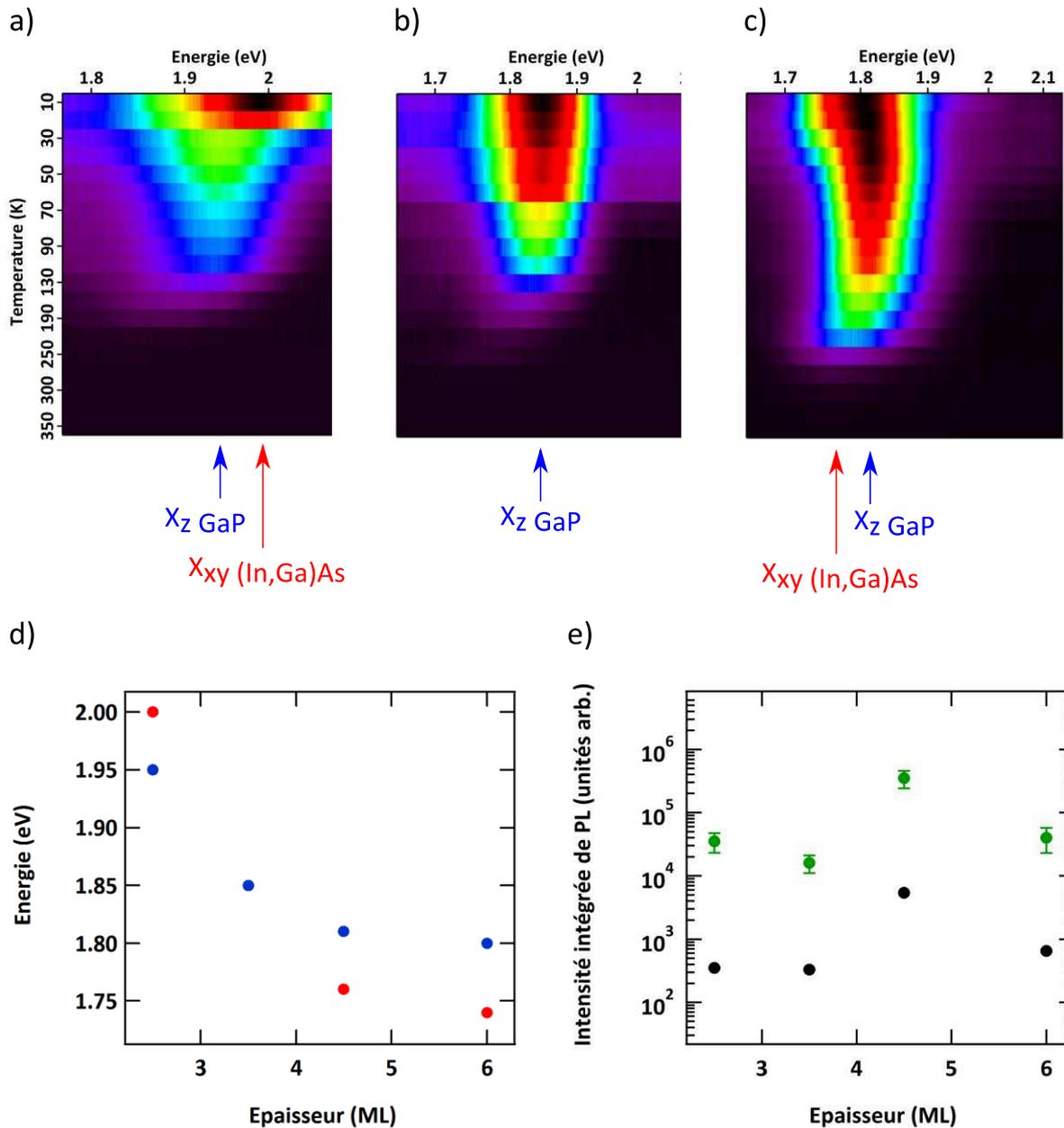


Fig. 3.22 Intensité de photoluminescence en fonction de l'énergie et de la température pour trois épaisseurs d'(In,Ga)As déposé : a) 2,5 ML (S1813), b) 3,5 ML (S1815) et c) 4,5 ML (S1817). d) Evolution de l'énergie à 10 K des transitions  $X_{XY \text{ (In,Ga)As}}$  (en rouge) et  $X_{Z \text{ GaP}}$  (en bleu) en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée et e) intensité intégrée de PL à 10 K (en vert) et 300 K (en noir). Les échantillons présentés sont des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisés à 500 °C.

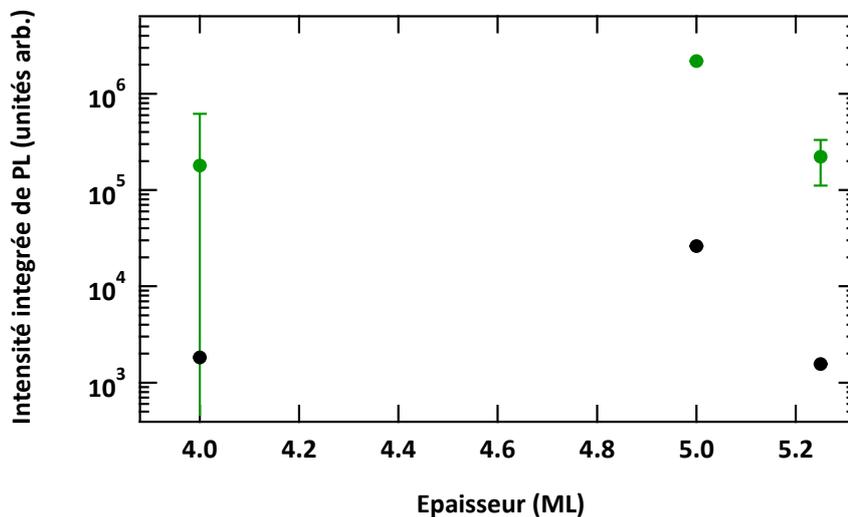
On peut ainsi normaliser les spectres par la formule :

$$I_{10K \text{ corr}}(\lambda) = I_{10K_T}(\lambda) \frac{I_{300K_{RT}}}{I_{300K_T}} \quad (3.15)$$

Où  $I_{300K_T}$  et  $I_{300K_{RT}}$  sont les intensités intégrées à 300 K mesurées dans le montage cryogénique et le montage à température ambiante respectivement.  $I_{10K \text{ corr}}(\lambda)$  et

$I_{10K_T}(\lambda)$  sont respectivement les spectres à 10 K corrigés et mesurés directement. Les barres d'erreurs sont calculées à partir du niveau de bruit de chaque spectre de PL. A 10 K et 300 K, la PL augmente avec le nombre de MLs déposées jusqu'à un maximum, ici obtenu pour 4.5 ML, puis diminue. La diminution de la PL est due l'apparition de dislocations au sein des QDs [42].

On obtient le même type de comportement pour les QDs (In,Ga)As/GaP avec 10 % d'In (Fig. 3.23). Pour 10 % d'In, le maximum de PL intégrée est obtenu pour 5 ML. La diminution de l'épaisseur pour laquelle la PL intégrée est optimale : 5 ML (10 % d'In) à 4,5 ML (35 % d'In) est liée à la hausse de la contrainte induite par l'incorporation d'In dans le système comme en témoigne la baisse de l'épaisseur estimée de la WL de 3,3 ML à 1,7 ML. En effet, le désaccord de maille augmente de 4,5 % à 6,3 % pour une modification du pourcentage d'In de 10 % à 35 %. Le comportement identifié sur la PL en fonction de l'épaisseur déposée est aussi observé pour des QDs (In,Ga)As/GaAs/GaP avec 45% d'In [30] et même dans d'autres systèmes de QDs comme GaAs/GaP [33] et InAs/GaAs [26]. L'efficacité de PL est donc plus grande quand la transition la plus basse est  $X_{xy}$  (In,Ga)As ce qui est une différence notable avec les prévisions de la partie 3.2.2.



**Fig. 3.23** Intensité de PL intégrée à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) correspondant à des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 10 % d'In réalisés à 500 °C pour différentes épaisseurs d'(In,Ga)As déposées : 4 ML (S1773), 5 ML (S1777) et 6 ML (S1794).

Des caractéristiques semblables sont observées au niveau de l'évolution en température de la PL des échantillons à 35 % d'In dont le (Tab. 3.7) donne les paramètres d'ajustement à la loi d'Arrhenius. Pour l'énergie d'activation  $E_{a2}$  de la transition  $X_{z \text{ GaP}}$ , on

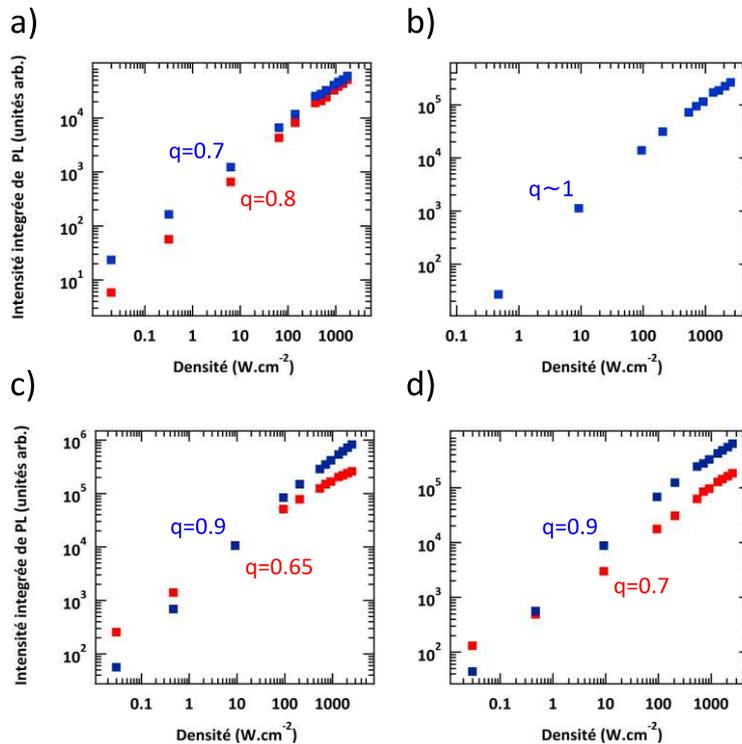
observe également une hausse de 80 à 340 meV jusqu'à 4,5 ML, puis une baisse vers 220 meV à 6 ML. La baisse de  $E_{a2}$  est probablement liée à la présence de dislocations qui permettent un échappement des porteurs. Aucun changement n'est observé pour l'énergie d'activation  $E_{a1}$  de la transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As car la différence de 10 meV n'est pas significative comme discuté dans la partie 1.3. On n'observe donc aucun changement sur le confinement électronique malgré le croisement observé entre les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP. Un comportement similaire pouvait être observé sur les énergies d'activations caractéristiques des QDs (In,Ga)As/GaP avec 10 % d'In (Tab. 3.5). L'épaisseur déposée a donc eu une influence importante sur l'énergie d'activation caractéristique de  $X_z$  GaP mais pas sur celle de  $X_{xy}$  (In,Ga)As.

Epaisseur d'(In,Ga)As (ML)	Echantillon	$X_{xy}$ (In,Ga)As		$X_z$ GaP	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
2,5	S1813	40	10	2E+03	80
3,5	S1815	24	20	2E+05	150
4,5	S1817	4,5	10	3,5E+07	340
6	S1861	4,5	5	6E+05	220

**Tab. 3.7** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C.

Evaluons à présent l'impact du nombre de ML déposée sur la (non)linéarité de la PL des QDs vis-à-vis de l'excitation optique. L'intensité intégrée en fonction de la densité d'excitation pour différentes épaisseurs d'(In,Ga)As déposée ainsi que les coefficients de linéarité extraits sont présentés dans la Fig. 3.24. Le comportement est sous-linéaire pour l'ensemble des transitions quel que soit l'épaisseur déposée. Cependant, on peut noter que le facteur de linéarité est toujours plus important pour la transition à plus haute énergie :  $X_{xy}$  (In,Ga)As pour 2,5 ML (Fig. 3.24a) et  $X_z$  GaP pour le reste. Le niveau à plus basse énergie sature donc plus vite indépendamment de la nature du niveau ( $X_z$  ou  $X_{xy}$ ) ce qui traduit un phénomène de thermalisation entre ces niveaux, qui ont tous les deux une durée de vie radiative très longue. Ce constat est aussi soutenu par le fait que la différence d'énergie entre les niveaux  $X_z$  et/ou  $X_{xy}$  obtenus par les calculs TB supercellules (discuté dans la partie 3.2.2) est très faible de l'ordre de quelques meV. Un croisement entre les deux transitions

est observé sur l'évolution de l'intensité intégrée de PL des transitions en fonction de la densité de puissance (sauf pour 3,5 ML d'épaisseur déposée, Fig. 3.24b). Il se produit à une densité de puissance supérieure à  $1747 \text{ W.cm}^{-2}$  pour 2,5 ML, à  $\sim 10 \text{ W.cm}^{-2}$  pour 4,5 ML et à  $\sim 0,5 \text{ W.cm}^{-2}$  pour 6ML.



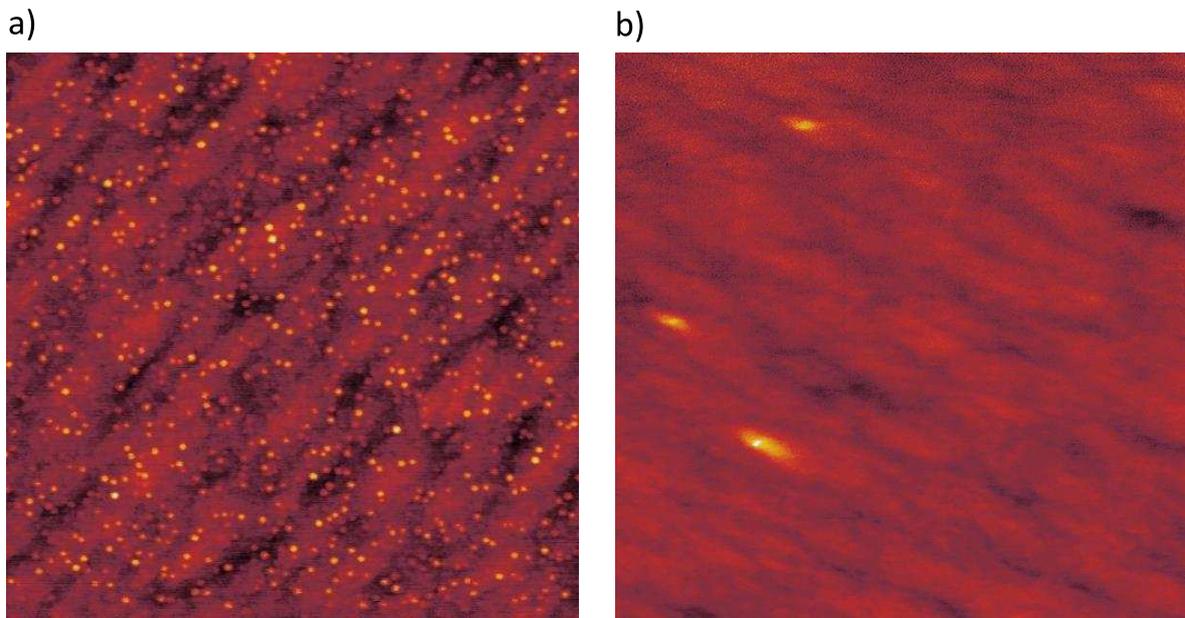
**Fig. 3.24** Evolution de l'intensité intégrée de PL des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As (en rouge) et  $X_z$  GaP (en bleu) en fonction de la densité d'excitation à 10 K pour différentes épaisseurs d'(In,Ga)As déposées : a) 2,5 ML (S1813), b) 3,5 ML (S1815), c) 4,5 ML (S1817), d) 6 ML (S1861). Les échantillons présentés sont des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisés à 500 °C.

Le croisement entre les transitions intervient donc pour des densités de puissances de plus en plus faible quand l'épaisseur d'(In,Ga)As augmente et doit être corrélé à l'inversion de la position énergétique de  $X_z$  GaP et  $X_{xy}$  (In,Ga)As. Il indique très probablement la plus grande densité d'état de  $X_z$  GaP par rapport à  $X_{xy}$  (In,Ga)As. Après avoir discuté l'influence de l'épaisseur déposée sur le confinement quantique et son implication sur l'évolution des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As/ $X_z$  GaP, passons à l'étude de l'arrêt de croissance sous flux de P qu'il est indispensable d'effectuer avant de réaliser la couche de GaP supérieure.

### 3.3.2. Arrêt de croissance sous flux de P

La couche supérieure des échantillons pour la PL est du GaP. Après l'arrêt de croissance de 30 s sous flux d'As suite au dépôt de l'(In,Ga)As, un recuit sous flux de P est effectué

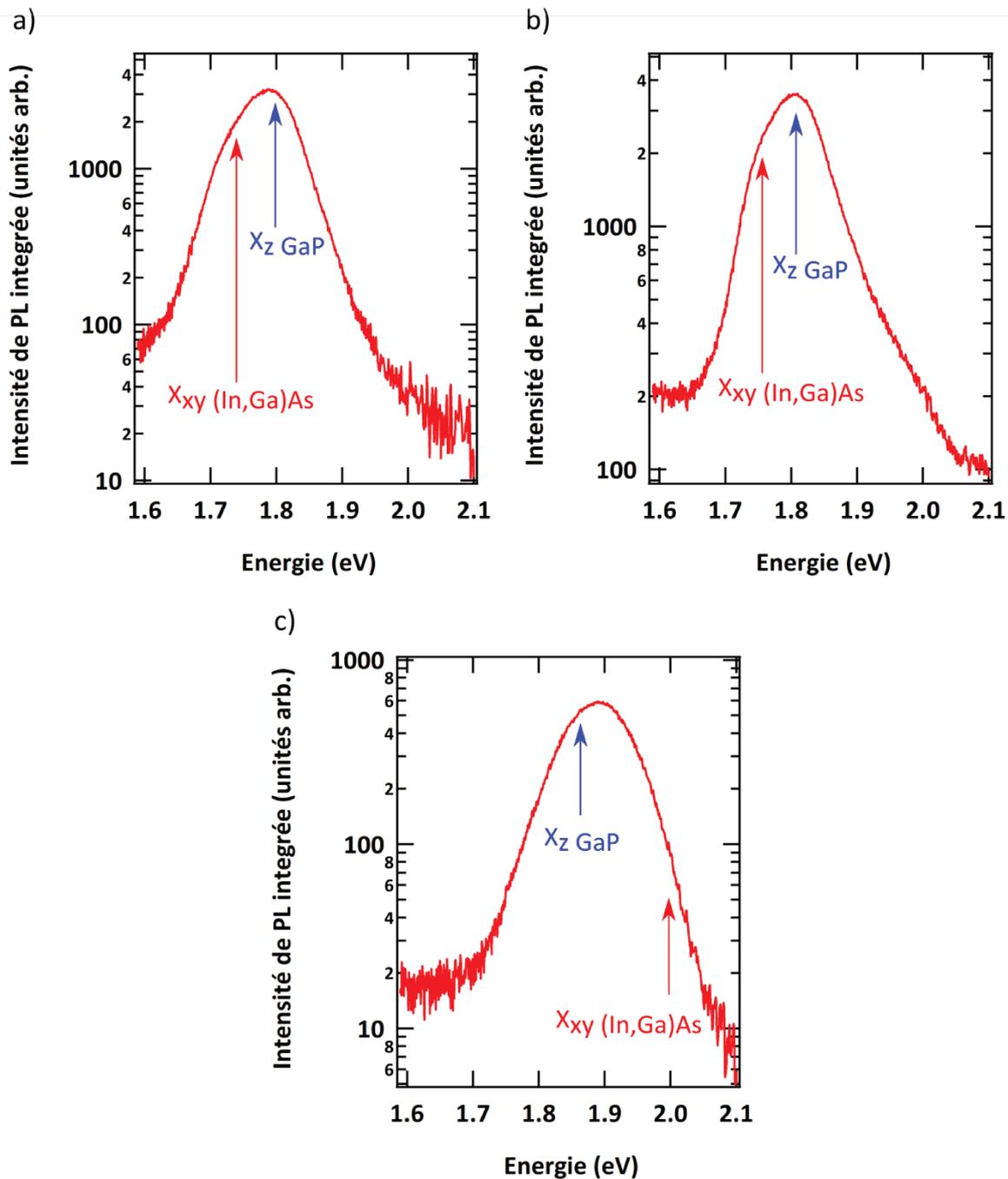
avant la croissance du GaP. Cette étape est nécessaire afin d'obtenir une encapsulation GaP de bonne qualité. Cependant, cet arrêt de croissance doit être le plus court possible afin de diminuer l'impact du phénomène d'échange As/P bien connu dans les QDs InAs/InP [43], [44]. Cette échange As/P va donc modifier la composition des QDs et diminuer leurs hauteurs [2] allant même jusqu'à leur disparition comme illustré dans la Fig. 3.25.



**Fig. 3.25** Images AFM  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  de QDs (In,Ga)As/GaP ayant subi un arrêt de croissance sous flux de P de a) 0 s (S1877) et de 30 s (S1858) à flux de P constant. L'épaisseur déposée est 2.5 ML, le pourcentage d'In est 35 % et la température de croissance est 500 °C.

La durée de l'arrêt de croissance sous flux de P va modifier la hauteur des QDs (In,Ga)As/GaP et donc le confinement quantique comme discuté dans la partie précédente. Les spectres de PL à 10 K pour différentes durées de recuit sous flux de P sont présentés au sein de la Fig. 3.26. Pour une durée d'arrêt de croissance sous flux de P de 6 s, l'ordre des transitions est modifié et la transition à plus faible énergie devient  $X_z$  GaP. Comme pour l'étude en fonction de l'épaisseur déposée, on observe encore un croisement type I/type II. Malgré la présence de ce croisement, la contribution minoritaire du signal de PL est la transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As.

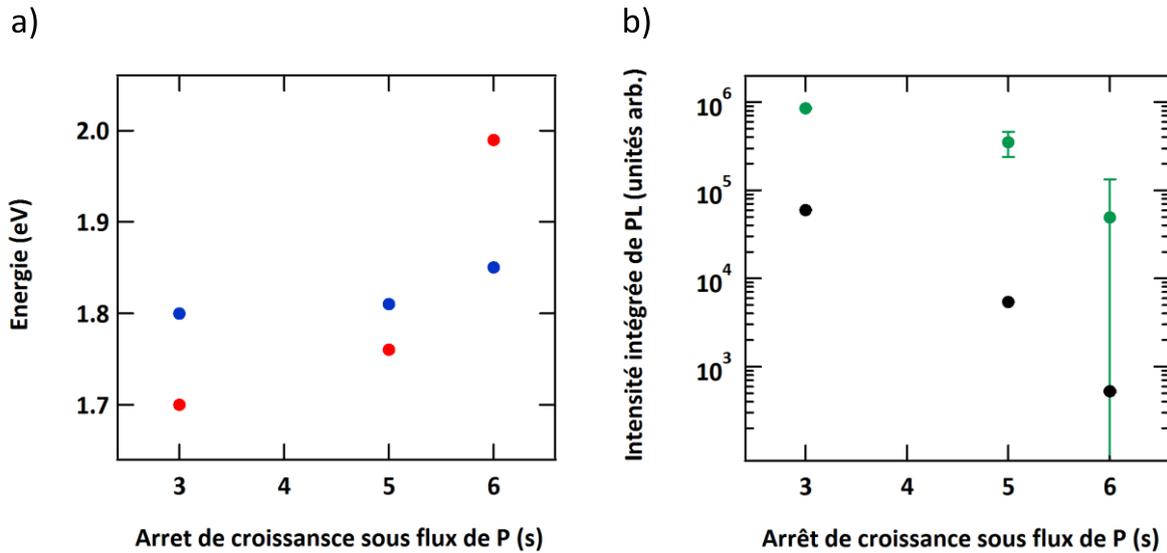
L'évolution de la position des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP en fonction de la durée de croissance sous flux de P est présentée en Fig. 3.27a. Quand la durée de l'arrêt de croissance sous flux de P augmente, les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP se décalent vers les hautes énergies.



**Fig. 3.26** Spectre de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP crus à 500°C avec une composition d'In de 35 % pour différents durées d'arrêt de croissance sous flux de P : a) 3 s (S1879), b) 5 s (S1817) et c) 6 s (S1880). La densité de puissance injectée est 207 W.cm<sup>-2</sup>.

L'évolution des transitions est liée à l'arrêt de croissance sous flux de P par la modification de la composition et de la hauteur des QDs (In,Ga)As/GaP. En effet, la modification du confinement entraînée par la diminution de hauteur des QDs (In,Ga)As/GaP explique les observations sur la position en énergie des transitions. Quant au changement de composition des QDs, il peut expliquer la différence de comportement entre les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP pour des durées de recuit sous flux de P inférieures à 5 s. En accord avec

les mesures AFM réalisées en fonction de l'épaisseur déposée, on peut estimer que la hauteur des QDs pour un arrêt de croissance de 6 s est inférieure à  $5,5 \pm 1,3$  nm pour les grosses QDs et  $1,9 \pm 0,7$  nm pour les petites QDs et ainsi estimer une réduction de hauteur de l'ordre de 0.4 nm/s. Cette valeur est du même ordre de grandeur de celle que l'on peut estimer à partir de [44] dans le cas des QDs InAs/InP.



**Fig. 3.27 a) Evolution de l'énergie à 10K des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As (en rouge) et  $X_z$  GaP (en bleu) en fonction de la durée d'arrêt de croissance sous flux de P et b) intensité intégrée correspondant à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) pour des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C. L'épaisseur déposée est 4.5 ML. Les échantillons correspondant sont S1879 (3 s), S1817 (5 s), S1880 (6 s).**

De cette façon, on estime la hauteur des QDs de l'échantillon ayant subi 3 s d'arrêt de croissance sous P à 7,7 nm et 1,6 nm pour les grosses et petites QDs respectivement. On obtient aussi 6,9 et 0,8 nm pour la hauteur des grosses et petites QDs de l'échantillon ayant subi 5 s d'arrêt de croissance sous flux de P. Comme observé en fonction de l'épaisseur déposée, la transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As, semble plus sensible à la variation de hauteur et la modification de contrainte qui en résulte que la transition  $X_z$  GaP. Pour ce qui est de l'intensité intégrée à 10 K et 300 K (Fig. 3.27b), elle diminue avec la durée de l'arrêt de croissance sous P et donc avec la hauteur des QDs. Ce résultat est à mettre en lien avec l'influence de l'épaisseur déposée (partie 3.3.1). En effet, les tendances observées sur l'énergie des transitions et l'intensité de PL sont corrélées car la hauteur des QDs augmente avec l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée et diminue avec l'arrêt de croissance sous flux de P.

Il en est de même pour les énergies d'activations caractéristiques des transitions (Tab. 3.8). Une absence de variation de  $E_{a1}$  en fonction de l'arrêt de croissance est observée. Pour ce qui est de  $E_{a2}$ , elle diminue d'une part pour une augmentation de la durée de croissance de 5 s à 6 s (diminution de la hauteur des QDs) et d'autre part pour une diminution de 5 s à 3 s (augmentation de la hauteur des QDs) malgré la hausse de PL ce qui n'est pas en accord avec la tendance observée en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée. En effet, la hausse de la PL en fonction de l'épaisseur déposée était corrélée avec une hausse de  $E_{a2}$  jusqu'à l'apparition de dislocations entraînant une baisse de PL et de  $E_{a2}$ .

Arrêt de croissance sous flux de P (s)	Echantillon	$X_{xy (In,Ga)As}$		$X_{z GaP}$	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
6	S1880	30	10	1E+06	220
5	S1817	4,5	10	3,5E+07	340
3	S1879	20	10	6E+05	270

**Tab. 3.8 Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions  $X_{xy (In,Ga)As}$  et  $X_{z GaP}$  des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C en fonction de la durée de recuit sous flux de P.**

Cette augmentation de PL semble donc liée à l'augmentation de hauteur et à la modification de la composition des QDs malgré l'absence de variation sur le confinement électronique ( $E_{a1}$ ) et la diminution contre-intuitive de  $E_{a2}$  vis à vis du renforcement de la transition  $X_{z GaP}$  lié à la hausse de hauteurs des QDs (partie 3.2.2).

La hauteur des QDs, contrôlée soit par la quantité d'(In,Ga)As déposée, soit par la durée de l'arrêt de croissance sous flux de phosphore des QDs est un paramètre clé dont l'influence considérable sur le confinement quantique provoque la modification de la nature de la transition optique de plus basse énergie. Ce croisement des niveaux  $X_{xy (In,Ga)As}$  et  $X_{z GaP}$  est donc une transition type II/type I, mais qui reste malgré tout de type indirect. De plus, l'abaissement de l'état  $X_{xy (In,Ga)As}$  peut également être un indicateur de l'abaissement de la bande  $\Gamma$  de la QD.

### 3.4. Composition des QDs (In,Ga)As/GaP

La manière la plus intuitive de modifier la composition des QDs (In,Ga)As/GaP est de changer la composition en In. Une variation de son incorporation va modifier la structure

électronique des QDs par la modification des contraintes et par une réduction attendue de la bande interdite comme discuté dans la partie 3.2.2. On s'attend aussi à une influence sur l'efficacité de PL par une augmentation du recouvrement des fonctions d'ondes induite par la modification de la localisation des porteurs.

### 3.4.1. Composition d'In des QDs (In,Ga)As/GaP

La composition réelle d'In dépend de plusieurs paramètres comme la désorption et la ségrégation d'In [24] ou encore la modification des énergies de surface et des contraintes [45]. La distribution d'In n'est donc pas homogène au sein de la QD [16], [24]. L'obtention de la composition d'In effective n'est donc pas un problème simple et nécessite des études spécifiques comme celles réalisées dans [46] afin de la déterminer. La composition effective d'In peut donc être différente du pourcentage nominal qui correspond au pourcentage visé globalement pendant la croissance. L'un des paramètres qui influe sur la composition d'In des QDs est la température de croissance. En effet, au-delà d'une certaine température, la désorption d'In tend à diminuer la composition en In des échantillons. Ce phénomène se produit pour des températures de croissances supérieures à 520 °C. Cependant, Lee et al. [47] ont mesuré un pourcentage d'In non nul lors de la croissance d'(In,Ga)As sur un substrat GaAs partiellement masqué à 595 °C. L'étude a principalement été effectuée à 500 °C pour différentes compositions d'In. A cette température, on estime que le coefficient de collage d'In est de 100 %. Un échantillon supplémentaire (S1562), crû à 550 °C dont la composition d'In nominale est de 30 %, a été réalisé afin de discuter l'influence de la température de croissance sur la composition d'In et sur les propriétés électroniques et optiques des QDs. La composition effective d'In de cet échantillon est estimée à 10-15% [17]. Les spectres de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP avec une composition nominale d'In de 10 , 25 et 35 % sont présentés dans la Fig. 3.28. Pour 10 % d'In à 550 °C (Fig. 3.28a), les deux contributions  $X_{xy (In,Ga)As}$  et  $X_{z GaP}$  sont séparées spectralement de 0.1 eV ce qui n'est pas le cas pour les autres échantillons. De plus, une modification de l'ordre des transitions est observée. La transition à plus faible énergie est la transition  $X_{z GaP}$  pour 10 % d'In à 550 °C et est  $X_{xy (In,Ga)As}$  pour le reste des échantillons. La séparation spectrale ainsi que l'ordre des transitions obtenus pour 10 % d'In à 550 °C est en accord avec la simulation réalisée dans le cas de QDs GaAs/GaP (partie 3.2.2) et tend à montrer qu'il y a bien désorption d'In à 550° C.

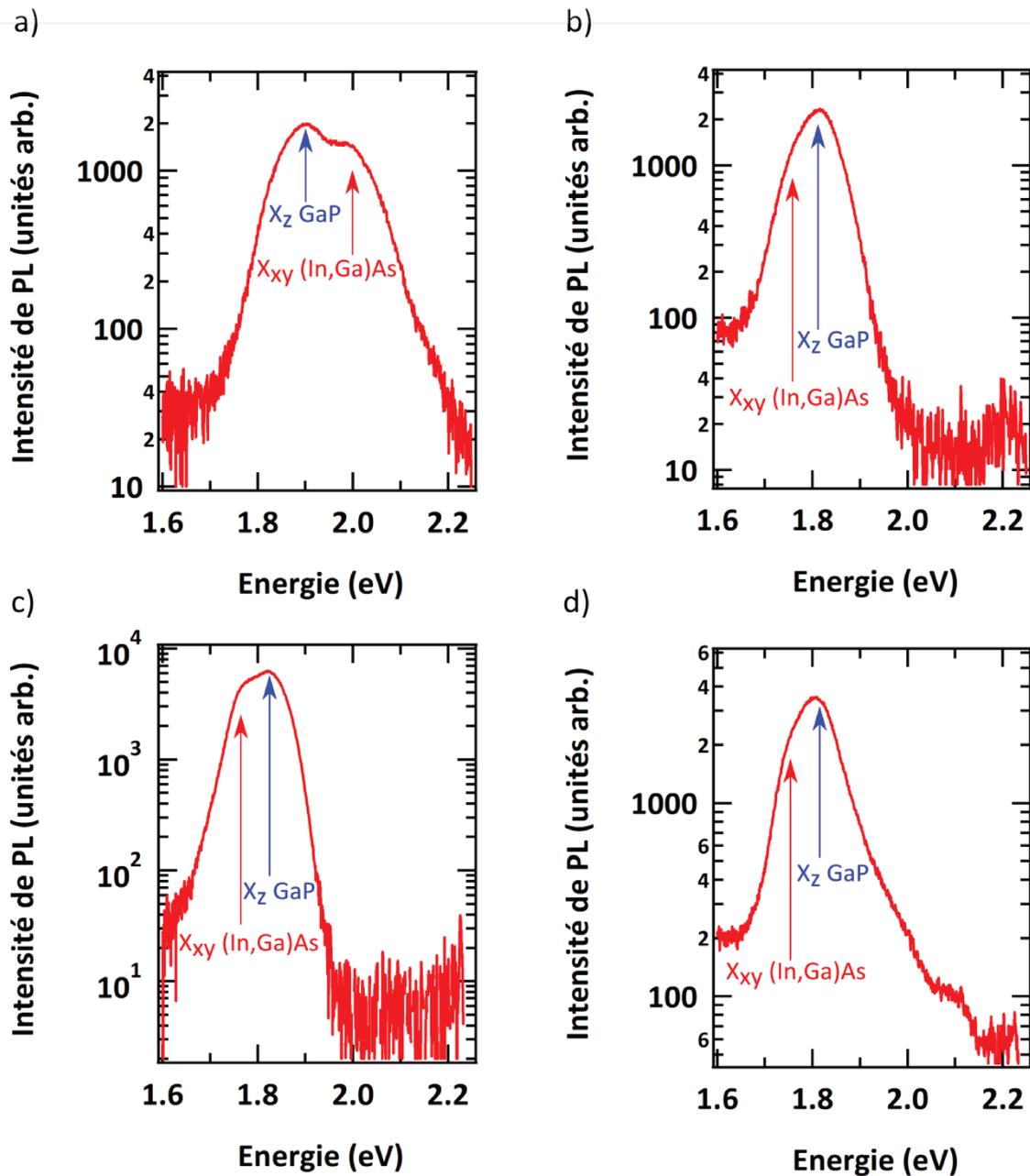
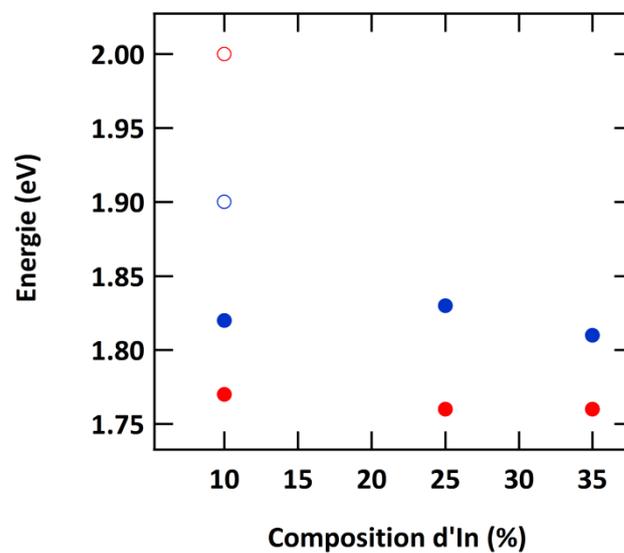


Fig. 3.28 Spectre de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP crus à 550 °C avec a) une composition nominale de 30 % mais une composition effective estimée à 10-15 % [17] et à 500 °C avec une composition nominale d'In de b) 10, c) 25 et d) 35 %. La densité de puissance injectée est 207 W.cm<sup>-2</sup>.

Une comparaison de l'énergie des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP réalisées à 500 °C avec une composition nominale d'In de 10, 25 et 35 % est présentée en Fig. 3.29. Les QDs (In,Ga)As/GaP avec 50 % d'In ne sont pas représentés au sein de cette figure car ces échantillons ne présentent pas de PL à 300 K au contraire des QDs réalisés sur 2,2 ML de GaAs [30]. Cette différence vient sûrement de la modification des contraintes par l'ajout de GaAs avant la croissance des QDs. Les

échantillons présentés correspondent aux échantillons ayant le plus de PL en fonction de l'épaisseur déposée pour chaque pourcentage d'In. On remarque que les énergies d'émission de l'échantillon réalisé à 550 °C sont sensiblement plus grandes pour les deux transitions que pour les autres échantillons. Au-delà des différences morphologiques avec les autres QDs, cela s'explique aussi par le fait que la composition effective d'In de 10 % affichée à 550 °C est probablement surestimée, ou que la température de croissance modifie sensiblement la distribution d'In dans les QDs. De plus, pour cet échantillon, la transition à plus basse énergie est la transition  $X_{z \text{ GaP}}$ .

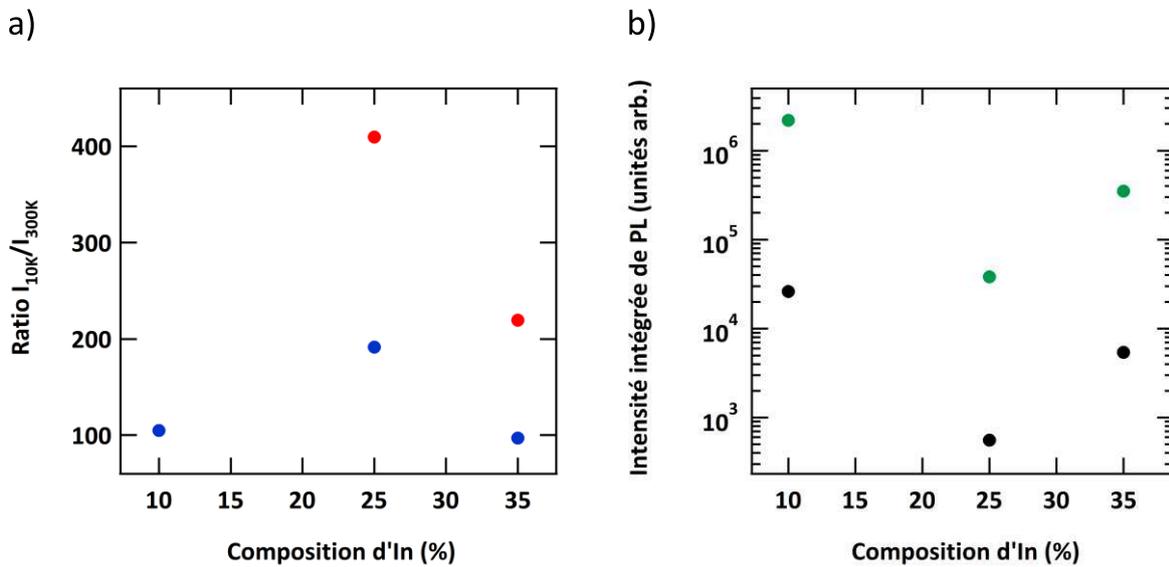


**Fig. 3.29** Evolution de l'énergie à 10 K des transitions  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  (en rouge) et  $X_{z \text{ GaP}}$  (en bleu) en fonction du pourcentage d'In pour des QDs (In,Ga)As/GaP réalisées à 500 °C. Les échantillons correspondants sont S1777 (10 %), S1787 (25 %) et S1817 (35 %). L'échantillon S1562 (marqueur vide) a été ajouté afin de discuter l'influence de la température de croissance. Cet échantillon a été réalisé à 550 °C avec un pourcentage d'In nominale de 30 %. La composition effective d'In est estimée au maximum à 15 % [17] et est placé à 10 % par simplicité.

Pour les QDs avec 10, 25 et 35 % réalisées à 500 °C, la transition la plus basse est la  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ . Cela vient encore appuyer ces discussions. La température de croissance a donc un impact fort sur la composition et la distribution d'In dans les QDs si elle dépasse la température de désorption d'In [26]. En ce qui concerne les échantillons réalisés à une température de 500 °C, seule une légère diminution de l'énergie des transitions  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  et  $X_{z \text{ GaP}}$  est observée en fonction du pourcentage d'In (si on exclut la valeur de la transition  $X_{z \text{ GaP}}$  pour 25 %). Cette diminution est largement inférieure à celle attendue théoriquement par la modification de la bande interdite pour une variation de 10 % à 35 % d'In qui est de

l'ordre de 0,34 eV [48]. Dans cette étude, le choix a été fait de représenter les échantillons les plus radiatifs pour un pourcentage d'In donné : 5 ML pour 10 % et 25 % et 4,5 ML pour 35 % (partie 3.3.1). Une comparaison à épaisseur équivalente, ici 5 ML, entrainerait une diminution de l'énergie des transitions  $X_{xy}$   $(\text{In,Ga})\text{As}$  et  $X_z$   $\text{GaP}$  de l'échantillon à 35 % d'In en accord avec l'augmentation du confinement quantique mais la diminution resterait toujours faible vis-à-vis des 0,34 eV attendus [48].

L'influence du pourcentage d'In sur l'intensité intégrée des transitions  $X_{xy}$   $(\text{In,Ga})\text{As}$  et  $X_z$   $\text{GaP}$  est présentée dans la Fig. 3.30. Pour 10 % d'In, on n'observe pas de PL à 300 K pour la transition  $X_{xy}$   $(\text{In,Ga})\text{As}$  ce qui n'est pas le cas pour les autres pourcentages d'In, au contraire ce ratio diminue avec le pourcentage d'In.



**Fig. 3.30 a) Rapports d'intensités intégrées entre 10 et 300 K des transitions  $X_{xy}$   $(\text{In,Ga})\text{As}$  (en rouge) et  $X_z$   $\text{GaP}$  (en bleu) et b) intensité intégrée correspondante à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) des échantillons de QDs  $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$  en fonction du pourcentage d'In. Les échantillons correspondants sont S1777 (10 %), S1787 (25 %) et S1817 (35 %).**

La transition  $X_{xy}$   $(\text{In,Ga})\text{As}$  se stabilise en température mais sans effet sur  $E_{a1}$  (Tab. 3.9). Le ratio  $\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  pour la transition  $X_z$   $\text{GaP}$  varie peu excepté pour 25 % d'In qui peut s'expliquer une qualité structurale moindre que les autres échantillons comme en témoigne l'optimum de PL à 5 ML malgré un désaccord de maille plus important que pour 10 % d'In et la baisse de PL significative (Fig. 3.30b) par rapport aux deux autres échantillons en accord avec la baisse de  $E_{a2}$  (Tab. 3.9). L'intensité intégrée à 10 K et 300 K de l'échantillon contenant 10 % d'In est supérieure à celui contenant 35 % d'In malgré l'absence de transition  $X_{xy}$   $(\text{In,Ga})\text{As}$  à 300

K. Cette différence souligne que la modification attendue de l'efficacité de PL par l'intermédiaire du recouvrement des fonctions d'ondes par la hausse du pourcentage d'In n'est donc pas observée. Cependant, c'est bien 35 % d'In qui semble le plus prometteur avec la stabilisation en température et la diminution en énergie souhaitée de la transition  $X_{xy}$   $_{(In,Ga)As}$  et donc peut être de  $\Gamma$  (partie 3.2.4).

Composition d'In nominale (%)	Echantillon	$X_{xy} \text{ }_{(In,Ga)As}$		$X_z \text{ }_{GaP}$	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
10	S1777	30	10	4,6E+07	355
25	S1787	70	10	3,5E+06	250
35	S1817	4,5	10	3,5E+07	340

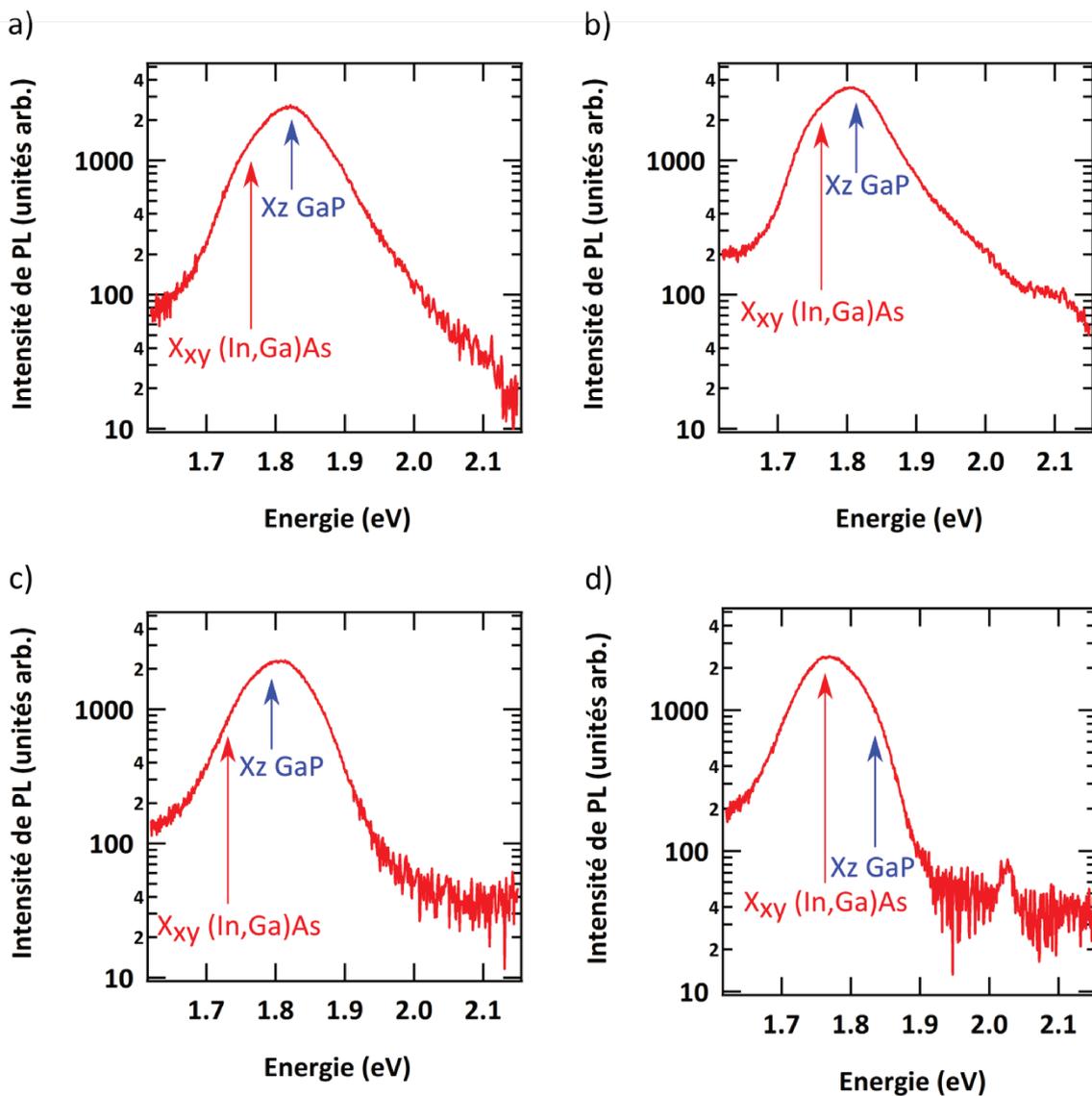
**Tab. 3.9** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions  $X_{xy} \text{ }_{(In,Ga)As}$  et  $X_z \text{ }_{GaP}$  des QDs (In,Ga)As/GaP à 500 °C en fonction du pourcentage d'In.

La quantité nominale d'In ne semble donc pas être un paramètre très pertinent pour améliorer les propriétés d'émission de nos QDs (In,Ga)As/GaP car il influe peu sur l'énergie d'émission (Fig. 3.30a). On peut donc s'interroger sur la distribution d'In et l'augmentation effective de la composition d'In des QDs malgré la hausse du pourcentage nominal et le choix de la température de croissance afin de réduire l'effet de la désorption d'In. Après avoir montré le peu d'influence de la composition nominale d'In sur les propriétés électroniques et optiques des QDs (In,Ga)As/GaP, passons à l'étude d'un autre paramètre crucial qui est le rapport V/III .

### 3.4.2. Rapport V/III

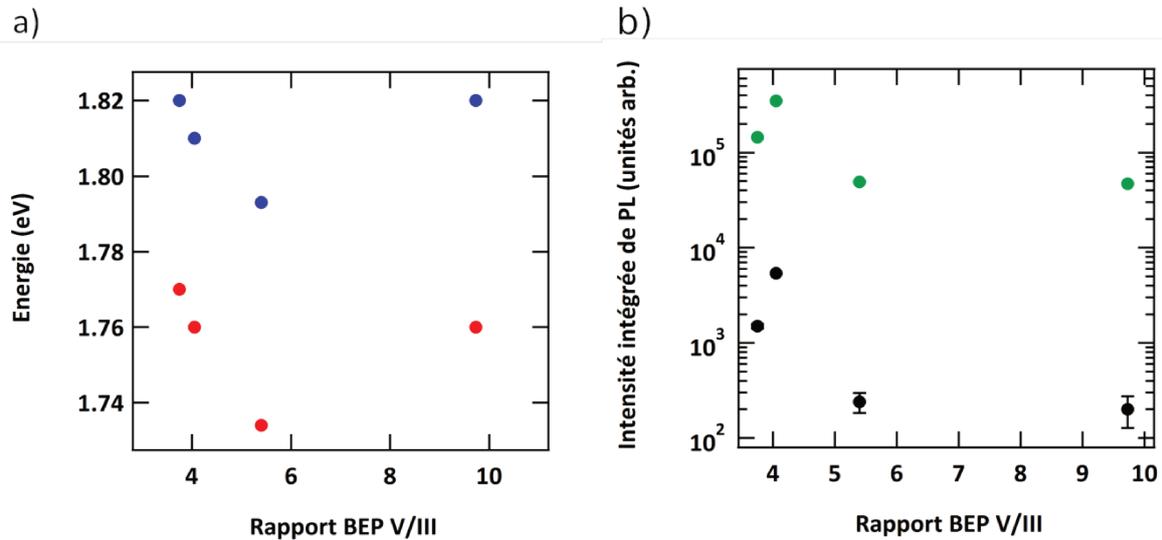
Le rapport de BEP V/III correspond au rapport de la pression équivalente en éléments V sur celle en éléments III, mesurées avec la jauge « Flux » du bâti d'épitaxie. Dans la suite, on utilisera abusivement le mot « flux » à la place des pressions équivalentes. Ici, le rapport correspond au flux d'As divisé par la somme des flux d'In et de Ga lors de la croissance des QDs. Le flux d'As varie de  $7 \times 10^{-7}$  à  $1,8 \times 10^{-6}$  Torr à vitesse de croissance constante (0.1 ML/s) afin d'obtenir une gamme de rapport BEP V/III de 3,8 à 9,7. Le flux sélectionné est le même lors de l'arrêt de croissance sous flux d'As. Les spectres de PL à 10 K pour différents rapports V/III sont présentés dans la Fig. 3.31. La contribution majoritaire dans le spectre de

PL est la transition  $X_z$  GaP sauf pour le spectre correspondant au rapport V/III de 9,7 (Fig. 3.31d) où la transition majoritaire est  $X_{xy}$  (In,Ga)As. Malgré cette différence, l'intensité de PL est comparable. On constate aussi que le spectre de PL se décale vers les basses énergies sur la gamme [3,8, 5,4] (Fig. 3.31a-Fig. 3.31c) puis vers les hautes énergies sur la gamme [5,4, 9,7] (Fig. 3.31c-Fig. 3.31d). Le rapport V/III apparaît plus pertinent que l'incorporation d'In afin de modifier la position énergétique des transitions  $X_z$  GaP et  $X_{xy}$  (In,Ga)As. L'évolution de l'énergie des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP en fonction du rapport V/III est présentée dans la Fig. 3.32a.



**Fig. 3.31** Spectre de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP crus à 500 °C avec une composition d'In de 35 % pour différents rapport V/III : a) 3,8 (S1825), b) 4,0 (S1817), c) 5,4 (S1823) et d) 9,7 (S1822). La densité de puissance injectée est 207 W.cm<sup>-2</sup>.

Comme observé sur les spectres de PL, l'énergie des transitions diminue de 1,77 à 1,734 eV pour  $X_{xy}$  (In,Ga)As et de 1,82 à 1,79 eV pour  $X_z$  GaP sur la plage [3,8, 5,4]. Sur le reste de la plage, l'énergie des transitions augmente de 1,734 à 1,76 eV pour  $X_{xy}$  (In,Ga)As et de 1,79 à 1,82 eV pour  $X_z$  GaP. Pour ce qui est de l'intensité intégrée à 10 et 300 K (Fig. 3.32b), l'importance des barres d'erreurs est liée à  $I_{300K_T}$  : plus elle est faible, plus la barre d'erreur sera importante et inversement.



**Fig. 3.32** a) Evolution de l'énergie à 10 K des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As (en rouge) et  $X_z$  GaP (en bleu) en fonction du rapport V/III et b) intensité intégrée correspondant à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) pour des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C. L'épaisseur déposée est 4.5 ML. Les échantillons correspondants sont S1825 (3,8), S1817 (4,0), S1823 (5,4) et S1822 (9,7).

Sur la gamme [4,0, 9,7], l'intensité intégrée à 10 K et 300 K diminue avec l'augmentation du rapport V/III et donc du flux d'As ce qui est bien en accord avec la diminution de l'énergie d'activation caractéristique  $E_{a2}$  de la transition  $X_z$  GaP (Tab. 3.10).

V/III	Echantillon	$X_{xy}$ (In,Ga)As		$X_z$ GaP	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
9,7	S1822	20	10	3E+05	160
5,4	S1823	20	10	1,2E+05	150
4,5	S1817	4,5	10	3,5E+07	340
3,8	S1825	10	10	1,8E+06	240

**Tab. 3.10** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500°C en fonction du rapport V/III.

Pour un rapport V/III de 3,8, l'intensité intégrée de PL à 10 K et 300 K est ici inférieure à l'intensité de l'échantillon correspondant à un rapport V/III de 4,05 cependant ce n'est pas toujours le cas. En effet, plusieurs échantillons ont été réalisés avec un flux d'As de  $7 \times 10^{-7}$  Torr (rapport V/III=3,8) et une forte disparité au niveau du signal de PL a été obtenue : intensité intégrée supérieure et inférieure à celle de l'échantillon correspondant à un rapport V/III de 4,05. Cette forte disparité s'explique par la difficulté de contrôler les faibles flux d'As avec notre cellule mais aussi car une croissance à faible flux d'éléments V et donc proche du régime de croissance riche éléments III a tendance à favoriser la croissance 2D et l'apparition de gouttes métalliques au détriment de la croissance 3D [50]–[52]. Les informations relatives à la hauteur, au rayon et à la densité des QDs sont extraits des échantillons S1826 (V/III= 4,0) et S1827 (V/III= 5,4) et sont présentées dans le tableau Tab. 3.11.

		V/III	4	5,4
		Echantillon	S1826	S1827
		Densité (cm <sup>-2</sup> )	1,4E+11	1,7E+11
Petites QDs	Hauteur (nm)		2,8 ± 1,1	2,7 ± 1,0
	Rayon (nm)		10,5 ± 2,9	9,3 ± 2,1
	Densité (cm <sup>-2</sup> )		1,2E+11	1,4E+11
Grosses QDs	Hauteur (nm)		8,9 ± 1,3	7,3 ± 1,4
	Rayon (nm)		18,9 ± 3,8	16,3 ± 2,3
	Densité (cm <sup>-2</sup> )		2E+10	3,40E+10

**Tab. 3.11 Dimensions des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C en fonction du rapport V/III. L'épaisseur d'(In,Ga)As déposée est 4.5 ML.**

Pour une augmentation du rapport V/III de 4,0 à 5,4, la densité des QDs augmente et les dimensions des QDs diminuent. Ce résultat est cohérent avec le fait qu'une augmentation du flux d'As va diminuer la longueur de diffusion des atomes et donc réduire la zone de collection des atomes pour former une QD [26]. Cependant, cette diminution de la hauteur des QDs et son implication sur l'énergie des transitions optiques n'est pas en accord avec les observations réalisées sur la plage [3,8, 5,4] mais l'est sur la plage [5,4, 9,7]. Dans notre cas, le décalage de comportement observé entre les données AFM et PL ne peuvent s'expliquer que par des mécanismes complexes lors de l'encapsulation des QDs par le GaP comme la ségrégation de l'In, l'échange As/P, la désorption d'As, le pourcentage d'incorporation d'As

dans le cap, etc. Chen *et al.* [52] observent quant à eux une augmentation des dimensions des QDs en fonction du flux d'As qui est contre-intuitif par rapport au fait que la pression des éléments V entrave la diffusion des éléments III en MBE. Ces résultats montrent que l'influence du flux d'As lors de la croissance des QDs ne fait pas consensus au sein de la communauté et les considérations qui en découlent sont au-delà du contexte de cette thèse et nécessiteraient des mesures d'imagerie par microscopie électronique en transmission afin de connaître avec précision la distribution et la position des atomes dans les QDs (In,Ga)As/GaP [24]. Travailler à un rapport V/III comme 5,40 implique une baisse significative des transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  mais un signal de PL faible. Au contraire, à plus faible rapport V/III (e.g. 3,8), le signal de PL est plus important mais avec des problèmes de reproductibilité et un décalage des transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  vers les hautes énergies. Dans la suite, nous travaillerons donc à un rapport V/III intermédiaire autour de 4.0 de façon à avoir un compromis entre signal de PL et position des transitions.

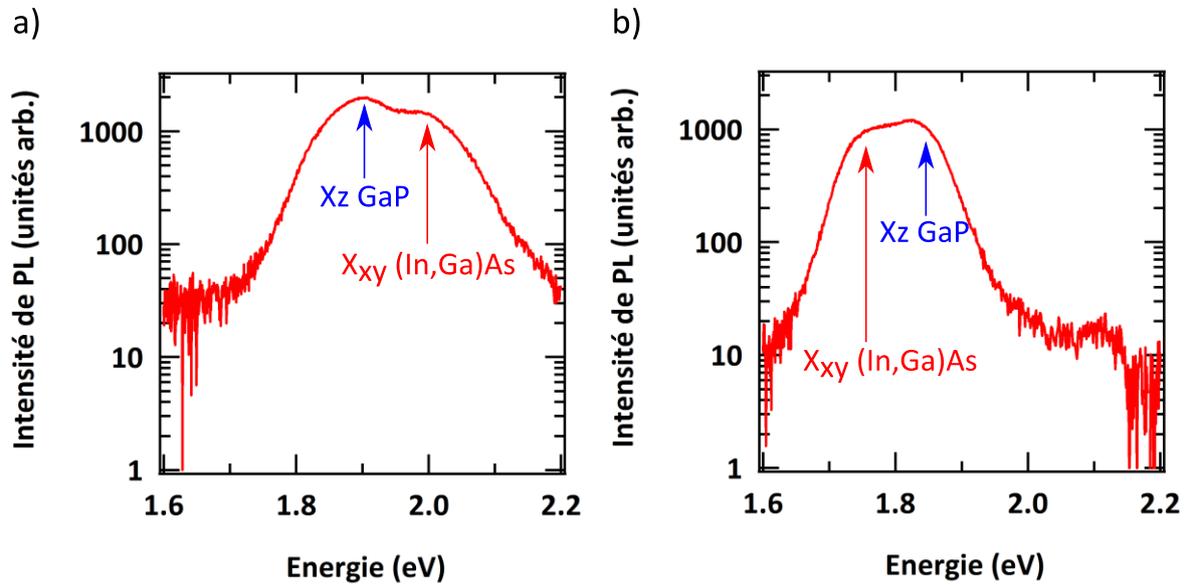
### 3.4.3. Arrêt de croissance sous flux d'As

Le recuit sous flux d'As est utilisé afin de faire mûrir les QDs [53], [54]. La difficulté est ici de maintenir un régime de relaxation élastique car une durée d'arrêt de croissance trop importante peut mener à une relaxation plastique des QDs, et donc à la création de dislocations [42]. L'augmentation du temps d'arrêt de croissance sous flux d'As favorise donc une hausse des dimensions liée une baisse en énergie des transitions associées à ces QDs mais aussi à une hausse de l'intensité de PL comme observé dans le cas des QDs InAs/GaAs [55]. L'influence de l'arrêt de croissance sous flux d'As dans notre système de QDs (In,Ga)As/GaP est, d'abord, présentée pour les QDs réalisées à 550 °C. Comme discuté dans la partie 3.4.1, cette température de croissance modifie la composition effective d'In qui est estimée au maximum à 10-15 % pour 30 % d'In nominal. Dans la suite, les QDs (In,Ga)As/GaP réalisées à 550 °C seront désignées par QDs avec une faible composition d'In au contraire des QDs réalisées à 500 °C qui seront désignées par QDs avec une forte composition d'In

#### 3.4.3.1. QDs avec une faible composition d'In

L'influence de l'arrêt de croissance sous flux d'As sur les spectres de PL des échantillons contenant des QDs avec une faible composition d'In est présentée dans la Fig. 3.33. On constate, tout d'abord, un croisement dans l'ordre des transitions. La transition à plus basse énergie est  $X_{z \text{ GaP}}$  pour 30 s (Fig. 3.33a) et est  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  pour 180 s (Fig. 3.33b)

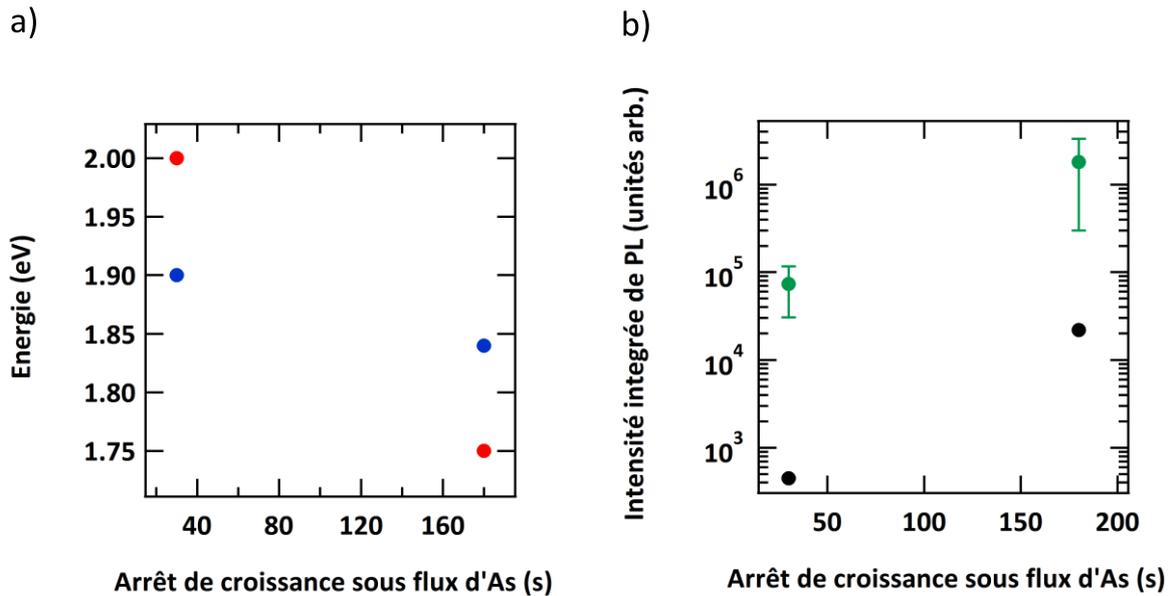
d'arrêt de croissance sous flux d'As. Ce croisement est aussi observé en fonction de l'épaisseur d'(In,Ga)As déposée (partie 3.3.1) et de l'arrêt de croissance sous flux de P (partie 3.3.2). Il est lié à une augmentation de la hauteur des QDs comme attendue par l'augmentation du temps d'arrêt de croissance sous flux d'As.



**Fig. 3.33** Spectre de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP crus à 550 °C pour différents temps de recuits sous flux d'As : a) 30 s (S1562) et b) 180 s (S1631). La composition nominale d'In est de 30 % mais la composition effective est estimée à 10-15 % [17]. La densité de puissance injectée est 207 W.cm<sup>-2</sup>.

La contribution majoritaire au signal de PL dans les deux spectres est  $X_{z \text{ GaP}}$  mais on peut constater que le recuit sous flux d'As a exalté la contribution de  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ .

Les deux transitions identifiées se sont aussi décalées vers les basses énergies ce qui s'explique par un changement du confinement quantique dans les QDs (Fig. 3.34a). Ce décalage vers les basses énergies est accompagné d'une augmentation de l'intensité intégrée de PL à 10 et 300 K (Fig. 3.34b).



**Fig. 3.34** a) Evolution de l'énergie à 10 K des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As (en rouge) et  $X_{z}$  GaP (en bleu) en fonction de l'arrêt de croissance sous flux d'As et b) intensité intégrée correspondante à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) pour des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 30 % d'In réalisées à 550 °C. L'épaisseur d'(In ,Ga)As déposée est de 3 ML. Les échantillons correspondants sont S1562 (30 s) et S1631 (180 s).

Cette augmentation est liée à une hausse de  $E_{a2}$  (Tab. 3.12) comme observée dans les différentes parties précédentes mais aussi à une augmentation de  $E_{a1}$  qui témoigne d'une modification du confinement électronique au sein des QDs (In,Ga)As/GaP.

Arrêt de croissance sous flux d'As (s)	Echantillon	$X_{xy}$ (In,Ga)As		$X_{z}$ GaP	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
30	S1562	20	10	1E+08	340
180	S1631	55	120	8E+09	460

**Tab. 3.12** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_{z}$  GaP des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 550 °C en fonction de la durée de recuit sous flux d'As.

Les deux comportements identifiés : décalage des transitions vers les basses énergies et hausse du signal de PL sont des comportements observés dans les QDs InAs/GaAs [55]. Après avoir discuté l'influence de l'arrêt de croissance sous flux d'As sur les QDs avec une faible composition d'In, passons aux QDs avec une haute composition d'In.

### 3.4.3.2. QDs avec une forte composition d'In

Les spectres de PL à 10 K de trois échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP réalisées à 500 °C sont comparés dans la Fig. 3.35. Les paramètres de croissance de ces échantillons sont identiques sauf le temps d'arrêt de croissance sous flux d'As : 180 s pour S1911 (Fig. 3.35a), 300 s pour S1909 (Fig. 3.35b) et 360 s pour S1908 (Fig. 3.35c). Ces échantillons sont seulement comparables entre eux car ils ont été réalisés sur des substrats de moins bonne qualité que le reste des échantillons de ce travail de thèse ce qui peut expliquer l'absence de transition  $X_{xy (In,Ga)As}$  sur le spectre à 10 K pour l'échantillon recuit 180s (Fig. 3.35a). Comme dans le cas de 3,5 ML d'(In,Ga)As déposées (partie 3.3.1), Il est fort possible que les transitions  $X_{xy (In,Ga)As}$  et  $X_{z GaP}$  soient au même niveau ou très proches ce qui se traduit par la présence d'une contribution à basse énergie et à haute énergie d'activation. Ici, la contribution majoritaire au signal de PL est  $X_{z GaP}$  et la contribution  $X_{xy (In,Ga)As}$  est exaltée en fonction de la durée de l'arrêt de croissance sous flux d'As, ce qui est une tendance similaire aux échantillons de QDs à faible composition d'In. Une différence notable est par contre le décalage vers les hautes énergies des transitions  $X_{xy (In,Ga)As}$  et  $X_{z GaP}$  pour une durée d'arrêt de croissance sous flux d'As supérieure à 300 s.

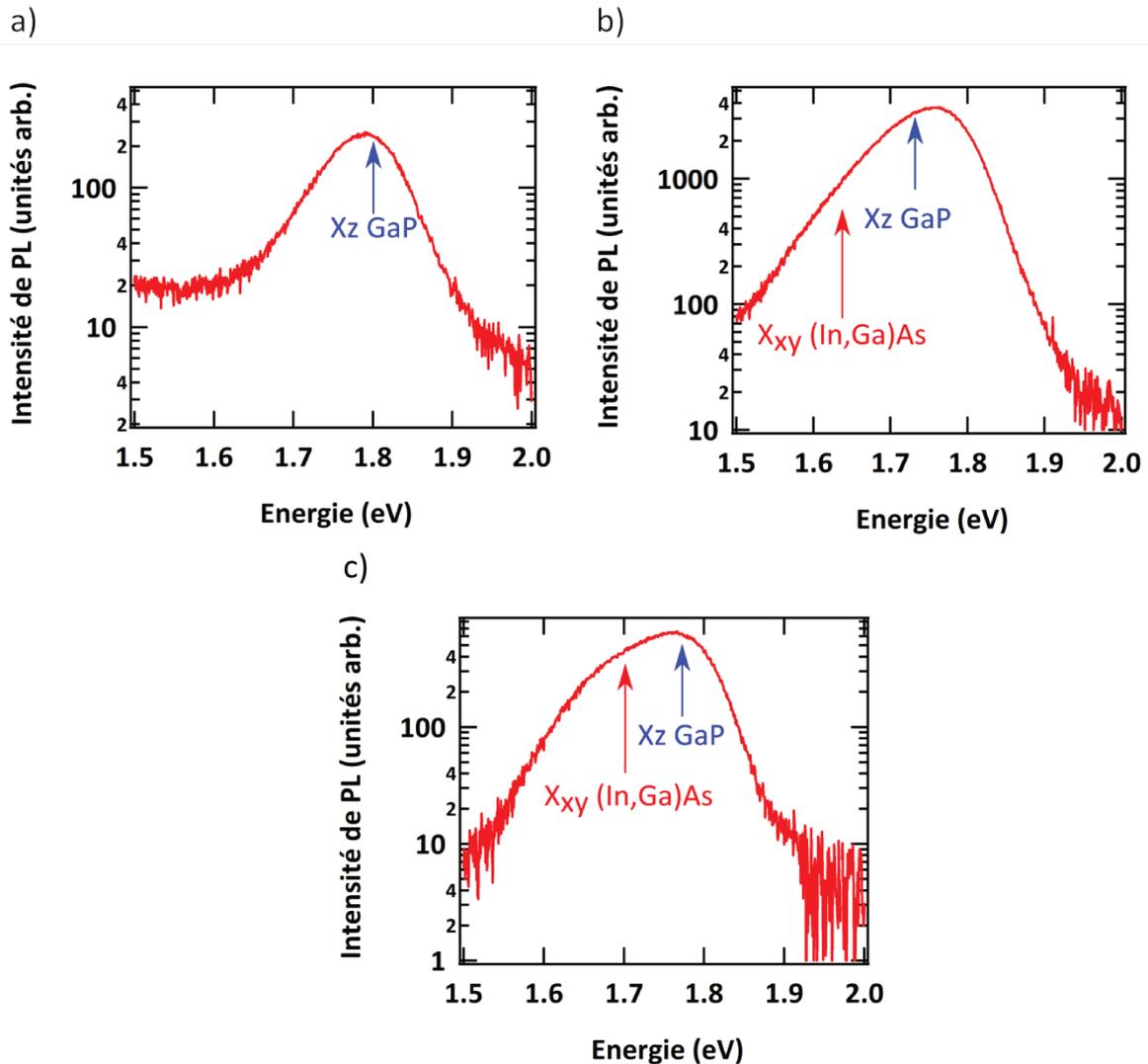
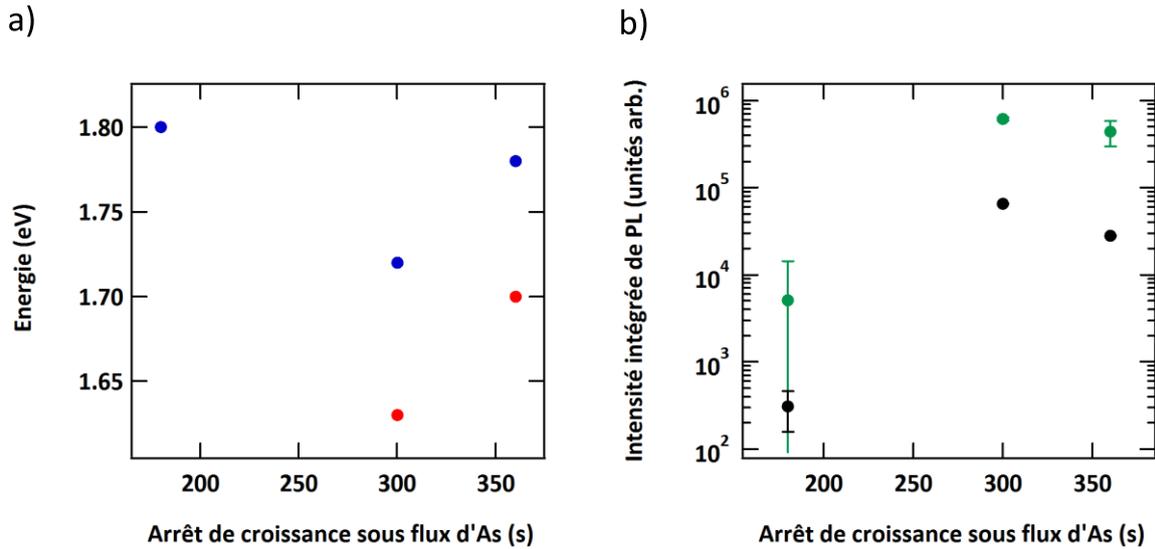


Fig. 3.35 Spectres de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP crus à 500 °C avec une composition d'In de 35 % pour différents temps de recuit sous flux d'As : a) 180 s (S1911), b) 300 s (S1909) et c) 360 s (S1908). Pour ces spectres, la densité de puissance injectée est  $207 \text{ W.cm}^{-2}$ .

L'énergie des transitions (Fig. 3.36a) diminue avec l'arrêt de croissance dans la gamme [180-300] s mais augmente pour un arrêt de croissance supérieur à 300 s. Ce comportement diffère de ce qui est observé de façon standard sur les systèmes conventionnels de QDs mais a aussi été montré par Stracke et al. [30] sur des QDs (In,Ga)As/GaP. Dans ces travaux, ce comportement atypique est évité par l'ajout de GaAs avant la couche supérieure de GaP.



**Fig. 3.36** a) Evolution de l'énergie à 10 K des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As (en rouge) et  $X_z$  GaP (en bleu) en fonction de l'arrêt de croissance sous flux d'As et b) intensité intégrée correspondante à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) pour des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C. L'épaisseur (In,Ga)As déposée est 4.5 ML. Les échantillons correspondants sont S1911 (180 s), S1909 (300 s) et S1908 (360 s).

L'évolution de l'intensité intégrée (Fig. 3.36b) est par ailleurs en accord avec les observations réalisées dans les autres systèmes de QDs. L'intensité intégrée augmente avec l'arrêt de croissance sous flux d'As jusqu'à la relaxation plastique et l'apparition de dislocations [42] qui agissent comme des centres de recombinaisons non-radiatifs faisant diminuer l'intensité intégrée. Cette augmentation d'intensité de la PL est corrélée aux augmentations de  $E_{a2}$  et  $E_{a1}$  (Tab. 3.13).

Arrêt de croissance sous flux d'As (s)	Echantillon	$X_{xy}$ (In,Ga)As		$X_z$ GaP	
		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
180	S1911	4	10	5,5E+03	120
300	S1909	2E+03	60	5,5E+08	470
360	S1908	10	10	2E+08	440

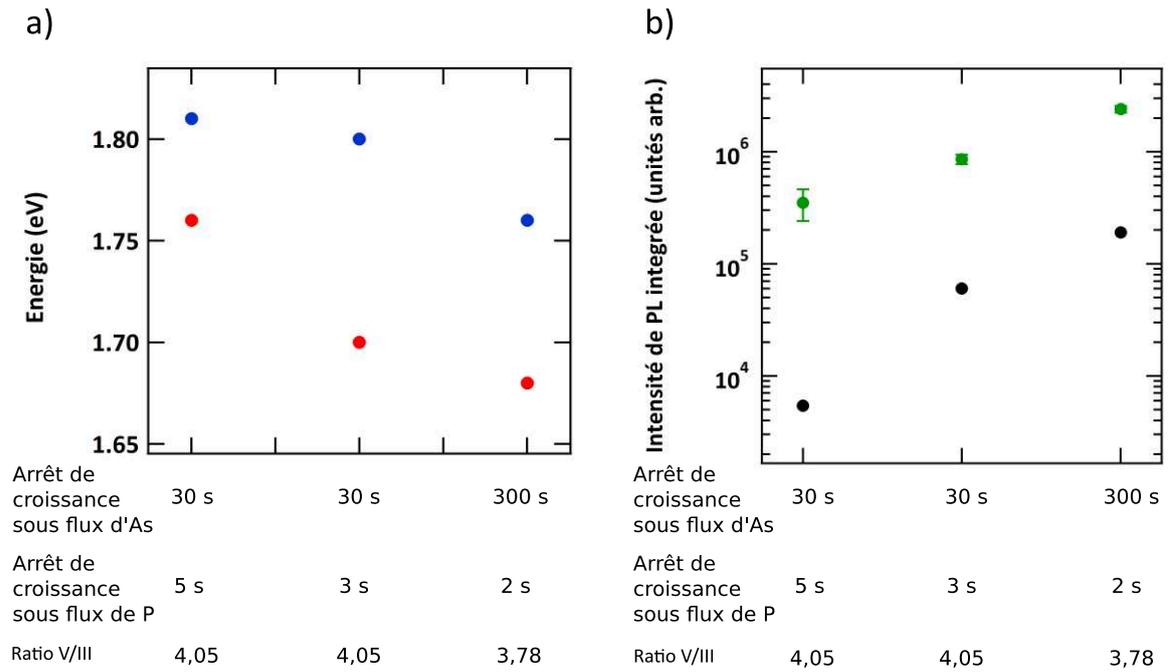
**Tab. 3.13** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C en fonction de la durée de recuit sous flux d'As.

Comme dans le cas des QDs avec une faible composition d'In, l'arrêt de croissance sous flux d'As a modifié le confinement électronique des QDs. Dans notre cas, la distribution d'In n'est pas homogène. L'arrêt de croissance sous flux d'As va augmenter la dimension des QDs

et ainsi modifier les contraintes du système favorisant la localisation de l'In au sommet de la QD. Cet effet est d'autant plus fort que la durée de l'arrêt de croissance sous flux d'As est importante. Lors de l'arrêt de croissance sous flux de P, l'In sera donc d'autant plus vulnérable à l'échange As/P. Cela explique l'augmentation de l'énergie des transitions optiques qui tendent vers le comportement de QDs GaAs/GaP. Cet effet peut être stoppé ou diminué par la modification de la couche supérieure lors de l'encapsulation par l'ajout de GaAs [30] pour les QDs (In,Ga)As/GaAs/GaP ou d'AlAs [56], [57], d'(In,Ga)As [58], d'(In,Al)As [58] pour les QDs InAs/GaAs. Malgré une hausse importante de la PL et un décalage des transitions vers les basses énergies en fonction de la durée de l'arrêt de croissance sous flux d'As, une transition directe n'est pas obtenue avant l'apparition des dislocations car l'efficacité de PL à 10 K n'est pas comparable à un échantillon présentant un système direct. L'apparition de dislocations pourrait être repoussée par exemple par l'utilisation d'un flux de Sb [55] lors de l'arrêt de croissance. Ce flux viendrait modifier les énergies de surface [59] et ainsi entraîner la formation de QDs avec des dimensions plus importantes.

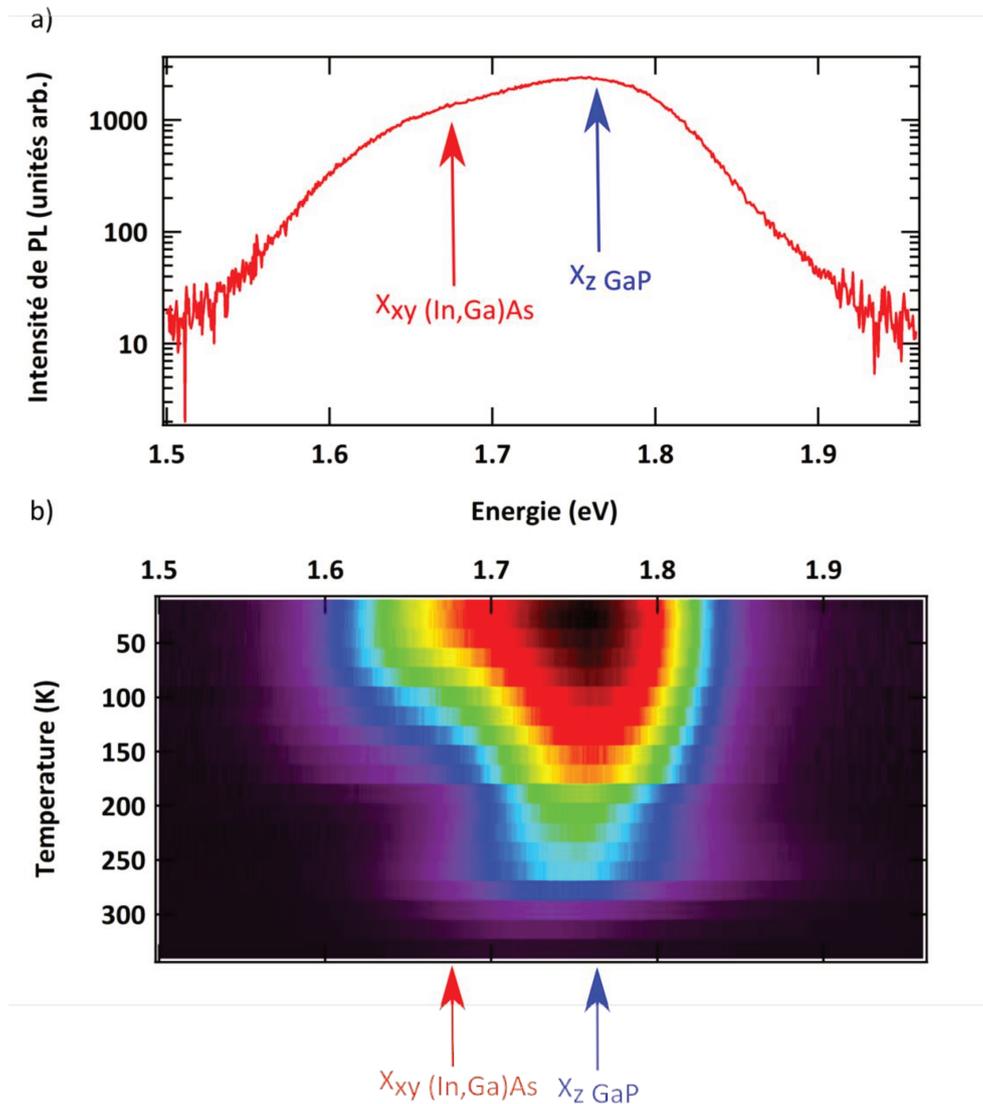
#### 3.4.4. Bilan sur l'optimisation d'un plan de QDs (In,Ga)As/GaP

Les études sur les paramètres suivants : épaisseur déposée, arrêt de croissance sous flux d'As et de P, composition d'In et rapport V/III ont permis de faire varier le confinement quantique et la composition des QDs afin de modifier la structure électronique des QDs avec pour but l'obtention d'une transition directe. Le bilan de ces études, résumé dans la Fig. 3.37, a permis une hausse significative de l'intensité de PL et une baisse de l'énergie des transitions sans toutefois réussir à obtenir une transition optique directe car l'efficacité de PL à 10 K n'est pas comparable à un échantillon présentant une structure de bande interdite direct.



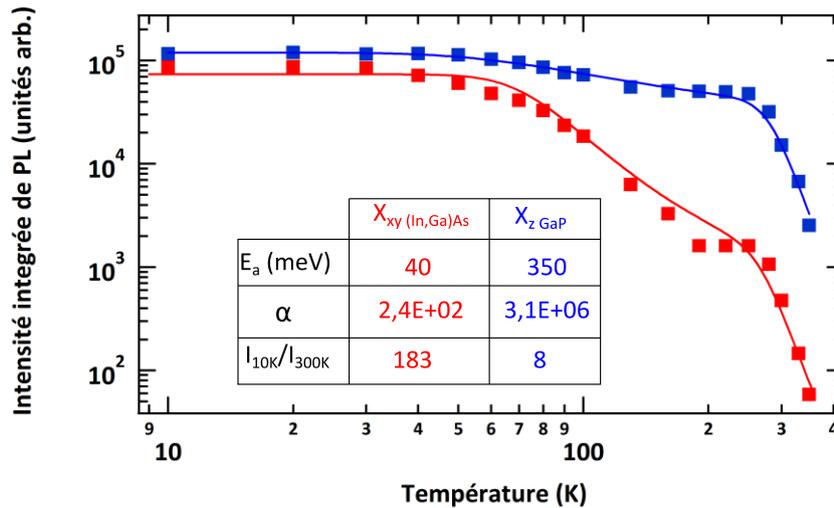
**Fig. 3.37 a) Evolution de l'énergie à 10 K des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As (en rouge) et  $X_z$  GaP (en bleu) et b) intensité intégrée correspondante à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) pour des QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 500 °C. L'épaisseur d'(In,Ga)As déposée est 4.5 ML. Les échantillons correspondants sont dans l'ordre S1817, S1879 et S1932.**

Le spectre à 10 K de l'échantillon le plus optimisé (S1932) est présenté dans la Fig. 3.38a. Cet échantillon correspond à un plan de QDs (In,Ga)As/GaP réalisé à 500 °C ayant subi 300 s d'arrêt de croissance sous flux d'As et 2 s d'arrêt de croissance sous flux de P. La composition d'In est de 35 % et le rapport V/III est de 3,78. La contribution majoritaire au signal de PL à 10 K est la transition à plus haute énergie qui est ici  $X_z$  GaP. La transition  $X_{xy}$  (In,Ga)As correspond, quant à elle, à l'épaule à basse énergie. L'évolution de ces deux transitions en fonction de la température est présentée dans la Fig. 3.38b.



**Fig. 3.38** a) Intensité de PL à 10 K et b) intensité de photoluminescence en fonction de l'énergie et de la température pour l'échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP optimisé (S1932). La composition d'In est de 35 %, le rapport V/III est 3.78 et la température de croissance est 500 °C. Les QDs ont subi 300 s d'arrêt de croissance sous flux d'As et 2 s d'arrêt de croissance sous flux de P. La densité de puissance injectée est de 142 W.cm<sup>-2</sup>.

La transition  $X_z$  GaP est très robuste en fonction de la température (Fig. 3.39) ce qui indique un confinement profond des électrons dans le GaP contraint au-dessus de la QD (In,Ga)As/GaP. Malgré les modifications observées sur la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP, la transition de type I au sein des QDs InGaAs/GaP est toujours indirecte : électrons dans les niveaux  $X_{xy}$  (In,Ga)As et trous en HH. Il en est de même pour la transition de type II avec les électrons dans les niveaux  $X_z$  GaP contraint et les trous en HH de l'(In,Ga)As.



**Fig. 3.39** Evolution de l'intensité intégrée de la transition  $X_{xy} \text{ (In,Ga)As}$  (marqueurs rouges) et  $X_z \text{ GaP}$  (marqueurs bleus) de l'échantillon S1932 en fonction de la température. Les lignes continues correspondent à la loi d'Arrhenius. L'insert présente les énergies d'activations, l'efficacité d'échappement des porteurs et le rapport d'intensité intégrée entre 10 et 300 K pour les transitions  $X_{xy} \text{ (In,Ga)As}$  et  $X_z \text{ GaP}$ .

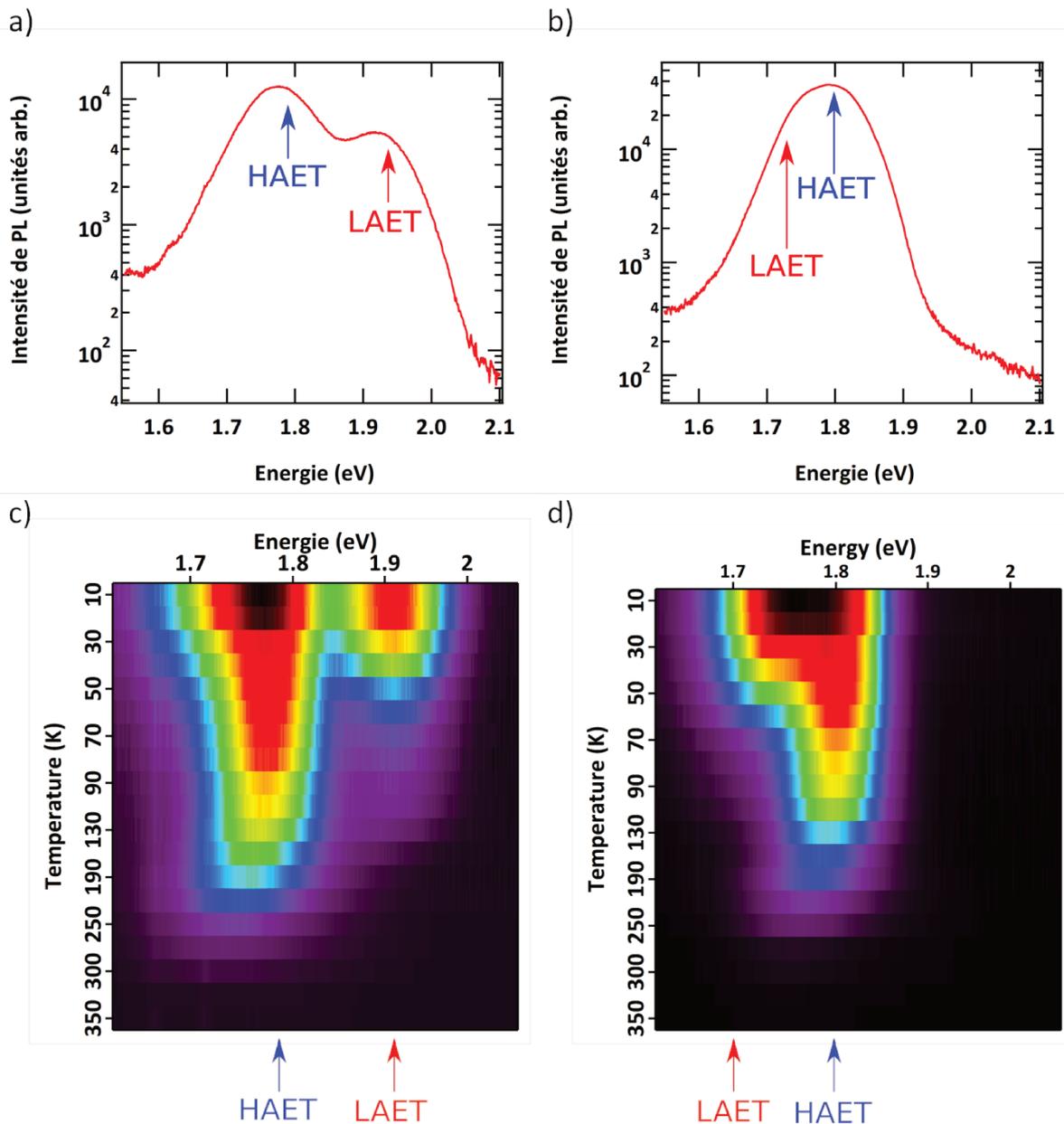
La modification de la vitesse de croissance n'a pas été considérée dans ce travail mais pourrait être aussi une voie intéressante à étudier [34] ainsi que la réalisation de l'encapsulation par croissance alternée [60]. Après avoir discuté des paramètres de croissance d'un plan de QDs d'(In,Ga)As/GaP, passons à l'étude de l'encapsulation.

### 3.4.5. Encapsulation

La maîtrise de l'étape d'encapsulation est primordiale du fait de son influence sur la morphologie des QDs et leur composition. Elle peut perturber également, le champ de contrainte dans les QDs. On retrouve plusieurs exemples d'études d'encapsulation dans la littérature. Dans le cas des QDs InAs/GaAs, l'(In,Al)As, l'AlAs, l'(In,Ga)As et le Ga(As,Sb) peuvent être utilisés comme une couche de réduction de contraintes car leur paramètre de maille est inférieur à celui de l'InAs. L'ajout de Ga(As,Sb) avant la reprise de croissance GaAs a permis, par exemple, une modification du champ de contrainte et même un changement de type I vers un type II en fonction du pourcentage de Sb [61], [62]. Concernant l'utilisation d' $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  et d' $\text{In}_{0.2}\text{Al}_{0.8}\text{As}$  [58], ils ont permis une baisse significative de l'énergie et de la largeur du pic d'émission de PL liée respectivement à la réduction de contraintes affectant les QDs et à la préservation de l'uniformité de dimensions des QDs. L'ajout d'AlAs est discuté dans [56] où Azberger *et al.* observent suivant la température de croissance soit un décalage du pic d'émission vers les basses énergies lié à la réduction de la ségrégation d'In soit un

décalage vers les hautes énergies lié à l'augmentation du potentiel des barrières. Enfin, Grundman *et al.* [13] ont comparé la fonction d'onde de l'état électronique fondamental dans le cas de QDs InAs/GaAs avec une couche supérieure de GaAs et d'AlAs. Dans la configuration avec AlAs, ils observent que la fonction d'onde de l'électron pénètre plus dans la couche inférieure de GaAs au détriment de la couche supérieure d'AlAs.

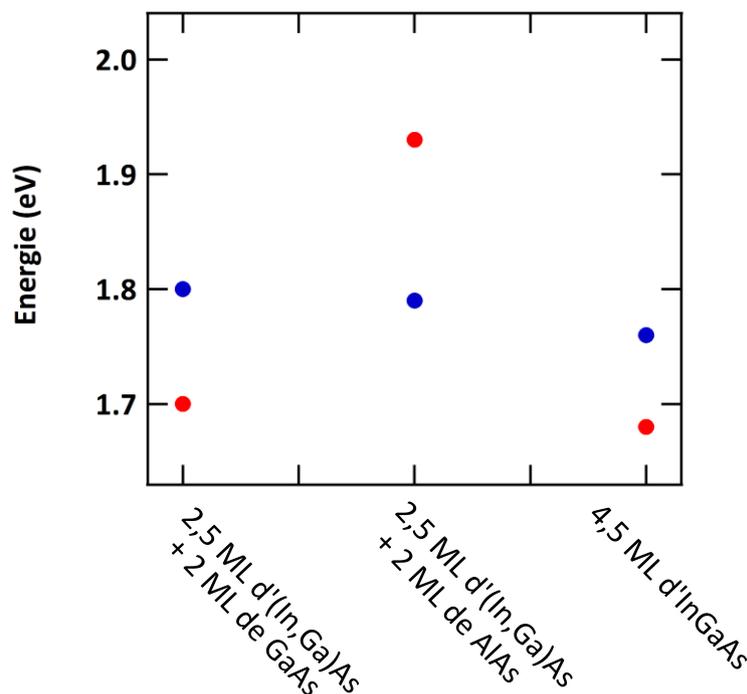
Dans le cadre de cette thèse, l'ajout de GaAs et d'AlAs avant la reprise de croissance GaP sera discuté avec pour but une modification des contraintes et surtout du confinement des électrons. Les échantillons étudiés sont composés de 2.5 ML d'(In,Ga)As avec 35 % d'In suivi par un arrêt de croissance de 300 s sous flux d'As afin de favoriser le mûrissement des QDs. Puis 2 ML d'AlAs (échantillon S1934) ou de GaAs (échantillon S1933) sont ajoutés avant un arrêt de croissance sous flux de P de 3 s suivi par la reprise de croissance GaP. Les spectres de PL à 10 K des échantillons S1933 et S1934 sont présentés dans la Fig. 3.40a et Fig. 3.40b. L'échantillon S1934 (2 ML AlAs, Fig. 3.40a) présente deux pics de PL bien distincts à 1,79 et 1,93 eV avec le pic à basse énergie ayant une intensité de PL plus importante que le pic à haute énergie. La Fig. 3.40c présente l'évolution de la PL en fonction de la température et montre que le pic à haute (basse) énergie correspond à une transition dont la baisse de PL à basse température est (n'est pas) significative, c'est donc la transition LAET (HAET). L'échantillon S1933 (2 ML de GaAs, Fig. 3.40b) présente lui aussi deux pics à 1,7 et 1,8 eV avec le pic à haute énergie ayant une PL plus importante que celui à basse énergie. Les deux pics de cet échantillon sont moins distincts que pour l'encapsulation AlAs (S1934). La Fig. 3.40d montre que le pic à basse (haute) énergie correspond à une transition dont la baisse de PL à basse température est (n'est pas) significative, c'est donc la transition LAET (HAET). Dans les parties précédentes, la transition LAET a été associée à une transition de type-I entre les électrons dans les niveaux  $X_{xy}$  et les trous dans les niveaux HH des QDs (In,Ga)As :  $X_{xy} \text{ (In,Ga)As}$ . La transition HAET correspond, quant à elle, à une transition de type-II entre les électrons dans les niveaux  $X_z$  du GaP contraint et les trous dans les niveaux HH des QDs (In,Ga)As :  $X_z \text{ GaP}$ . Cette association est basée sur une comparaison des mesures expérimentales et des résultats théoriques sur les QDs (In,Ga)As/GaP et pas sur des QDs (In,Ga)As/GaP avec un ajout de 2 ML d'AlAs ou de GaAs. L'identification exacte des transitions LAET et HAET est ici compliquée car les niveaux X d'AlAs ou de GaAs peuvent aussi entrer en compte.



**Fig. 3.40** Intensité de PL à 10 K des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP avec 2.5 ML d'(In,Ga)As ayant subi un arrêt de croissance sous flux d'As de 300 s ou a) 2 ML d'AlAs (échantillon S1934) et b) 2 ML de GaAs (échantillon S1933) avant la reprise de croissance du GaP. Ces spectres de PL correspondent à des QDs avec 35 % d'In pour une densité de puissance injectée de  $2547 \text{ W.cm}^{-2}$ . Intensité de photoluminescence en fonction de l'énergie et de la température pour des QDs (In,Ga)As/GaP avec 2.5 ML d'(In,Ga)As ayant subi un arrêt de croissance sous flux d'As de 300 s ou c) 2 ML d'AlAs (échantillon S1934) et d) 2 ML de GaAs (échantillon S1933) avant la reprise de croissance du GaP pour une densité de puissance injectée de  $207 \text{ W.cm}^{-2}$ .

L'énergie de ces transitions est présentée dans la Fig. 3.41 et est comparée à l'échantillon le plus optimisé (S1932, partie 3.4.4). L'ordre des transitions est le même pour l'encapsulation GaAs (S1933) et pour 4.5 ML d'(In,Ga)As déposée avec une encapsulation GaP (S1932). Pour ces deux échantillons, la transition à plus basse énergie est la transition

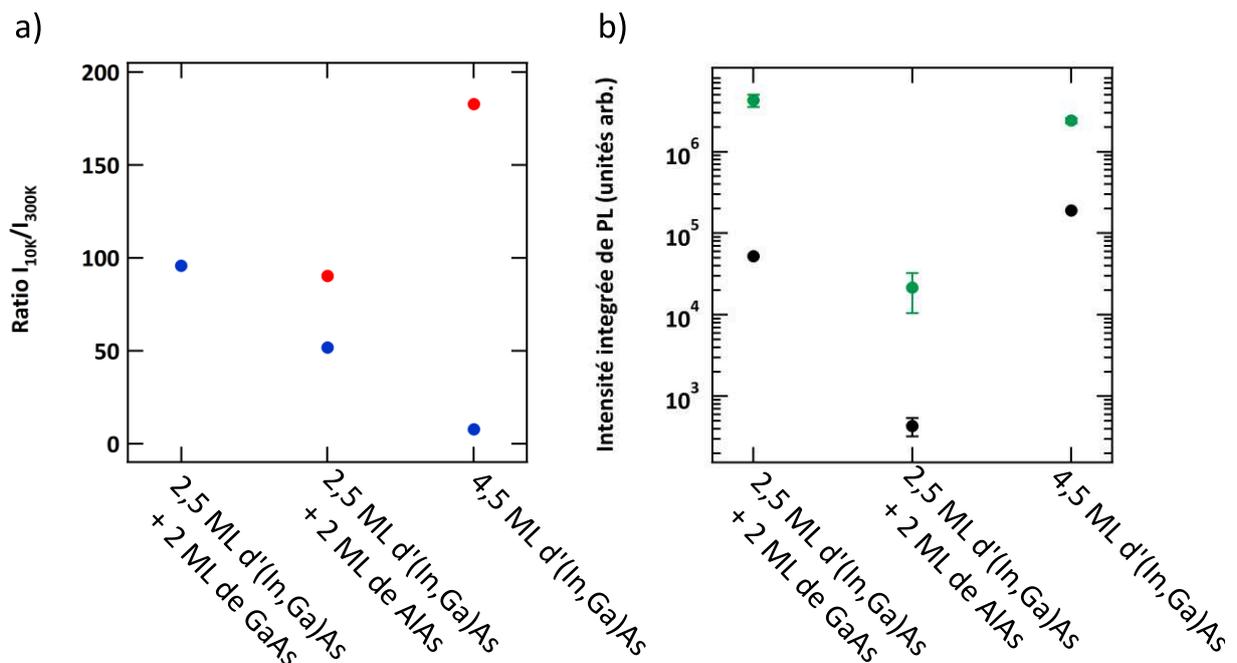
LAET. Pour l'encapsulation AlAs, la transition à plus basse énergie n'est plus LAET mais HAET. La position de cette dernière transition varie peu (0,01 eV) en fonction du type d'encapsulation mais elle est légèrement inférieure pour l'échantillon le plus optimisé (S1932). Pour ce qui est de la transition LAET, elle varie peu avec l'encapsulation GaAs par rapport à l'échantillon S1932 (0,02 eV) mais est très fortement modifiée par l'encapsulation AlAs. En effet, la transition LAET se décale vers les hautes énergies et atteint 1,93 eV. Il est fort probable que la transition HAET corresponde à un niveau  $X_z$  à l'extérieur de la QD et que la transition LAET corresponde à un niveau X de l'AlAs en se basant sur le fait que l'énergie de bande interdite de l'AlAs est plus importante que l'(In,Ga)As. Les faibles différences observées sur la position de LAET et de HAET entre l'encapsulation GaAs et le S1932 sont compatibles avec la différence de durée de l'arrêt de croissance sous flux de P de 3 s pour S1932 et 2 s pour l'encapsulation GaAs. Il est donc fort probable que les transitions LAET et HAET de l'encapsulation GaAs correspondent aux transitions identifiées  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP.



**Fig. 3.41** Evolution de l'énergie à 10 K des transitions LAET (en rouge) et HAET (en bleu) en fonction du type d'encapsulation GaAs (S1933) et AlAs (S1934). Ces échantillons ont subi un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 300 s (3 s). Ces échantillons sont comparés à l'échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP optimisé (S1932) qui correspond à 4,5 ML d'(In,Ga)As déposées pour lequel les transitions LAET et HAET sont identifiées comme étant  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP. L'arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de l'échantillon S1932 est 300 s (2 s).

Il est difficile de conclure sur les morphologies exactes des QDs (In,Ga)As/GaP sans échantillons supplémentaires (par exemple 2,5 ML d'(In,Ga)As avec un arrêt de croissance sous flux d'As de 300 s et de P de 3 s). Cependant, les positions des transitions sont à mettre en perspective avec la modification du confinement quantique induit par la différence de morphologie des QDs avec ces couches d'encapsulation, ainsi que du potentiel vu par les électrons. La différence notable est la position de la transition LAET pour l'échantillon avec l'encapsulation AIAs qui témoigne de la forte influence sur la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP.

Le rapport d'intensité  $\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  des transitions LAET et HAET des échantillons de QDs (In,Ga)As/GaP avec une encapsulation AIAs ou GaAs est présenté dans la Fig. 3.42a.



**Fig. 3.42** a) Rapports d'intensités intégrées entre 10 et 300 K des transitions LAET (en rouge) et HAET (en bleu) et b) intensité intégrée de PL correspondante à 10 K (en vert) et 300 K (en noir) en fonction du type d'encapsulation GaAs (S1933) et AIAs (S1934). Ces échantillons ont subi un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 300s (3s). Ces échantillons sont comparés à l'échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP optimisé (S1932) qui correspond à 4,5 ML d'(In,Ga)As déposé pour lequel les transitions LAET et HAET sont identifiées comme étant  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP.

Pour l'encapsulation GaAs, la transition LAET n'est pas présente à 300 K ce qui n'est pas le cas pour l'encapsulation AIAs ni pour S1932. Pour les transitions LAET et HAET, Le rapport

$\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  est donc plus faible pour l'encapsulation AlAs que GaAs. Le rapport  $\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  de la transition LAET(HAET) de l'encapsulation AlAs est deux fois plus faible (7 fois plus fort) que celui de l'échantillon S1932. Concernant l'intensité de PL intégrée à 10 et 300 K (Fig. 3.42b), elle est la plus faible pour l'encapsulation AlAs. L'intensité intégrée est bien corrélée aux valeurs de  $E_{a2}$  (Tab. 3.14) sauf pour la valeur de l'intensité intégrée à 10 K de l'encapsulation GaAs. Cependant les tendances observées sur le rapport  $\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  de la transition LAET ne sont pas corrélées aux valeurs de  $E_{a1}$ . En effet, les valeurs de  $E_{a1}$  sont identiques pour l'encapsulation GaAs et AlAs alors que la transition LAET n'est pas présente à 300 K.

		$\alpha_1$	$E_{a1}$ (meV)	$\alpha_2$	$E_{a2}$ (meV)
Epaisseur d'(In,Ga)As (ML)	Echantillon	LAET		HAET	
2,5 + 2 ML GaAs	S1933	10	10	2,7E+06	270
2,5 + 2 ML AlAs	S1934	4E+01	10	1,5E+06	250
		$X_{xy}$ (In,Ga)As		$X_z$ GaP	
4,5	S1932	2,40E+02	40	3E+06	350

**Tab. 3.14** Efficacité d'échappement des porteurs et énergies d'activations pour les transitions LAET et HAET de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 550 °C pour différents type d'encapsulation : 2 ML de GaAs (S1933) ou 2 ML d'AlAs (S1934). L'épaisseur d'(In,Ga)As déposée est 2,5 ML. L'échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP le plus optimisé (S1932) est ajouté pour comparaison et correspond à 4.5 ML d'(In,Ga)As déposée. Pour cet échantillon, les transitions LAET et HAET sont identifiées en tant que  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP.

Il en est de même pour la comparaison de ce même rapport entre l'encapsulation AlAs et le S1932.  $E_{a1}$  est quatre fois plus grande pour l'échantillon S1932 alors que le rapport  $\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  est deux fois plus faible que pour l'encapsulation AlAs. Dans la partie 3.3.1, nous avons mis en lumière le fait que le facteur de linéarité (extrait des mesures de PL en puissance) est toujours plus important pour la transition à plus haute énergie. Pour l'encapsulation GaAs, c'est bien le cas, mais pas pour l'encapsulation AlAs (Tab. 3.15). La faible intensité intégrée, la position énergétique ainsi que le faible rapport  $\frac{I_{10K}}{I_{300K}}$  de la transition LAET, le facteur de linéarité plus important pour la transition à plus basse énergie sont des preuves de la modification importante de la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP avec une encapsulation AlAs. Cette modification est aussi observée dans une moindre mesure pour

l'encapsulation GaAs avec la transition LAET qui n'est pas présente à 300 K et la position énergétique des transitions LAET et HAET proches de celles de l'échantillon S1932.

Epaisseur d'(In,Ga)As (ML)	Echantillon	q	
		LAET	HAET
2,5 + 2 ML GaAs	S1933	0,65	0,9
2,5 + 2 ML AlAs	S1934	0,7	0,8
		$X_{xy (In,Ga)As}$	$X_{z GaP}$
4,5	S1932	0,7	0,95

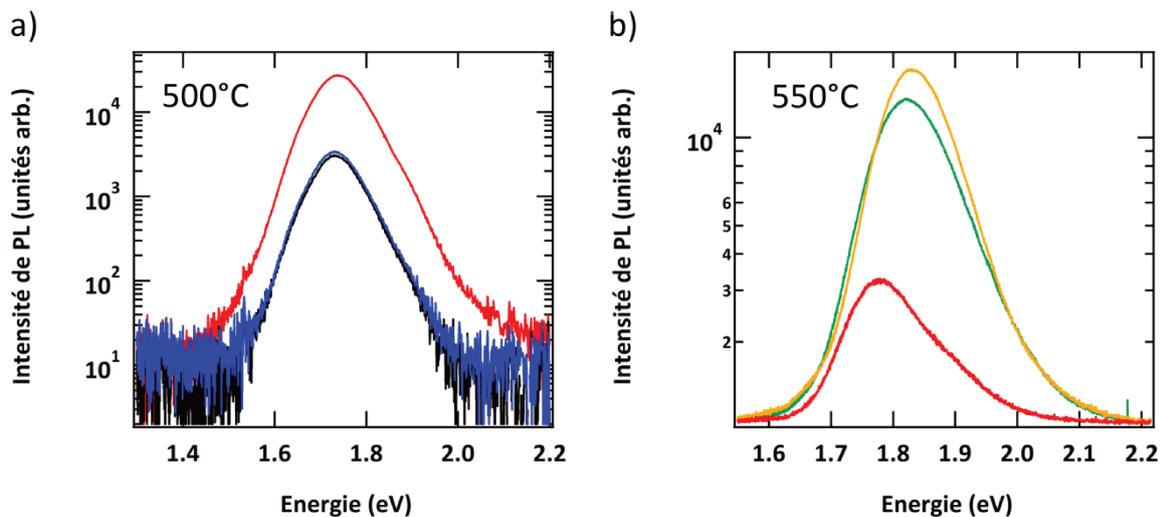
**Tab. 3.15 Coefficient de linéarité pour les transitions LAET et HAET de QDs (In,Ga)As/GaP contenant 35 % d'In réalisées à 550 °C pour différents type d'encapsulation : 2 ML de GaAs (S1933) ou d'AlAs (S1934). L'épaisseur d'(In,Ga)As déposée est 2,5 ML. L'échantillon de QDs (In,Ga)As/GaP le plus optimisé (S1932) est ajouté pour comparaison et correspond à 4.5 ML d'(In,Ga)As déposée. Pour cet échantillon, les transitions LAET et HAET sont identifiées en tant que  $X_{xy (In,Ga)As}$  et  $X_{z GaP}$ .**

La morphologie des QDs n'est pas connue, il en est de même pour la composition de QDs. Il est donc difficile de conclure sur la modification de l'incorporation d'In au sein des QDs (In,Ga)As/GaP encapsulées. L'identification des transitions LAET et HAET est également assez compliquée mais étant données les observations expérimentales, il semble que la transition HAET corresponde à une transition  $X_z$  à l'extérieur de la QD et la transition LAET à  $X_{xy (In,Ga)As}$  pour l'encapsulation GaAs et à  $X_{AlAs}$  pour l'encapsulation AlAs. Des simulations atomistiques et des mesures complémentaires seraient nécessaires pour confirmer ces hypothèses. Cependant, on peut tout de même conclure sur la modification effective de la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP encapsulées même si aucune transition directe n'est obtenue dans notre cas contrairement à ce qui est affirmé par Stracke *et al.* [30] pour des QDs (In,Ga)As/GaAs/GaP avec une encapsulation de 2 ML de GaAs sans toutefois le démontrer par des mesures de TRPL. La modification de l'encapsulation standard GaP semble donc être une voie prometteuse afin de favoriser une transition directe par la modification de la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP.

### 3.5. Empilement de QDs (In,Ga)As/GaP

L'empilement de plans de QDs permet d'obtenir une forte densité de QDs dans un volume faible ce qui est souhaitable pour les applications lasers de façon à maximiser le recouvrement entre l'onde optique confinée et la zone active. La notion de contrainte devient donc primordiale car elle ne concerne plus seulement un plan de QDs mais la totalité de la structure empilée ce qui va avoir un impact sur la croissance des QDs des plans supérieurs. Cette modification de la croissance des plans supérieurs peut entraîner un phénomène d'alignement vertical des QDs [45], [63] ainsi qu'une réduction de l'inhomogénéité des QDs [64]–[66]. Ce phénomène peut être en partie contrôlé par la distance entre les plans de QDs comme observé expérimentalement par Xie *et al.* [45] dans le cas de QDs InAs/GaAs. Plus l'épaisseur de la couche séparant les plans de QDs est petite, plus le phénomène d'alignement vertical est présent. La formation de la première couche de QDs (suivi par l'encapsulation GaAs) entraîne une alternance de zones de forte contrainte (en tension) au-dessus des QDs et une zone sans ou de faibles contraintes entre les QDs. Dans la première zone (contrainte forte), les atomes d'In vont s'accumuler au-dessus des QDs de la couche inférieure de façon à atteindre un état thermodynamique énergétiquement plus favorable. La suppression totale de la formation de QDs au sein de la deuxième zone (absence ou faible contrainte) dépend de la distance entre QDs et de l'épaisseur de couche de séparation entre les plans de QDs. Ces contraintes peuvent aussi mener à la formation de plans de QDs supplémentaires [67], [68]. Une bonne gestion de l'épaisseur entre les QDs et donc des contraintes de l'empilement peut entraîner une augmentation de l'intensité de PL des QDs par la modification de l'efficacité quantique et une réduction de l'énergie des transitions liées aux QDs [26]. Des phénomènes de couplages entre les plans de QDs peuvent aussi être observés [63], [64]. En plus de l'épaisseur entre les plans, des couches de réduction/compensation de contraintes peuvent aussi être utilisées entraînant une hausse de la PL et de la densité des QDs comme ce qui a été réalisé par l'insertion de couche de GaP dans le système de QDs (In,Ga)As/GaAs [69]. Enfin, Xie *et al* [60] ont démontré une augmentation de PL importante en utilisant une technique de croissance alternée par rapport à la MBE conventionnelle, des couches de séparation entre les plans de QDs résultant de la réduction de l'échange entre InAs et le GaAs. Par l'empilement de plans de QDs, nous souhaitons une modification de la structure électronique des QDs avec pour but une réduction de l'énergie des transitions de façon à

promouvoir une transition optique directe. Dans cette étude, nous étudierons l'effet de l'empilement sur des QDs épitaxiés à 500 °C et à 550 °C. Des empilements de 3 plans de QDs avec un espacement de 300 Å (échantillon S1935) et de 500 Å (échantillon S1936) ont d'abord été réalisés. Le plan de QDs répété correspond au plan de QDs optimisé selon les paramètres discutés dans la partie 3.4.4 : 4,5 ML d'(In,Ga)As, 35 % d'In, arrêt de croissance sous flux d'As : 300 s, sous flux de P : 2 s et température de croissance de 500 °C (échantillon S1932). La PL à température ambiante de ces empilements est comparée à celle du plan de référence (Fig. 3.43a) afin de discuter de l'effet de l'empilement.



**Fig. 3.43** a) Intensité de PL à 300 K de 3 plans de QDs (In,Ga)As/GaP avec un espacement de 300 Å (en bleu, échantillon S1936) et de 500 Å (en noir, échantillon S1935) entre les plans de QDs. Le plan de QDs répété correspond à une épaisseur d'(In,Ga)As déposée de 4.5 ML suivie par un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 300 s (2 s). Ces deux échantillons sont comparés à la PL d'un plan de QDs ayant subi la même procédure (en rouge, échantillon S1932). La densité de puissance d'injection est  $265 \text{ W.cm}^{-2}$ . Les QDs (In,Ga)As/GaP, contiennent 35 % d'In et sont réalisées à 500 °C. b) Intensité de PL à 300 K d'un plan (en rouge, échantillon S1631), de 5 plans (en orange, échantillon S1630), et de 3 x 3 plans (en vert, échantillon S1721) de QDs (In,Ga)As/GaP. Le plan de QDs utilisé est 3 ML d'(In,Ga)As déposé suivie par un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 180 s (5s) sauf pour l'empilement correspondant à 3 x 3 plans où l'arrêt de croissance sous de flux d'As est réduit à 30 s. L'espacement est de 300 Å pour l'empilement de 5 plans de QDs. Pour l'empilement de 3 x 3, il est de 100/300 Å. La densité de puissance d'injection est  $2080 \text{ W.cm}^{-2}$ . Les QDs (In,Ga)As/GaP, contiennent 30 % d'In (valeur nominale) et sont réalisées à 550 °C. Le pourcentage d'In effectif est discuté dans la partie 3.4.1.

Pour les échantillons épitaxiés à 500 °C (Fig. 3.43a), on peut constater, tout d'abord, que la PL d'un seul plan de QDs est très supérieure à la PL des plans empilés (rapport de 8 entre les maximums de PL) ce qui est probablement dû à la formation de dislocations dans les deux échantillons à empilement. Ce résultat est cohérent avec le peu de différence

obtenue entre les PL des deux empilements. Pour les échantillons épitaxiés à 550 °C, la Fig. 3.43b présente la comparaison de PL entre deux empilements, l'un de 5 (échantillon S1630) et le second de 3 x 3 (échantillon S1721) plans de QDs. La PL des deux empilements est comparée à celle d'un plan de QDs (échantillon S1631). L'espacement entre les plans est de 300 Å et de 100/300 Å respectivement. Le plan répété est 3 ML d'(In,Ga)As déposée avec 30 % d'In, arrêt de croissance sous flux d'As de 180 s (30 s pour le 3 x 3 plans) et sous P de 5 s. La composition effective d'In dans ces échantillons est discutée dans 3.4.1. La PL d'un plan de QDs est cette fois-ci inférieure à celle d'un empilement de 5 plans de QDs (rapport de 5 entre les maximums de PL) et à celle d'un empilement de 3 x 3 plans de QDs (rapport 4 entre les maximums de PL). Une analyse fine de la possible réduction de largeur à mi-hauteur [64] ainsi qu'un décalage vers les basses énergies [26] n'est pas simple due à la présence de nombreuses transitions et au regroupement des transitions sous deux grandes familles LAET et HAET. Au contraire des QDs réalisées à 500 °C, on constate un effet bénéfique de l'empilement sur les QDs réalisées à 550 °C.

Cette différence s'explique par la différence de contraintes (différentes épaisseurs déposées et différentes compositions d'In) entre les deux systèmes comme illustré dans la Fig. 3.44. Le profil de diffraction X  $\omega$ -2 $\theta$  [Annexe B] de l'échantillon correspondant à un empilement de 3 plans de QDs réalisés à 500 °C est présenté dans la Fig. 3.44a. On constate que les pics satellites sont peu ou pas définis traduisant la mauvaise qualité de l'interface QDs-barrières et la présence de dislocations au contraire de l'empilement de QDs réalisées à 550 °C (Fig. 3.44b) où les pics satellites sont bien définis. On retrouve, de plus, l'épaisseur des espacements attendue entre les plans de QDs pour l'empilement composé de 5 plans.

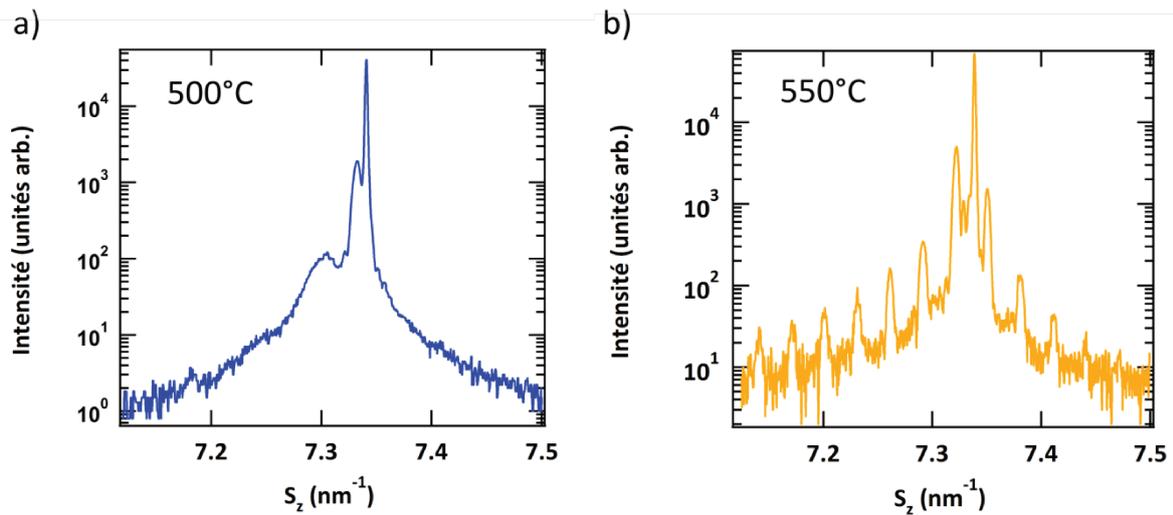
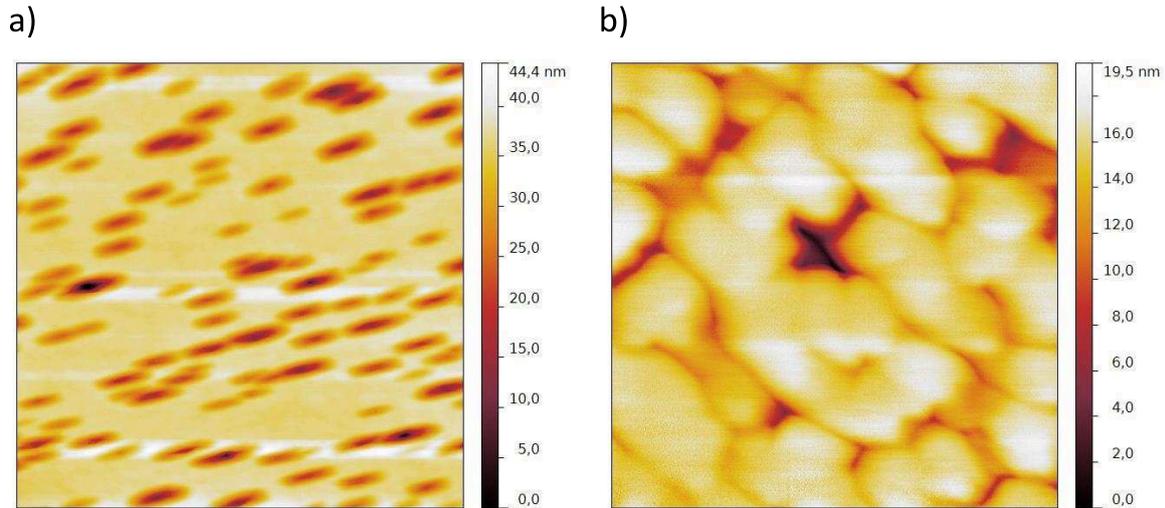


Fig. 3.44 a) Profil de diffraction X  $\omega$ - $2\theta$  suivant le plan (004) du GaP de l'échantillon composé de 3 plan de QDs avec un espacement de 300 Å (en bleu, échantillon S1936). Le plan de QDs répété correspond à une épaisseur d'(In,Ga)As déposée de 4.5 ML suivie par un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 300 s (2s). Les QDs (In,Ga)As/GaP contiennent 35 % d'In et sont réalisées à 500 °C. b) Profil de diffraction X  $\omega$ - $2\theta$  suivant le plan (004) du GaP de l'échantillon composé de 5 plans de QDs avec un espacement de 300 Å (en orange, échantillon S1630). Le plan de QDs répété correspond à une épaisseur d'(In,Ga)As déposée de 3 ML suivie par un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 180 s (5s). Les QDs (In,Ga)As/GaP contiennent moins de 15 % d'In (30 % nominal) et sont réalisées à 550 °C. Le pourcentage d'In effectif est discuté dans la partie 3.4.1. Dans ce cas, les pics satellites sont bien définis, au contraire de ce qu'on observe pour l'empilement de 3 plans de QDs réalisés à 500 °C, ce qui traduit des interfaces QDs-barrières de bonne qualité sans l'apparition de dislocations.

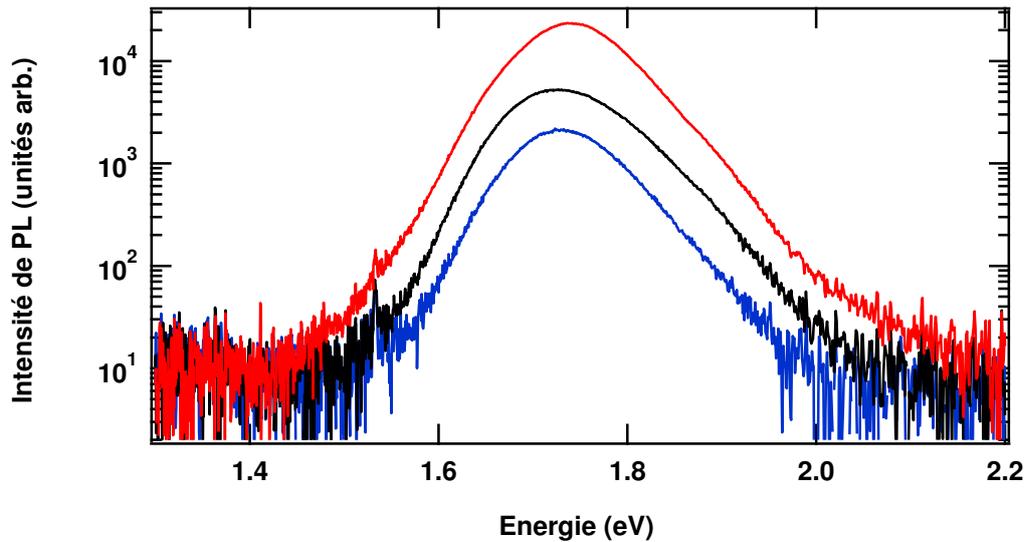
La figure Fig. 3.45a présente une image AFM après 500 Å d'encapsulation GaP d'un plan de QDs optimisées à 500 °C. La rugosité de surface est de l'ordre 4.78 nm avec la présence de nombreux trous ce qui semble être cohérent avec le fait que Xie *et al.* [70] aient observé l'influence du champ de contrainte de QDs InAs/GaAs allant jusqu'à 400 Å. Après l'empilement de 3 plans (Fig. 3.45b), la rugosité est de 2.25 nm avec la présence de motif compatible avec l'apparition de dislocations. La diminution de PL par l'empilement est donc bien due à la présence de dislocations.



**Fig. 3.45** Images AFM  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  de QDs (In,Ga)As/GaP après 500 Å d'encapsulation GaP pour a) un plan (échantillon S1932) et b) trois plans de QDs (échantillon S1936). Le plan de QDs utilisé correspond à une épaisseur d' (In,Ga)As déposée de 4.5 ML suivie par un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 300 s (2 s). Les QDs (In,Ga)As/GaP, présentés ici, contiennent 35 % d'In et sont réalisées à 500 °C.

Il faut donc réduire les contraintes de notre système. Pour cela, nous avons testé deux approches : réduction de l'épaisseur du deuxième et troisième plan de 4,5 à 3,5 ML (échantillon S1951) et réduction de l'épaisseur des trois plans de 4,5 à 4 ML (échantillon S1952) sans modifier les durées d'arrêt de croissance. L'espacement entre les plans de QDs est de 300 Å de GaP.

La PL de ces échantillons est présentée dans la Fig. 3.46 et est comparée à la PL d'un plan de QDs (échantillon S1932). On constate une fois de plus que la PL d'un plan de QDs est supérieure aux deux empilements : rapport 11 et 4 entre les maximums de PL pour l'empilement 4,5/3,5/3,5 ML et 4/4/4 ML respectivement. Cette PL plus faible provient toujours de la présence de dislocations dans les deux échantillons. Cependant, la différence de PL entre les deux empilements souligne l'importance des contraintes liées au premier plan comme le montre la rugosité après 500 Å d'encapsulation GaP (Fig. 3.45a) d'un plan de QDs avec 4,5 ML d'(In,Ga)As déposée. Il faut donc modifier directement les contraintes liées au premier plan par la réduction de l'épaisseur déposée et /ou de l'arrêt de croissance sous flux d'As et/ou une augmentation de l'arrêt de croissance sous flux de P afin de pouvoir réaliser un empilement qui parviendra à modifier la structure électronique des QDs de façon à promouvoir le caractère direct des transitions optiques.



**Fig. 3.46** Intensité de PL à 300 K de 3 plans de QDs (In,Ga)As/GaP avec un espacement de 300 Å d'une épaisseur d'(In,Ga)As de a) 4,5/3,5/3,5 ML (en bleu, échantillon S1951) et b) 4/4/4 ML (en noir, échantillon S1952). Chaque plan de QDs a subi un arrêt de croissance sous flux d'As (de P) de 300 s (2s). Ces deux échantillons sont comparés à la PL d'un plan de QDs d'une épaisseur d'(In,Ga)As déposée de 4,5 ML ayant subi la même procédure (en rouge, échantillon S1932). La densité de puissance d'injection est 265 W.cm<sup>-2</sup>. Les QDs (In,Ga)As/GaP contiennent 35 % d'In et sont réalisées à 500 °C

L'étude de l'empilement présentée ici n'est qu'un travail préliminaire et nécessite d'autres expériences et échantillons afin de dégager des voies prometteuses. La réalisation de QDs (In,Ga)As/GaP en colonnes semble être aussi une voie intéressante à creuser aux vues des décalages vers les basses énergies obtenus dans le cas de QDs (In,Ga)As/GaAs en colonnes [71].

### 3.6. Conclusion et perspectives

La morphologie des QDs ainsi que les propriétés d'émission des QDs (In,Ga)As/GaP ont été analysées en fonction de différents paramètres de croissance et de structure : épaisseur d'(In,Ga)As, arrêt de croissance sous flux d'As et de P, composition d'In, rapport V/III et type d'encapsulation avec pour objectif d'avoir une meilleure compréhension de la structure électronique de ces QDs et l'obtention d'une transition optique directe. A l'aide d'une méthode d'analyse complexe, il a d'abord été montré que deux familles de transitions sont dominantes dans les QDs (In,Ga)As/GaP : l'une, notée  $X_{xy} \text{ (In,Ga)As}$ , qui correspond à une transition indirecte de type I entre les électrons dans les niveaux  $X_{xy}$  et les trous en HH des QDs (In,Ga)As et la seconde, notée  $X_{z \text{ GaP}}$ , qui correspond à une transition indirecte de type II entre les électrons dans les niveaux  $X_z$  du GaP contraint dans l'environnement proche de la

QD (In,Ga)As et les trous en HH des QDs (In,Ga)As. La variation des paramètres de croissance a permis une modification de la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP par un ajustement du confinement quantique et de la composition des QDs avec notamment un croisement observé des transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ , en fonction des conditions de croissance.

Malgré l'obtention d'une hausse de PL importante et une réduction de l'énergie des transitions, aucune transition optique directe n'a été observée. Cependant, il reste des voies prometteuses à explorer comme la modification de l'encapsulation, l'empilement et l'ajout de Sb lors de l'arrêt de croissance sous flux d'As ou encore les QDs en colonne.

## Références du chapitre 3

- [1] T. Quinci *et al.*, « Defects limitation in epitaxial GaP on bistedded Si surface using UHV-CVD–MBE growth cluster », *J. Cryst. Growth*, vol. 380, p. 157-162, oct. 2013.
- [2] C. Paranthoen *et al.*, « Height dispersion control of InAs/InP quantum dots emitting at 1.55  $\mu\text{m}$  », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 78, n° 12, p. 1751-1753, mars 2001.
- [3] L. Brusafferri *et al.*, « Thermally activated carrier transfer and luminescence line shape in self-organized InAs quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, n° 22, p. 3354-3356, nov. 1996.
- [4] P. Klenovský *et al.*, « Excitation intensity dependence of photoluminescence spectra of SiGe quantum dots grown on prepatterned Si substrates: Evidence for biexcitonic transition », *Phys. Rev. B*, vol. 86, n° 11, p. 115305, sept. 2012.
- [5] E. C. Le Ru, J. Fack, et R. Murray, « Temperature and excitation density dependence of the photoluminescence from annealed InAs/GaAs quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 67, n° 24, p. 245318, juin 2003.
- [6] A. Chiari *et al.*, « Temperature Dependence of the Photoluminescence in GaAs/GaAlAs Multiple Quantum Well Structure », *Phys. Status Solidi B*, vol. 147, n° 1, p. 421-429, mai 1988.
- [7] Y. P. Varshni, « Temperature dependence of the energy gap in semiconductors », *Physica*, vol. 34, n° 1, p. 149-154, janv. 1967.
- [8] J. Bardeen et W. Shockley, « Deformation Potentials and Mobilities in Non-Polar Crystals », *Phys. Rev.*, vol. 80, n° 1, p. 72-80, oct. 1950.
- [9] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, et L. R. Ram-Mohan, « Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys », *J. Appl. Phys.*, vol. 89, n° 11, p. 5815-5875, juin 2001.
- [10] E. O. KANE, « Strain Effects on Optical Critical-Point Structure in Diamond-Type Crystals », *Phys. Rev.*, vol. 178, n° 3, p. 1368-1398, févr. 1969.
- [11] C. Köpf, H. Kosina, et S. Selberherr, « Physical models for strained and relaxed GaInAs alloys: Band structure and low-field transport », *Solid-State Electron.*, vol. 41, n° 8, p. 1139-1152, août 1997.
- [12] C. Robert, « Study of III-V nanostructures on GaP for lasing emission on Si », Thesis, FOTON-OHM, 2013.
- [13] M. Grundmann, O. Stier, et D. Bimberg, « InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure », *Phys. Rev. B*, vol. 52, n° 16, p. 11969-11981, oct. 1995.
- [14] M. A. Cusack, P. R. Briddon, et M. Jaros, « Electronic structure of InAs/GaAs self-assembled quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 54, n° 4, p. R2300-R2303, juill. 1996.
- [15] C. Robert, « Electronic wave functions and optical transitions in (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 94, n° 7, 2016.
- [16] C. Prohl *et al.*, « Spatial structure of In<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>As/GaAs/GaP quantum dots on the atomic scale », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, n° 12, p. 123102, mars 2013.
- [17] C. Robert *et al.*, « Electronic, optical, and structural properties of (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 86, n° 20, p. 205316, nov. 2012.
- [18] D. Bimberg, M. Grundmann, et N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*. John Wiley & Sons, 1999.
- [19] N. Bertru *et al.*, « Spontaneous emission from InAs/GaSb quantum wells grown by molecular beam epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 85, n° 3, p. 1989-1991, févr. 1999.

- [20] A. I. Yakimov, N. P. Stepina, A. V. Dvurechenskii, A. I. Nikiforov, et A. V. Nenashev, « Interband absorption in charged Ge/Si type-II quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 63, n° 4, p. 045312, janv. 2001.
- [21] M. Brehm *et al.*, « Combined structural and photoluminescence study of SiGe islands on Si substrates: comparison with realistic energy level calculations », *New J. Phys.*, vol. 11, n° 6, p. 063021, 2009.
- [22] M. El Kurdi, S. Sauvage, G. Fishman, et P. Boucaud, « Band-edge alignment of SiGe / Si quantum wells and SiGe / Si self-assembled islands », *Phys. Rev. B*, vol. 73, n° 19, p. 195327, mai 2006.
- [23] F. Hatami *et al.*, « Carrier dynamics in type-II GaSb/GaAs quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 57, n° 8, p. 4635-4641, févr. 1998.
- [24] J. Shen, Y. Song, M. L. Lee, et J. J. Cha, « Spatially resolved In and As distributions in InGaAs/GaP and InGaAs/GaAs quantum dot systems », *Nanotechnology*, vol. 25, n° 46, p. 465702, 2014.
- [25] T. Nguyen Thanh *et al.*, « Room temperature photoluminescence of high density (In,Ga)As/GaP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, n° 14, p. 143123-143123-3, oct. 2011.
- [26] L. Chu, M. Arzberger, G. Böhm, et G. Abstreiter, « Influence of growth conditions on the photoluminescence of self-assembled InAs/GaAs quantum dots », *J. Appl. Phys.*, vol. 85, n° 4, p. 2355-2362, févr. 1999.
- [27] W. Seifert, N. Carlsson, M. Miller, M.-E. Pistol, L. Samuelson, et L. R. Wallenberg, « In-situ growth of quantum dot structures by the Stranski-Krastanow growth mode », *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.*, vol. 33, n° 4, p. 423-471, janv. 1996.
- [28] C. Robert *et al.*, « Structural and optical properties of AlGaP confinement layers and InGaAs quantum dot light emitters onto GaP substrate: Towards photonics on silicon applications », *Thin Solid Films*, vol. 541, p. 87-91, août 2013.
- [29] M. Heidemann, S. Höfling, et M. Kamp, « (In,Ga)As/GaP electrical injection quantum dot laser », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 1, p. 011113, janv. 2014.
- [30] G. Stracke *et al.*, « Indirect and direct optical transitions in In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 12, p. 123107, mars 2014.
- [31] R. E. Rudd, G. A. D. Briggs, A. P. Sutton, G. Medeiros-Ribeiro, et R. S. Williams, « Equilibrium Model of Bimodal Distributions of Epitaxial Island Growth », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 90, n° 14, p. 146101, avr. 2003.
- [32] G. Costantini *et al.*, « Pyramids and domes in the InAs/GaAs(0 0 1) and Ge/Si(0 0 1) systems », *J. Cryst. Growth*, vol. 278, n° 1-4, p. 38-45, mai 2005.
- [33] S. Dadgostar *et al.*, « GaAs/GaP quantum dots: Ensemble of direct and indirect heterostructures with room temperature optical emission », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 108, n° 10, p. 102103, mars 2016.
- [34] I. Mukhametzhanov, Z. Wei, R. Heitz, et A. Madhukar, « Punctuated island growth: An approach to examination and control of quantum dot density, size, and shape evolution », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, n° 1, p. 85-87, juill. 1999.
- [35] I. Mukhametzhanov, R. Heitz, J. Zeng, P. Chen, et A. Madhukar, « Independent manipulation of density and size of stress-driven self-assembled quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, n° 13, p. 1841-1843, sept. 1998.
- [36] G. Saint-Girons, G. Patriarche, A. Mereuta, et I. Sagnes, « Origin of the bimodal distribution of low-pressure metal-organic-vapor-phase-epitaxy grown InGaAs/GaAs quantum dots », *J. Appl. Phys.*, vol. 91, n° 6, p. 3859-3863, mars 2002.

- [37] G. Saint-Girons *et al.*, « Bimodal distribution of Indium composition in arrays of low-pressure metalorganic-vapor-phase-epitaxy grown InGaAs/GaAs quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, n° 14, p. 2157-2159, oct. 2001.
- [38] S. J. Lee, S. K. Noh, J. W. Choe, et E. K. Kim, « Evolution of bimodal size-distribution on InAs coverage variation in as-grown InAs/GaAs quantum-dot heterostructures », *J. Cryst. Growth*, vol. 267, n° 3–4, p. 405-411, juill. 2004.
- [39] R. Heitz *et al.*, « Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 56, n° 16, p. 10435-10445, oct. 1997.
- [40] S. Charbonneau, T. Steiner, M. L. W. Thewalt, E. S. Koteles, J. Y. Chi, et B. Elman, « Optical investigation of biexcitons and bound excitons in GaAs quantum wells », *Phys. Rev. B*, vol. 38, n° 5, p. 3583-3586, août 1988.
- [41] D. Leonard, K. Pond, et P. M. Petroff, « Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs », *Phys. Rev. B*, vol. 50, n° 16, p. 11687-11692, oct. 1994.
- [42] J. Drucker, « Coherent islands and microstructural evolution », *Phys. Rev. B*, vol. 48, n° 24, p. 18203-18206, déc. 1993.
- [43] S. Yoon, Y. Moon, T.-W. Lee, E. Yoon, et Y. D. Kim, « Effects of As/P exchange reaction on the formation of InAs/InP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, n° 14, p. 2029-2031, avr. 1999.
- [44] S. Fréchengues *et al.*, « Wavelength tuning of InAs quantum dots grown on (311)B InP », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, n° 22, p. 3356-3358, mai 1999.
- [45] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, et N. P. Kobayashi, « Vertically Self-Organized InAs Quantum Box Islands on GaAs(100) », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 75, n° 13, p. 2542-2545, sept. 1995.
- [46] A. D. Giddings *et al.*, « Composition profiling of InAs quantum dots and wetting layers by atom probe tomography and cross-sectional scanning tunneling microscopy », *Phys. Rev. B*, vol. 83, n° 20, p. 205308, mai 2011.
- [47] S. C. Lee, L. R. Dawson, S. R. J. Brueck, et A. Stintz, « Heteroepitaxial selective growth of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  on  $\text{SiO}_2$ -patterned GaAs(001) by molecular beam epitaxy », *J. Appl. Phys.*, vol. 96, n° 9, p. 4856-4865, oct. 2004.
- [48] S. Paul, J. B. Roy, et P. K. Basu, « Empirical expressions for the alloy composition and temperature dependence of the band gap and intrinsic carrier density in  $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$  », *J. Appl. Phys.*, vol. 69, n° 2, p. 827-829, janv. 1991.
- [49] E. Tournié, O. Brandt, C. Giannini, K. H. Ploog, et M. Hohenstein, « Virtual-surfactant epitaxy of InAs quantum wells », *J. Cryst. Growth*, vol. 127, n° 1, p. 765-769, févr. 1993.
- [50] E. Tournié, N. Grandjean, A. Trampert, J. Massies, et K. H. Ploog, « Surfactant-mediated molecular-beam epitaxy of III-V strained-layer heterostructures », *J. Cryst. Growth*, vol. 150, p. 460-466, mai 1995.
- [51] A. Trampert, E. Tournie, et K. H. Ploog, « Influence of the Growth Mode on the Microstructure of Highly Mismatched InAs/GaAs Heterostructures », *Phys. Status Solidi A*, vol. 145, n° 2, p. 481-489, oct. 1994.
- [52] P. Chen, « Mechanisms of strained island formation in molecular-beam epitaxy of InAs on GaAs(100) », *J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanometer Struct.*, vol. 12, n° 4, p. 2568, juill. 1994.
- [53] B. Tongbram *et al.*, « Optimization of InAs quantum dots through growth interruption on InAs/GaAs quantum dot heterostructure », *J. Lumin.*, vol. 192, n° Supplement C, p. 89-97, déc. 2017.

- [54] T. I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D. a. A. Ohlberg, et R. Stanley Williams, « Evolution of Ge islands on Si(001) during annealing », *J. Appl. Phys.*, vol. 85, n° 2, p. 1159-1171, déc. 1998.
- [55] K. Pötschke *et al.*, « Ripening of self-organized InAs quantum dots », *Phys. E Low-Dimens. Syst. Nanostructures*, vol. 21, n° 2, p. 606-610, mars 2004.
- [56] M. Arzberger, U. Käsberger, G. Böhm, et G. Abstreiter, « Influence of a thin AlAs cap layer on optical properties of self-assembled InAs/GaAs quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, n° 25, p. 3968-3970, déc. 1999.
- [57] J. M. García, T. Mankad, P. O. Holtz, P. J. Wellman, et P. M. Petroff, « Electronic states tuning of InAs self-assembled quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 72, n° 24, p. 3172-3174, juin 1998.
- [58] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, et J.-S. Lee, « A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35  $\mu\text{m}$  from strain-reduced InAs quantum dots covered by In<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As grown on GaAs substrates », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, n° 8, p. 1111-1113, févr. 1999.
- [59] Y. Zhao, S. J. C. Mauger, N. Bertru, H. Folliot, T. Rohel, et P. M. Koenraad, « Volmer-Weber InAs quantum dot formation on InP (113)B substrates under the surfactant effect of Sb », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, n° 3, p. 033113, juill. 2014.
- [60] Q. Xie *et al.*, « Realization of optically active strained InAs island quantum boxes on GaAs(100) via molecular beam epitaxy and the role of island induced strain fields », *J. Cryst. Growth*, vol. 150, p. 357-363, mai 1995.
- [61] A. Hospodková *et al.*, « Graded GaAsSb strain reducing layers covering InAs/GaAs quantum dots », *J. Cryst. Growth*, vol. 370, p. 303-306, mai 2013.
- [62] P. Klenovský, V. Křápek, D. Munzar, et J. Humlíček, « Electronic structure of InAs quantum dots with GaAsSb strain reducing layer: Localization of holes and its effect on the optical properties », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, n° 20, p. 203107, nov. 2010.
- [63] G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall, et J. Harris J. S., « Vertically Aligned and Electronically Coupled Growth Induced InAs Islands in GaAs », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, n° 6, p. 952-955, févr. 1996.
- [64] R. Heitz *et al.*, « Excited states and energy relaxation in stacked InAs/GaAs quantum dots », *Phys. Rev. B*, vol. 57, n° 15, p. 9050-9060, avr. 1998.
- [65] J. Tersoff, C. Teichert, et M. G. Lagally, « Self-Organization in Growth of Quantum Dot Superlattices », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, n° 10, p. 1675-1678, mars 1996.
- [66] C. Teichert, M. G. Lagally, L. J. Peticolas, J. C. Bean, et J. Tersoff, « Stress-induced self-organization of nanoscale structures in SiGe/Si multilayer films », *Phys. Rev. B*, vol. 53, n° 24, p. 16334-16337, juin 1996.
- [67] L. Ouattara, A. Mikkelsen, E. Lundgren, M. Borgström, L. Samuelson, et W. Seifert, « Stacked InAs quantum dots in InP studied by cross-sectional scanning tunnelling microscopy », *Nanotechnology*, vol. 15, n° 12, p. 1701, 2004.
- [68] M. Borgstrom, L. Samuelson, W. Seifert, A. Mikkelsen, L. Ouattara, et E. Lundgren, « Spontaneous InAs quantum dot nucleation at strained InP/GaInAs interfaces », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, n° 23, p. 4830-4832, déc. 2003.
- [69] P. Lever, H. H. Tan, et C. Jagadish, « InGaAs quantum dots grown with GaP strain compensation layers », *J. Appl. Phys.*, vol. 95, n° 10, p. 5710-5714, mai 2004.
- [70] Q. Xie, P. Chen, et A. Madhukar, « InAs island-induced-strain driven adatom migration during GaAs overlayer growth », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 65, n° 16, p. 2051-2053, oct. 1994.

[71] J. He *et al.*, « Formation of columnar (In,Ga)As quantum dots on GaAs(100) », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, n° 14, p. 2771-2773, oct. 2004.

## Chapitre 4 Vers un dispositif laser

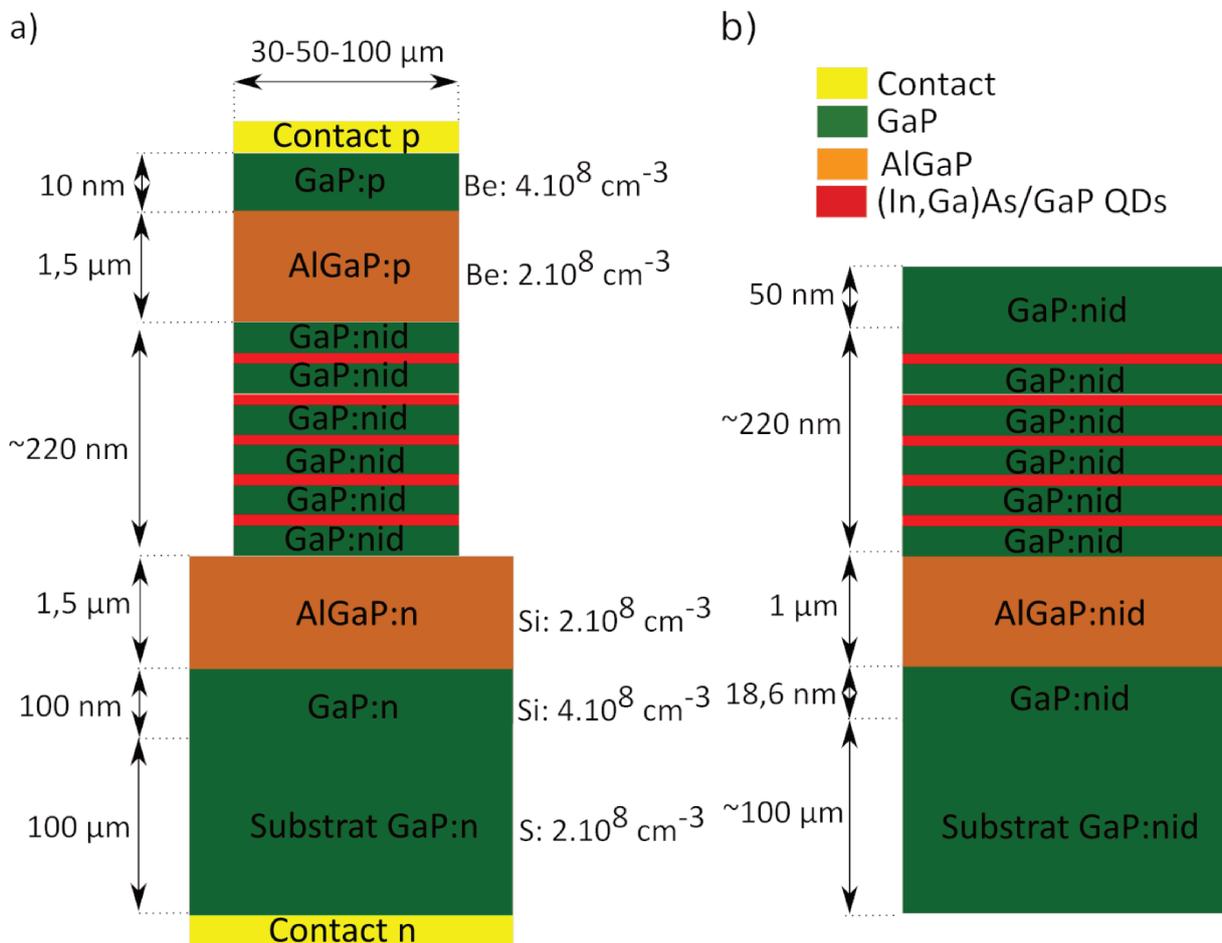
L'architecture des structures lasers GaP est, tout d'abord, présentée avant de discuter l'absence d'effet laser dans les structures lasers destinées au pompage électrique. Afin de s'affranchir de la complexité des procédés technologiques nécessaires à l'injection électrique, l'étude insiste plus particulièrement sur les résultats obtenus sous pompage optique. Les structures lasers utilisées sont composées de plans de QDs (In,Ga)As/GaP optimisés en accord avec les conclusions du Chapitre 3. Enfin, dans le cadre d'une architecture de multi-processeurs 3D, une comparaison des différentes sources lasers à l'état de l'art intégrées ou potentiellement intégrables sur Si est présentée. Les simulations Silvaco ont été réalisées dans le cadre d'une collaboration interne au laboratoire FOTON-OHM par Y. Huang. La croissance des échantillons a été réalisée par T. Rohel. Les mesures de pompage optiques ont été réalisées par Y. Léger et moi-même. Pour ce qui est des mesures de pompages électriques, elles ont été réalisées en collaboration avec J.P. Gauthier.

### 4.1. Architecture laser

La structure laser est basée sur une zone active composée d'un empilement de plans de QDs (In,Ga)As/GaP (partie 3.5) entourée de couches de confinements dopées d'AlGaP (Chapitre 2) d' $1,5 \mu\text{m}$  avec pour objectif l'obtention d'un laser électrique à base de GaP sur silicium. L'alternative à l'utilisation d'AlGaP dans les structures lasers GaP [1], [2] est le B GaP [3] qui a l'avantage d'être en accord de maille avec le Si. Cependant sa structure de bande n'a pas été étudiée en profondeur [4] et sa croissance est peu aisée par MBE [5]. De même que le GaP, l'AlGaP est un semiconducteur présentant un gap indirect avec le minimum de la bande conduction en X [6]. La composition des couches d'AlGaP pour les différentes structures lasers sera discutée en section 4.1.1. La cavité optique est définie de part et d'autre par deux miroirs réalisés par l'interface semiconducteur-air de réflectivité  $R$  d'environ 30 %. Aucun traitement haute réflectivité n'a été réalisé sur les facettes. Des schémas des structures lasers destinées respectivement au pompage électrique et optique sont présentés dans la Fig. 4.1. Les processus technologiques mis en place pour la réalisation de ces structures sont décrits dans la partie 4.1.3.

Le dopage non intentionnel dans les deux structures est de l'ordre de  $10^{16} \text{cm}^{-3}$ . La structure destinée au pompage électrique (Fig. 4.1a) correspond à une jonction p-i-n avec

deux contacts ohmiques de part et d'autre de la jonction. La configuration des contacts est ici « top-bottom » mais elle peut être « top-top » avec un report de contact n en périphérie du laser par gravure. Le dopant p est le Be, le dopant n est le Si et le dopant n du substrat est le S. Les niveaux de dopage des couches sont présentés dans la Fig. 4.1a. La zone intrinsèque correspond à la zone active composée de plans QDs (In,Ga)As/GaP et de barrières GaP. La structure laser est un ruban de largeur 30, 50 ou 100  $\mu\text{m}$  et est gravée jusqu'à la couche d'AlGaP:n inférieure.



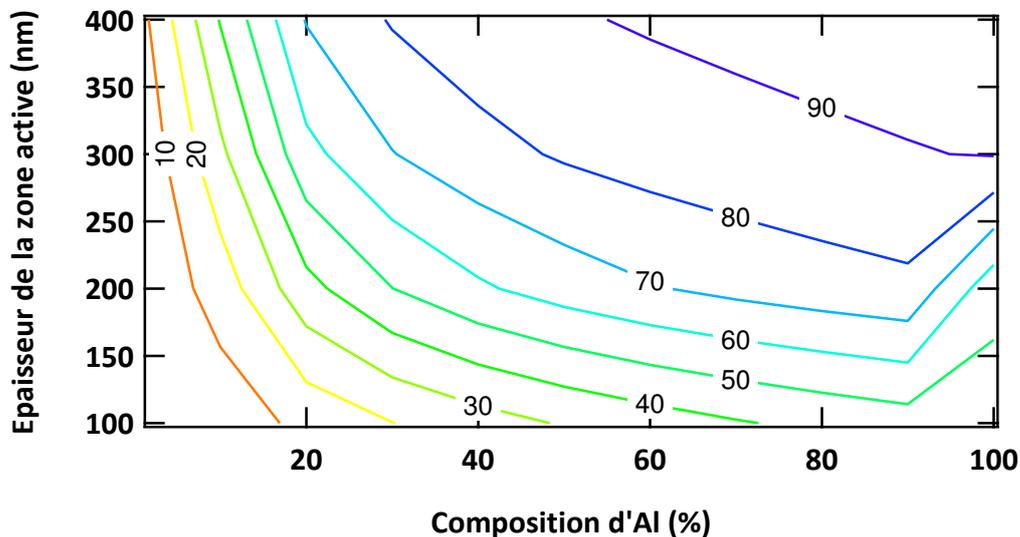
**Fig. 4.1 Structures lasers GaP épitaxiées composées de cinq plans de QDs (In,Ga)As/GaP destinées au pompage a) électrique et b) optique. Le dopage p est réalisé à l'aide d'une cellule de Be et le dopage n par une cellule de Si. Le dopage du substrat GaP:n est réalisé par du S. Le niveau de dopage non-intentionnel est de l'ordre de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .**

Pour le laser à pompage optique, la couche de confinement supérieure d'AlGaP est supprimée pour augmenter le confinement optique dans le ruban. Ce choix se justifie car les recombinaisons de surfaces de GaP sont faibles [7]. Le substrat GaP ainsi que toute la structure est non-intentionnellement dopé. Cette structure ne nécessite que peu de processus technologiques et est un outil puissant afin de caractériser les zones actives ainsi

que la cavité optique. Le premier élément important qui est à prendre en compte est la maîtrise du confinement optique des couches d'AlGaP.

#### 4.1.1. Confinement optique

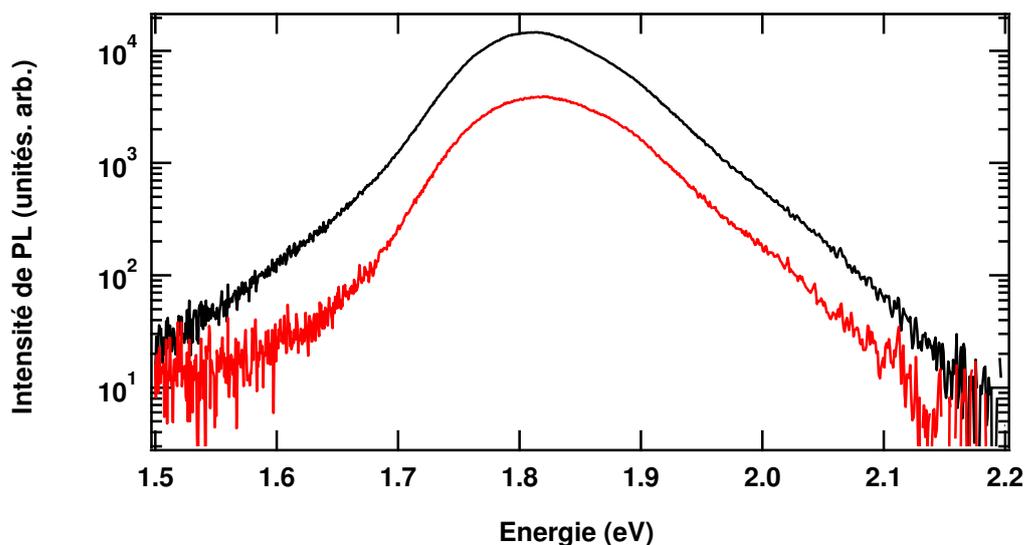
Le confinement optique  $\Gamma_c$  vertical, défini par la formule ( 1.15 ) du Chapitre 1, est assuré par l'AlGaP.  $\Gamma_c$  est calculé par la méthode des éléments finis en fonction de deux paramètres : le pourcentage d'Al qui va modifier l'indice optique de gaine [6] et l'épaisseur de la zone active (QDs et matériaux barrières). Dans le cas présenté dans la Fig. 4.2, l'épaisseur des couches d'AlGaP (1,5  $\mu\text{m}$ ) est considérée comme grande devant la pénétration des modes dans la gaine.



**Fig. 4.2** Facteur de confinement  $\Gamma_c$  en fonction du pourcentage d'Al et de l'épaisseur de la zone active (QDs et barrières) pour des épaisseurs de couches de confinements d'AlGaP grandes devant celle de la zone active. Le calcul de  $\Gamma_c$  a été réalisé à la longueur d'onde d'émission des QDs (In,Ga)As/GaP  $\sim 680$  nm.

On constate que plus la composition d'Al ainsi que l'épaisseur de la zone active augmentent plus  $\Gamma_c$  est important ce qui est cohérent avec l'augmentation de l'indice optique et du volume de la zone active. Pour le laser à injection électrique, le pourcentage d'Al est de 35 % et l'épaisseur de la zone active est de l'ordre de 220 nm ce qui correspond à un facteur de confinement optique de 60 %. Pour ce pourcentage d'Al, les niveaux de dopages obtenus sont proches de ceux du GaP (partie 2.5). Ce pourcentage d'Al permet de garantir à la fois de bonnes propriétés optiques et électriques, et de limiter la fuite des porteurs vers l'interface de type II AlGaP/GaP. Ce dernier point sera discuté dans la section

suivante. Dans ce cas, le maximum du champ électrique du mode optique confiné est au milieu de la zone active. Pour le laser à pompage optique, le pourcentage d'Al est porté à 70 % de façon à augmenter  $\Gamma$ . Le maximum du champ électrique est décentré dû à l'absence de couche de confinement d'AlGaP supérieure. La position des plans de QDs est donc modifiée en conséquence de façon à avoir un recouvrement optimal des plans de QDs (In,Ga)As/GaP. Aucune relaxation n'est observée dans l'AlGaP pour cette composition en Al (figure 2.1). De plus, ce choix est conditionné par la possibilité d'obtenir une bonne sélectivité de gravure avec le GaP [8] de façon à réaliser des structures suspendues comme des micro disques [9]. Nous n'avons donc pas cherché à aller au-delà de 70 % d'Al. Enfin, la qualité cristalline de la couche d'AlGaP épitaxiée est essentielle afin d'éviter l'apparition de pertes non-radiatives dans la structure optique. La température de cellule d'Al sera donc choisie en conséquence [10] comme discuté dans le Chapitre 2. Dans la suite, les QDs (In,Ga)As/GaP seront donc réalisées sur GaP/AlGaP/GaP et non pas directement sur GaP. Cette différence peut entraîner des modifications de l'énergie totale de formation des QDs (équation ( 1.10 )) avec par exemple la modification de la planéité de la surface avant nucléation malgré l'absence de relaxation cristalline et de dislocations (Chapitre 2). Ce changement entraîne aussi une modification de la PL des QDs comme c'est le cas, ici en Fig. 4.3.



**Fig. 4.3** Comparaison de l'intensité de photoluminescence à température ambiante entre 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP réalisés sur GaP (courbe noire, échantillon S1631) et sur GaP/AlGaP (courbe rouge, échantillon S1647) pour une même puissance d'excitation.

L'allure des spectres de PL est la même mais l'intensité de PL des QDs est plus faible sur GaP/AlGaP que sur GaP. Cette baisse de PL s'explique par une possible modification de la morphologie des QDs, la présence d'un raccord de bande de type-II qui implique la perte de porteurs aux interfaces et la présence d'un plus grand nombre de défauts non-radiatifs. Cependant, on considèrera que la structure électronique fondamentale est identique aux QDs (In,Ga)As/GaP réalisées sur GaP.

#### 4.1.2. Injection électrique

La couche d'AlGaP supérieure est dopée p avec du Be et la couche inférieure est dopée n avec du Si. Le dopage visé étant de l'ordre de  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Les différences entre le dopage visé et le dopage obtenu ainsi que le choix de la température de la cellule de dopant (et de l'Al) ont été discutées dans le Chapitre 2 et dans [10]. Les contacts électriques ohmiques sont Pd/Zn/Pd [11] et Ni/Au/Ge/Au [5] pour le contact p et n respectivement. Une jonction p-i-n est donc réalisée avec la zone active d'(In,Ga)As/GaP non dopée malgré une possible diffusion du Be suivant les paramètres de croissances [13]–[15]. Le raccord de bande AlGaP/GaP est de type-II (cf. [6]) avec les électrons dans la bande X de l'AlGaP et les trous dans la bande  $\Gamma$  du GaP. Cette alignement de bande va avoir une influence sur l'efficacité d'injection des porteurs avec la présence d'une barrière de potentiel pour les électrons à l'interface AlGaP:n/GaP:nid et une pour les trous à l'interface GaP:p/AlGaP:p comme illustré par la simulation de structure de bande présentée en Fig. 4.4. L'alignement de bande présenté correspond à une structure laser électrique composée de 5 QWs entourés de couches de confinement d'AlGaP dopés sur substrat GaP:n pour une polarisation de 3 V obtenu à l'aide du logiciel SILVACO. La barrière de potentiel pour les trous est moins problématique que pour les électrons car la couche de GaP:p avant le contact p est fortement dopée de façon à aider les trous à se mouvoir à travers l'interface sans perturber la zone active. La possible diffusion de dopants p (Be) [15], [20] dans nos QDs n'est pas forcément dommageable car un dopage p intentionnel de la zone active peut augmenter la température caractéristique du dispositif laser [21]. De façon à conjuguer une injection électrique de qualité et un bon confinement optique, de nombreuses structures lasers sont basées sur l'utilisation d'un gradient de composition et de dopage des couches de confinements [22]–[24]. Heideman *et al.* [1] ont notamment proposé d'introduire une couche graduelle de  $\text{GaAs}_x\text{P}_{1-x}$  avant le contact p de façon à éviter une barrière de potentiel

trop abrupte et à avoir accès à des niveaux de dopages plus élevés [25] et ainsi faciliter le transport des trous. La barrière de potentiel pour les électrons est plus problématique car la proximité avec la zone intrinsèque et donc du mode optique guidé rend difficile l'augmentation des niveaux de dopage proche de la zone intrinsèque sans ajouter des pertes optiques. Cependant d'autres techniques comme le delta doping [26] ou le gradient de dopage peuvent être mises en place afin de réduire l'influence de la barrière pour électrons, malgré l'augmentation de pertes par porteurs libres.

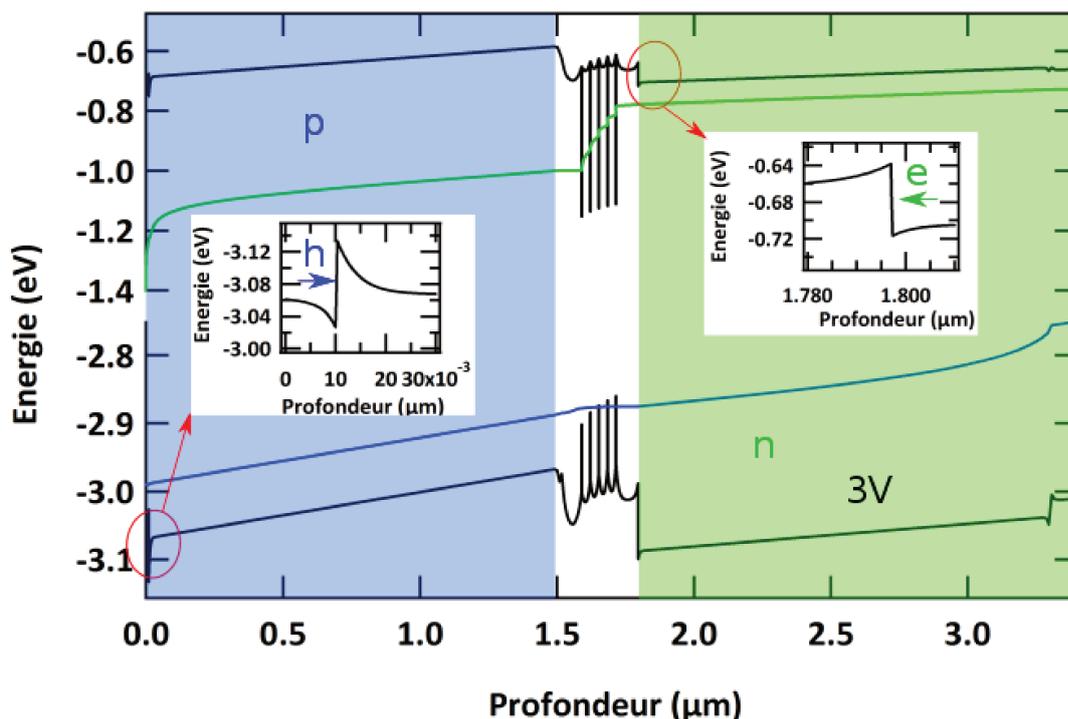
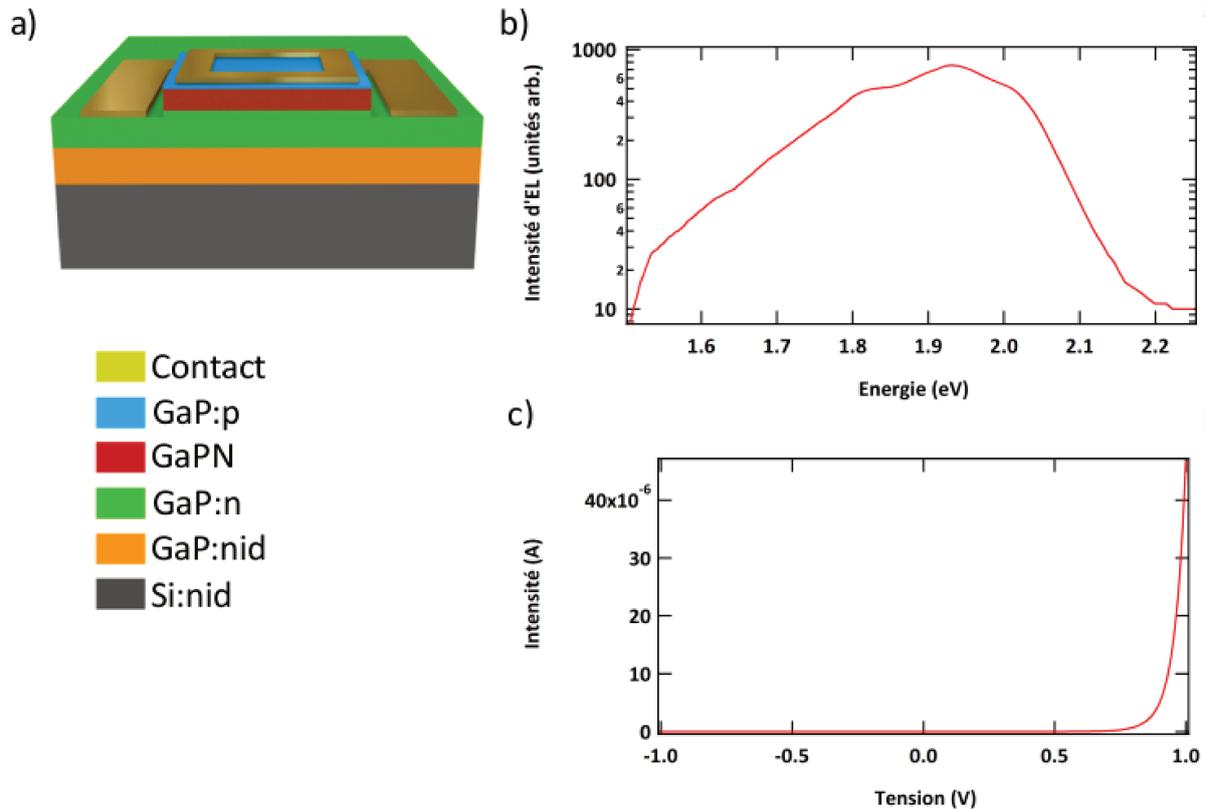


Fig. 4.4 Alignement de bande de la structure laser électrique composée de cinq QWs entourés de couches de confinement d'AlGaP dopées sur substrat GaP:n. La partie dopée p (n) est définie par la couleur bleu (verte). La ligne bleu (verte) correspond au quasi-niveau de Fermi des électrons (trous)  $F_e$  ( $F_v$ ). Les niveaux de dopage sont  $4 \cdot 10^{18}$ ,  $2 \cdot 10^{18}$ ,  $10^{16}$ ,  $2 \cdot 10^{18}$ ,  $4 \cdot 10^{18}$  et  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  pour le GaP:p, l'AlGaP:p, GaP:und, AlGaP:n, GaP:n et le substrat GaP:n. La polarisation est de 3 V et l'alignement de bande a été calculé par le logiciel Silvaco à 0 K. La référence est l'affinité du vide.

#### 4.1.3. Procédé technologique

Le développement technologique d'un laser GaP/Si requiert de lever un certain nombre de verrous comme la maîtrise de la qualité structurale de la plateforme GaP/Si, la maîtrise de l'injection électrique et la maîtrise de la zone active à base de GaP. Deux de ces verrous ont pu être levés par la démonstration de l'électroluminescence des diodes GaPN/GaP sur substrat Si. La structure de ces diodes est présentée dans la Fig. 4.5a. Les contacts p et n sont pris sur le GaP dopé dans une configuration top-top et la zone active est une couche épaisse

de GaPN. L'électroluminescence obtenue à température ambiante (Fig. 4.5b) correspond aux longueurs d'onde d'émission du GaPN [27]. Pour ce qui est de la courbe I(V) associée (Fig. 4.5c), la tension de seuil est de l'ordre de 0,7 eV et est liée à la présence de résistances de shunt dans la structure épitaxiée.

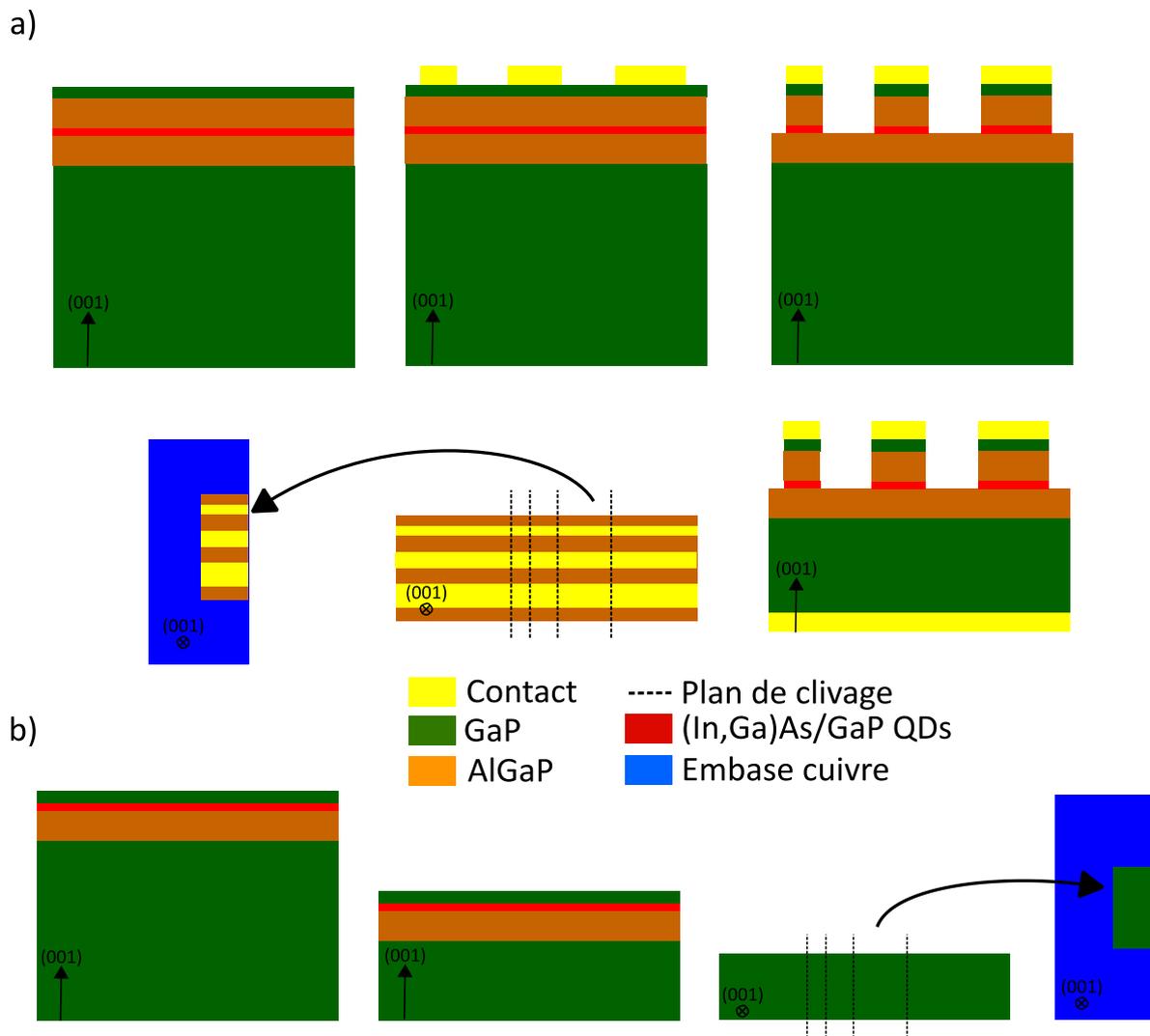


**Fig. 4.5 a) Structure de la diode GaPN/GaP sur substrat Si étudiée. b) Electroluminescence de cette diode et b) courbe I(V) associée à température ambiante. L'échantillon correspondant est le S1695.**

Ces résultats démontrent une bonne maîtrise de l'interface GaP/Si et de l'injection électrique dans les structures GaP malgré les faibles longueurs de diffusion dans GaP [7] et les difficultés de réaliser les procédés technologiques dans cette filière [28].

Dans la suite, la croissance et les procédés technologiques seront donc réalisés sur substrat GaP de façon à se concentrer uniquement sur la problématique de la zone active : les QDs (In,Ga)As/GaP. Le procédé technologique utilisé pour la réalisation de lasers à injection électrique est présenté dans la Fig. 4.6a. Après un traitement à l'acide fluorhydrique, les contacts métalliques p : Pd/Zn/Pd sont déposés à l'aide d'un évaporateur à effet joule sur la structure épitaxiée GaP:p/AlGaP:p/Zone active/AlGaP:n/GaP:n sur substrat GaP:n puis développés de façon à obtenir les largeurs des rubans suivants : 30, 50 et 100  $\mu\text{m}$ . Les

rubans sont définis par gravure sèche par ICP jusqu'à la couche d'AlGaP:n. Ensuite, le substrat GaP est aminci de façon à obtenir une épaisseur de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Le contact métallique n : Ni/Au/Ge/Ni/Au est ensuite déposé par canon à électron sur le substrat GaP. Puis, la structure subit un recuit thermique rapide à 540  $^{\circ}\text{C}$  de façon à obtenir des contacts ohmiques. Pour le contact p, une résistance caractéristique proche de celle obtenue sur substrat InP a été mesurée [29] validant la maîtrise de l'injection électrique sur GaP. Enfin, La longueur des barrettes lasers est définie par clivage puis celles-ci sont collées sur une embase cuivre de façon à pouvoir avoir une meilleure dissipation de chaleur.



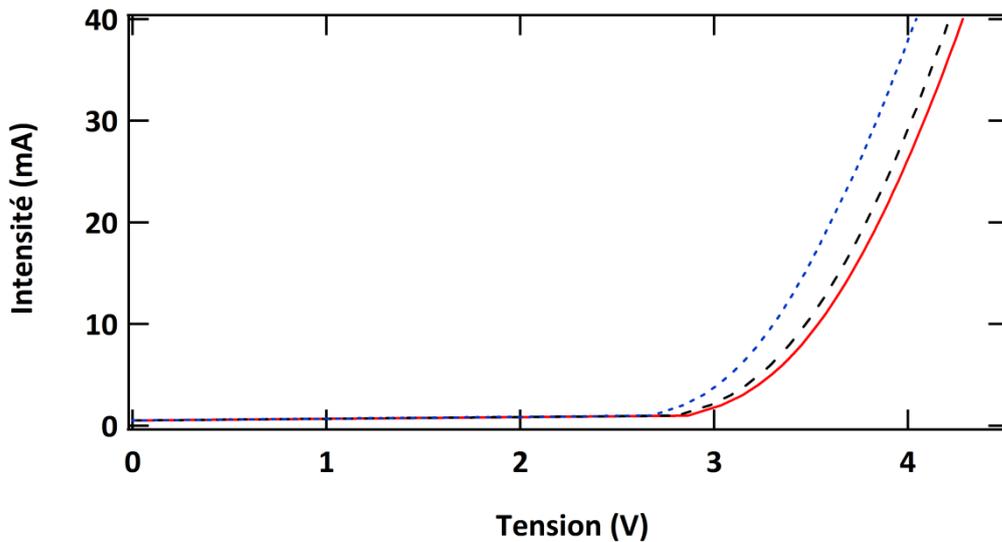
**Fig. 4.6** Processus technologique pour la réalisation de laser (In,Ga)As/GaP à injection a) électrique et b) optique. Les dopages p, n, et nid ne sont pas représentés ici. Pour le pompage électrique, les dimensions des rubans sont 30, 50 et 100  $\mu\text{m}$  et la taille des barrettes réalisées varie entre 0,5 et 3 mm. Pour le pompage optique, la taille des barrettes est de 0,5, 1 et 3 mm.

Le pompage optique est un outil puissant d'analyse de la zone active qui a l'avantage de nécessiter des croissances et des procédés technologiques moins complexes : absence de couche dopée et de contacts électriques. Dans notre cas, le substrat sur lequel la structure a été réalisée est aminci. Ensuite, la longueur de la cavité optique est définie par clivage puis l'ensemble est reporté sur une embase cuivre. Le procédé technologique pour une structure laser destinée au pompage optique est résumé dans la Fig. 4.6b.

Après avoir présenté les procédés technologiques pour la réalisation de structures laser GaP, nous nous intéresserons dans les deux sections suivantes aux mesures de pompage électrique et optique dans ces dispositifs.

## 4.2. Pompage électrique

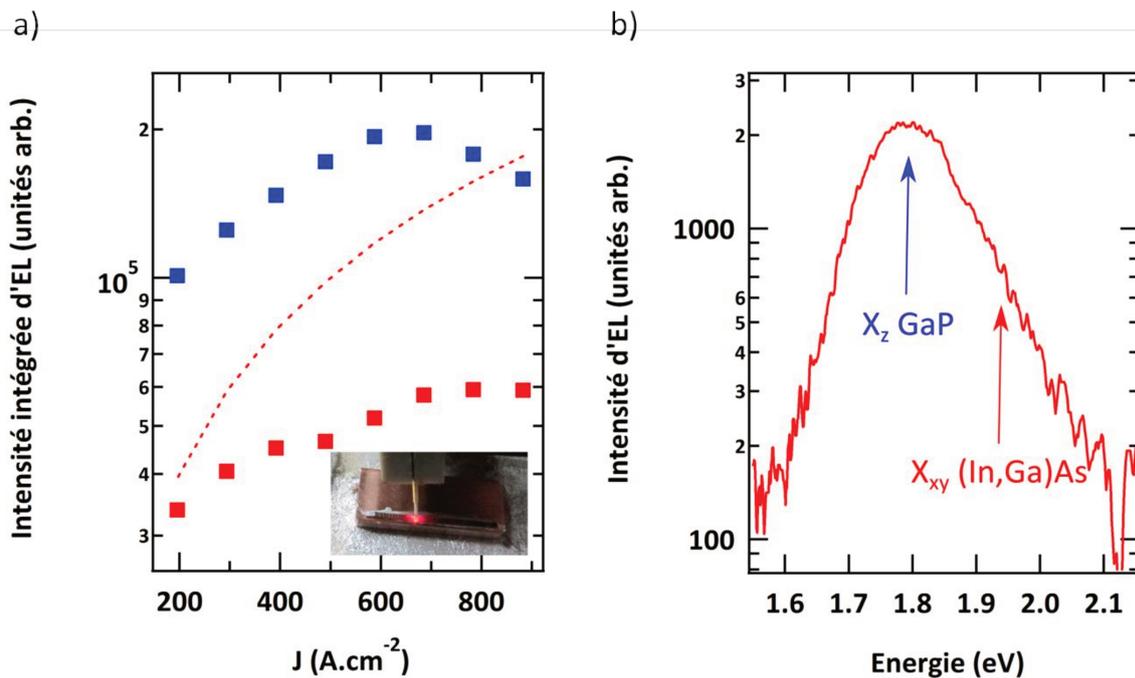
Le dispositif expérimental utilisé correspond à une injection électrique sous pointe à l'intérieur d'un cryostat refroidi à l'azote. L'électroluminescence est collectée par un monochromateur puis détectée par une CCD Si. La zone active utilisée pour la structure laser destinée au pompage optique correspond à un empilement de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP réalisé à une température de 550 °C et ayant été recuits 30 s sous un flux d'As. L'épaisseur d'(In,Ga)As déposée est 3 ML et la composition d'In effective est de l'ordre de 10 %. Les caractéristiques I(V) des trois rubans de largeur : 30, 50 et 100  $\mu\text{m}$  sont présentés dans la Fig. 4.7. La tension de seuil est de l'ordre de 3,4 V. Cette valeur est supérieure à 1,3 V, obtenue par Song *et al.* [30] pour leur diode (In,Ga)As/GaP sur substrat Si. Cette différence provient d'une part, de la présence probable de résistances de shunt au sein de la diode sur Si de Song *et al.* [30] et d'autre part, de résistances séries dans notre structure GaP sur substrat GaP qui sont dues à un problème de dopage des couches d'AlGaP.



**Fig. 4.7** Caractéristique  $I(V)$  de la structure laser GaP pour trois largeurs de rubans : 30 (courbe rouge), 50 (courbe noire discontinue) et 100 (courbe bleue pointillée)  $\mu\text{m}$ . La longueur de la cavité optique est 1 mm. La résistance série est de l'ordre de 20  $\Omega$ . L'échantillon correspondant est le S1495.

A la suite de ce résultat, le creuset de la cellule de dopant a été modifié et la cellule d'Al changée comme discuté dans le Chapitre 2. L'injection électrique en vue de l'obtention d'un effet laser dans la structure laser composée de QDs (In,Ga)As/GaP sur substrat GaP:n a été réalisée à 77 K. Les résultats de pompage électrique en régime continu sont présentés en Fig. 4.8. L'intensité intégrée d'électroluminescence de la transition  $X_{z \text{ GaP}}$  augmente de façon sous-linéaire (coefficient 0.64) en fonction de l'intensité injectée de 196 à 588  $\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Un phénomène de saturation de l'intensité intégrée d'électroluminescence est observé à 686  $\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$  suivi d'un déclin (coefficient 0.87) pour des valeurs de densités de courants injectées supérieures. La transition à plus haute énergie, ici  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ , augmente de façon sous-linéaire (coefficient 0.46) avec la densité de courant injectée jusqu'à un début de saturation obtenue pour 686  $\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ . La transition à plus basse énergie ( $X_{z \text{ GaP}}$ ) présente une évolution plus linéaire que la transition à plus haute énergie ( $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ ) et les coefficients d'évolution associés sont compatibles avec une contribution dominante d'un effet Auger non radiatif par rapport aux autres mécanismes de recombinaison [31], [32]. Concernant le phénomène de saturation et de déclin, il est aussi observé dans des jonctions PIN composés de QDs InAs/GaAs [33], [34] et il est lié à un effet thermique ainsi qu'à une redistribution d'énergie entre les porteurs. Pour une forte densité de porteurs injectés, la température des électrons ne correspond pas à la température du réseau. Une partie des électrons de  $X_{z \text{ GaP}}$ , la

transition la plus basse en énergie, sont donc transférés à la transition  $X_{xy}(\text{In,Ga})\text{As}$  ce qui explique la seule baisse de la transition  $X_z \text{GaP}$ . Aucune évidence d'un comportement sur-linéaire n'est donc observée sur l'évolution de l'intensité intégrée quel que soit la transition. Le spectre d'électroluminescence obtenu (Fig. 4.8b) pour une intensité de  $784 \text{ A.cm}^{-2}$  correspond bien à l'émission spontanée de QDs  $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$ . Comme dans le cas d'un plan de QDs réalisé dans les mêmes conditions (Fig. 3.33a), la transition à plus basse énergie est  $X_{xy} \text{GaP}$ . Malgré la hausse de PL observée suite à l'empilement de plans de QDs (partie 3.5), aucune modification notable de la structure électronique n'est constatée.

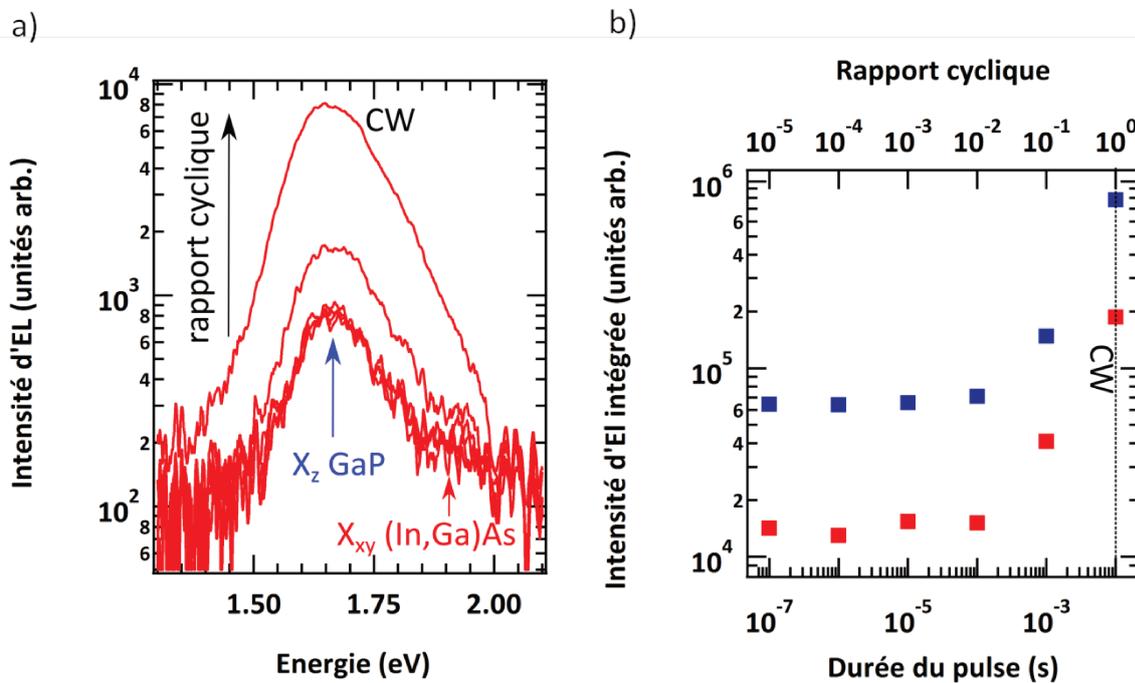


**Fig. 4.8 a) Intensité intégrée d'électroluminescence d'une structure laser composée de 5 plans de QDs  $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$  en fonction de l'intensité injectée à 77 K pour un ruban de  $30 \mu\text{m}$  avec la transition  $X_z \text{GaP}$  (en bleue) et la transition  $X_{xy}(\text{In,Ga})\text{As}$  (en rouge). L'insert est une photo de l'électroluminescence de cette structure laser GaP de longueur  $1 \text{ mm}$  reportée sur une embase cuivre. La ligne pointillée est un guide pour les yeux et correspond à une évolution linéaire de l'intensité intégrée d'EL en fonction de la densité de courant. b) Spectre d'électroluminescence associé pour une intensité injectée de  $686 \text{ A.cm}^{-2}$ . L'échantillon correspondant est le S1495.**

De façon à diminuer l'effet joule induit par l'injection continue, l'injection électrique a été réalisée de façon pulsée cependant aucun effet laser n'a été observé quel que soit l'intensité injectée. Pour comparaison, Heidemman *et al.* [1] observent un effet laser en pulsé à 80 K avec un seuil de  $4.2 \text{ kA/cm}^2$  pour une zone active composée de 3 plans de QDs  $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$  entourée d' $\text{AlGaP}$  dopés p:Be et n:Si sur substrat GaP:n. La dimension du laser utilisé est  $1000 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ . La durée du pulse d'excitation est de 300 ns et sa fréquence est

1 kHz. Ce seuil, bien qu'accessible par notre alimentation, est bien supérieur à la valeur où l'électroluminescence de notre structure laser sature et décroît. Cependant, la valeur de seuil élevée atteste du fait que l'injection électrique dans les structures GaP n'est pas aisée dû à la présence d'interfaces de type-II et de matériaux ayant un gap indirect.

A densité de courant et fréquence constante ( $784 \text{ A.cm}^{-2}$  et  $100 \text{ Hz}$ ), le rapport cyclique et donc la durée du pulse a été modifié de  $100 \text{ ns}$  à  $10 \text{ ms}$ . Les spectres d'EL obtenus sont présentés dans la Fig. 4.9a. On observe une augmentation de l'intensité d'EL en fonction du rapport cyclique donc de la durée d'impulsion. L'évolution de l'intensité intégrée d'EL des deux transitions :  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  est décrite au sein de la Fig. 4.9b.



**Fig. 4.9 a) Spectre d'EL et b) intensité intégrée d'EL en fonction de la durée du pulse d'excitation pour une injection électrique pulsée. Les marqueurs bleus et rouges correspondent aux transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ . La fréquence et la densité de courant sont de  $100 \text{ Hz}$  et  $784 \text{ A.cm}^{-2}$ . Pour une durée de pulse de  $10 \text{ ms}$ , l'injection électrique pulsée est quasi-continue.**

L'intensité intégrée d'EL des deux transitions reste constante pour des durées de pulse inférieures à  $10^{-4} \text{ s}$  puis augmente jusqu'à l'établissement d'une injection pulsée quasi-continue. Ce comportement peut s'expliquer par trois caractéristiques : le temps de déplacement des porteurs au sein de la zone active, le temps de réponse de la jonction PIN et enfin le temps de vie des porteurs. Le temps de déplacement des porteurs au sein de la zone active peut-être, en première approximation, calculé à l'aide la formule suivante :

$$t = \frac{d_{ZA}}{v} = \frac{d_{ZA}}{\mu E} = \frac{d_{ZA}^2}{\mu V} \quad (4.1)$$

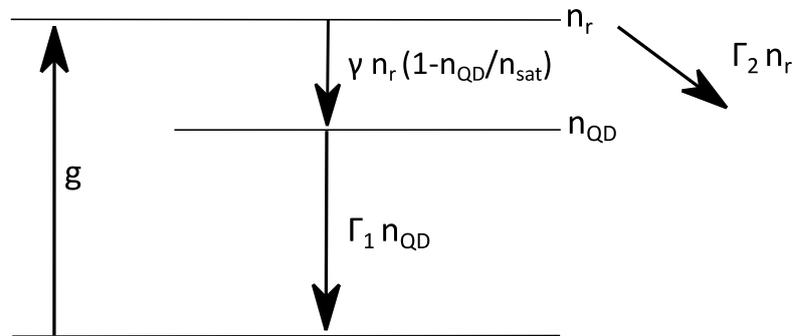
avec  $d_{ZA}$ ,  $v$ ,  $\mu$  et  $V$  étant l'épaisseur de la zone active, la vitesse des porteurs, la mobilité des porteurs et la tension appliquée à la jonction PIN. L'épaisseur de la zone active  $d_{ZA}$ , composée ici de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP, est de 224 nm. La mobilité des porteurs  $\mu$  est prise égale à  $300 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  [35] et la tension appliquée  $V$  est obtenue à l'aide de la courbe  $I(V)$  pour une intensité de 400 mA. Cette tension est nettement inférieure à la tension de claquage du GaP [36]. Pour ces valeurs, on obtient un temps caractéristique de l'ordre de  $2,1 \times 10^{-13} \text{ s}$ . Pour ce qui est du temps de réponse de la diode PIN, il peut lui aussi être approximé à l'aide d'un modèle équivalent électrique composé d'une résistance et d'un condensateur en série. La résistance du modèle est prise égale à la résistance de seuil obtenue à l'aide de la courbe  $I(V) \sim 20 \Omega$  additionné à la résistance interne du générateur  $\sim 50 \Omega$ . La valeur de la capacité est obtenue à l'aide la formule suivante :

$$C = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r S}{d_{ZA}} \quad (4.2)$$

avec  $\epsilon_0$  et  $\epsilon_r$ , la permittivité du vide et la permittivité relative du semi-conducteur,  $S$  et  $d_{ZA}$  la surface et l'épaisseur de la zone active respectivement. La permittivité du GaP est 11,1 [37] et, dans notre cas,  $S$  est égale à  $10^{-7} \text{ m}^2$ . Le temps de réponse de la jonction PIN obtenu est  $2,8 \times 10^{-9} \text{ s}$ . Ce temps de réponse ainsi que le temps de déplacement des porteurs sont bien inférieurs à  $10^{-7} \text{ s}$  qui correspond à la durée la plus faible des pulses utilisés. Ces deux mécanismes ne peuvent donc pas expliquer le comportement observé sur l'évolution de l'EL (Fig. 4.9) en fonction de la durée du pulse à intensité et fréquence constante.

Afin de montrer l'influence du temps de vie de porteurs sur l'évolution de l'électroluminescence avec le rapport cyclique, considérons un modèle à un seul type de porteurs et à deux niveaux (Fig. 4.10) : l'un représentant un réservoir de particules (que nous appellerons barrière, mais qui inclue aussi notamment la couche de mouillage) et un second niveau, saturable, représentant les QDs. Dans ce modèle, les porteurs sont injectés dans la barrière par une source externe. Ils peuvent se recombiner directement au sein de la barrière ou être transférés aux QDs et ainsi se recombiner de façon radiative. Ici, par simplicité, on ne prendra en compte qu'une seule transition au sein des QDs malgré l'identification de deux familles de transitions ( $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ ) et les valeurs de largeurs à

mi-hauteur importantes  $\sim 90$  meV qui témoigne d'une forte inhomogénéité des QDs. De plus, aucune hypothèse ne sera réalisée sur le caractère radiatif/non-radiatif de cette transition.



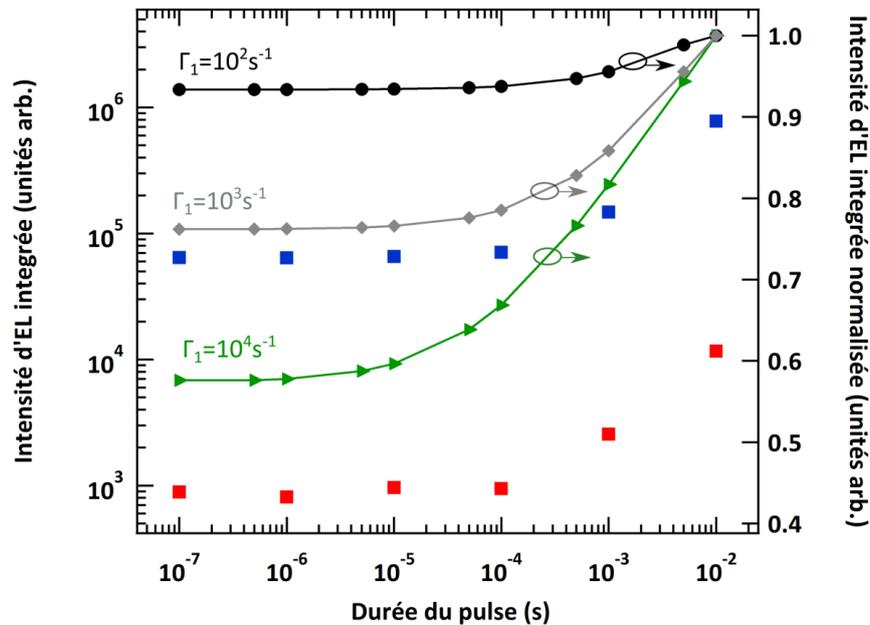
**Fig. 4.10** Représentation schématique du modèle à deux niveaux utilisé avec  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_2$ ,  $\gamma$ ,  $g$  et  $n_{sat}$  étant respectivement le taux de recombinaison des QDs vers le niveau fondamental, le taux de recombinaison de la barrière, le taux de relaxation de la barrière vers les QDs, le taux d'injection de porteurs et le produit densité d'état par la densité de QDs.

La résolution du système d'équations différentielles (4.3) permet donc de simuler la réponse du modèle à un pulse d'excitation (fréquence 100 Hz) d'intensité 400 mA pour différentes durées de pulse.

$$\begin{aligned} \frac{dn_r}{dt} &= g - \Gamma_2 n_r - \gamma \left(1 - \frac{n_{QD}}{n_{sat}}\right) n_r \\ \frac{dn_{QD}}{dt} &= \gamma \left(1 - \frac{n_{QD}}{n_{sat}}\right) n_r - \Gamma_1 n_{QD} \end{aligned} \quad (4.3)$$

Avec  $n_r$  et  $n_{QD}$ , le nombre de porteurs au sein de la barrière et des QDs.  $n_{sat}$  représente le produit densité d'état par la densité de QDs.  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_2$ ,  $\gamma$  et  $g$  sont respectivement le taux de recombinaison des QDs vers le niveau fondamental, le taux de recombinaison de la barrière, le taux de relaxation de la barrière vers les QDs et le taux d'injection de porteurs. Dans notre cas, la valeur de  $g$  utilisée est définie en fonction de l'intensité injectée qui est 400 mA ici. Afin de faciliter le calcul,  $g$  et  $n_{sat}$  sont normalisés par la densité de QDs qui est de l'ordre de  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . La valeur de  $\gamma$  est prise égale à  $5 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$  ce qui correspond à un temps de 20 ps en se basant sur les temps de montée mesurés par C. Robert [38] pour le système de QDs (In,Ga)As/GaP. La valeur de  $\Gamma_2$  est prise égale à  $10^7 \text{ s}^{-1}$  ce qui correspond à un temps de 100 ns [39]. L'intensité d'EL obtenue, qui est la somme de  $n_{QD}$  sur 0,01 s (fréquence de 100 Hz), est présentée en fonction de la durée du pulse d'excitation dans la Fig. 4.11. Les courbes obtenues présentent la même tendance que

l'intensité d'EL expérimentale. L'augmentation de l'intensité d'EL intégrée expérimentale aux environs de  $10^{-4}$  s est bien reproduite par la courbe grise qui correspond à un taux de recombinaison des QDs vers le niveau fondamental de  $10^3 \text{ s}^{-1}$ . On peut donc avoir accès à l'ordre de grandeur du temps de vie total des porteurs dans les QDs, qui est ici de l'ordre de  $10^{-3}$  s.



**Fig. 4.11** Intensité d'EL normalisée obtenue à l'aide du modèle à deux niveaux décrit dans la Fig. 4.10 en fonction de la durée du pulse d'excitation pour différentes valeurs de  $\Gamma_1$  :  $10^2$ ,  $10^3$  et  $10^4 \text{ s}^{-1}$  (respectivement courbe noire, grise et verte). L'intensité d'EL intégrée expérimentale pour les transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  (marqueurs bleus) et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$  (marqueurs rouges) est ajoutée pour comparaison.

Cependant il n'est pas possible, à l'aide de notre modèle, de séparer les temps de vie des transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ . Le comportement observé est donc bien reproduit par un effet de saturation des QDs. En revanche l'effet Auger, même si nous savons qu'il est présent dans la physique du système, ne permet pas de reproduire ce comportement. Le temps de vie estimé des porteurs est donc très long. Ceci est en accord avec l'absence d'effet laser observé. De plus, ce temps est plus important que les temps de vie mesurés par TRPL (partie 3.2.3) qui sont de l'ordre de 100 ns. Il est fort possible que les temps mesurés par TRPL soient sous-estimés du fait d'un effet Auger encore très présent sur les fenêtres temporelles considérées.

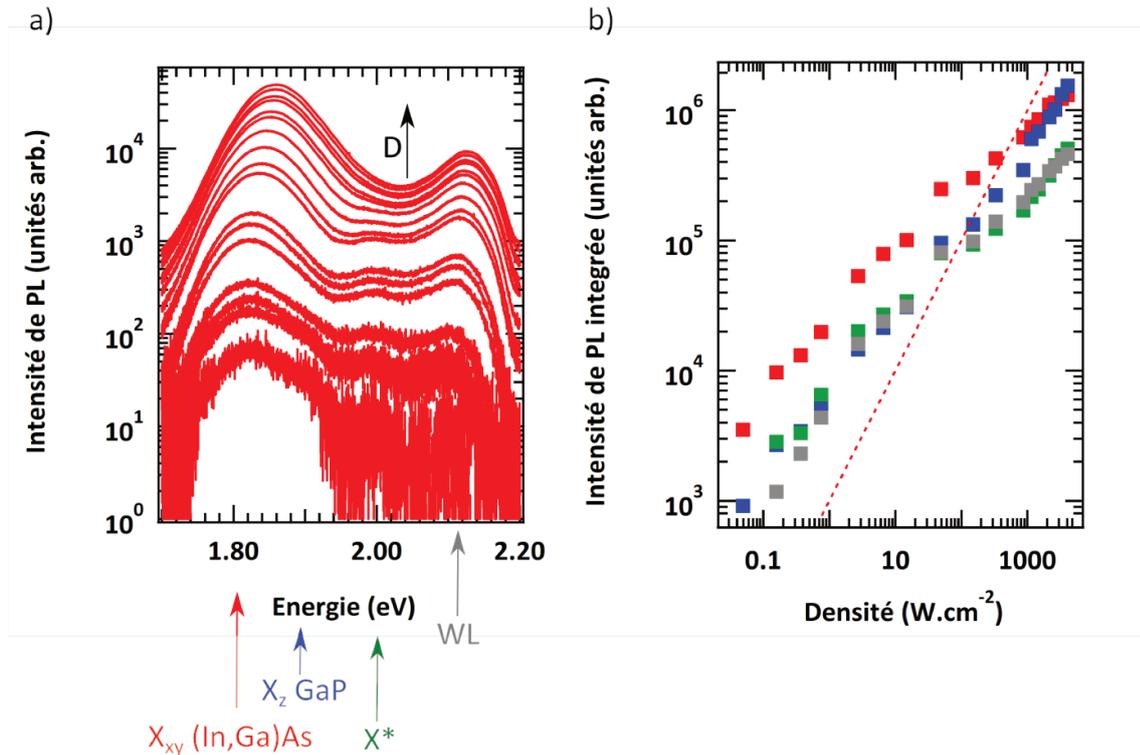
Aucun effet laser n'est obtenu sur les structures pompées électriquement que ce soit en excitation continue ou pulsée. Ce résultat peut s'expliquer par la forte valeur de tension de seuil mesurée qui est vraisemblablement due à des résistances parasites provenant d'un manque de dopage de la couche n et de la qualité de l'AlGaP, mais également bien sûr par l'inefficacité de la zone active. Dans la suite, de façon à passer outre les difficultés liées à l'injection électrique, le pompage optique a été étudié.

### 4.3. Pompage optique

Le dispositif expérimental utilisé est décrit dans l'[annexe E]. L'excitation optique est réalisée par une lentille cylindrique de façon à obtenir un bandeau d'excitation. L'échantillon est placé dans un cryostat refroidi à l'hélium. La collection du signal est réalisée par la tranche puis le signal est dispersé par un monochromateur et enfin détecté par une CCD Si refroidie. La zone active utilisée pour la structure laser destinée au pompage optique est composée de plans de QDs (In,Ga)As/GaP.

#### 4.3.1. QDs avec une faible composition d'In

Dans un premier temps, l'injection optique continue est réalisée dans 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuits 180 s sous flux d'As. La croissance des QDs est réalisée à 550 °C et la composition d'In effective est de l'ordre de 10 %. Les résultats du pompage optique pour une injection continue sont présentés dans la Fig. 4.12. L'évolution des spectres de PL en fonction de la densité d'excitation ne montre la présence d'aucun effet laser ni d'aucune déformation du spectre ce qui signifie que tous les niveaux mis en jeu ont un comportement similaire. On observe les deux transitions discutées dans le Chapitre 3:  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{z \text{ (In,Ga)As}}$  mais aussi deux autres transitions autour de 2 et 2,1 eV. L'origine de la transition à haute énergie est attribuée à la WL des QDs (In,Ga)As/GaP [38] et sera notée WL dans la suite. Le cas de la transition à 2 eV est plus complexe et résulte de la présence d'états excités de l'une ou des transitions  $X_{z \text{ GaP}}$  et  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ . Dans la suite, cette transition sera notée  $X^*$ . Aucun phénomène de saturation ou de déclin n'est observé sur l'évolution de l'intensité intégrée des différentes transitions (Fig. 4.12b).



**Fig. 4.12 a) Spectres de PL et b) intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation continue à 10 K d'une structure laser optique composée de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuit 180 s sous flux d'As réalisée à 550 °C. Les marqueurs rouges, bleus, verts et gris correspondent aux transitions  $X_{xy}(\text{In,Ga})\text{As}$ ,  $X_z \text{ GaP}$ , aux états excités et à la WL. La ligne pointillée est un guide pour les yeux et correspond à une évolution linéaire de l'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation continue. L'échantillon correspondant est le S1647.**

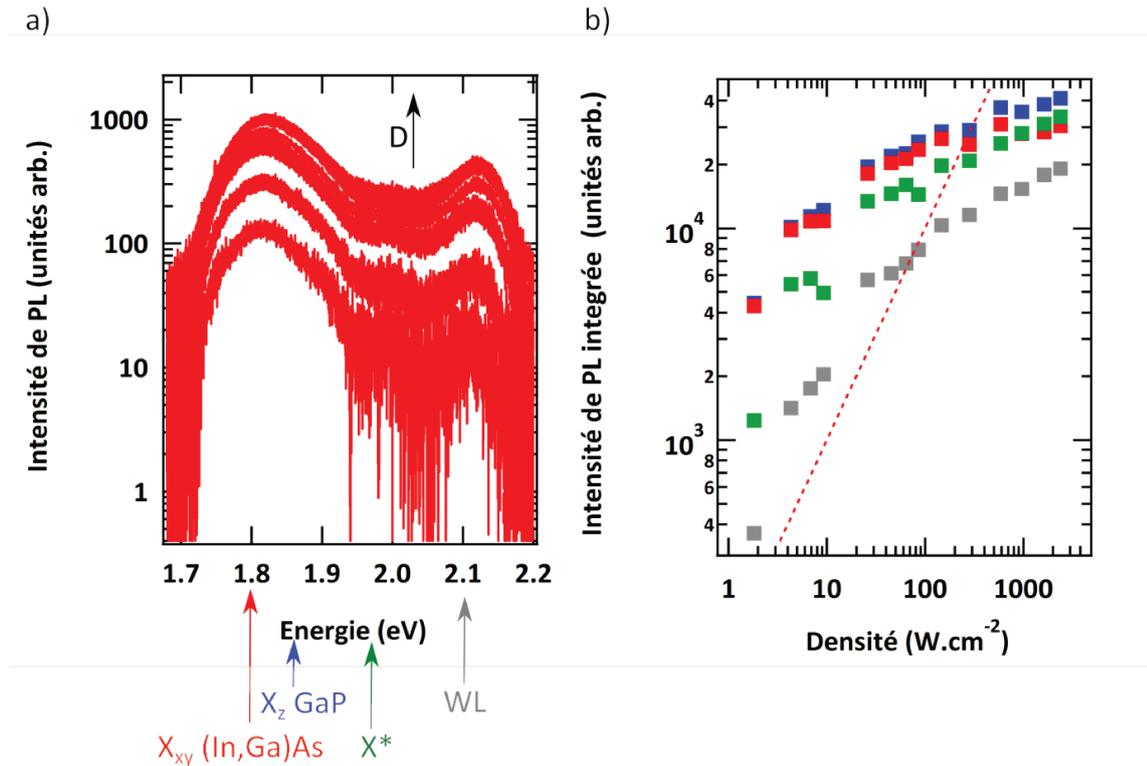
Les coefficients d'évolution des transitions sont présentés dans Tab. 4.1. Pour des densités inférieures à  $870 \text{ W.cm}^{-2}$ , la transition à plus basse énergie, ici  $X_{xy}(\text{In,Ga})\text{As}$ , présente une sous-linéarité moins importante que la transition  $X_z \text{ GaP}$  ce qui implique que l'effet Auger non-radiatif est a priori plus efficace sur  $X_{xy}(\text{In,Ga})\text{As}$  que sur  $X_z \text{ GaP}$ . L'évolution linéaire pour des densités inférieures à  $2,8 \text{ W.cm}^{-2}$  puis sous-linéaire sur le reste des densités pour la WL s'explique par un mélange entre un effet de remplissage de la densité d'état et un effet Auger du au faible confinement. Les coefficients de linéarité pour des densités supérieures à  $871 \text{ W.cm}^{-2}$  sont difficilement exploitables car ils prennent en compte l'apparition progressive d'états excités des transitions  $X_z \text{ GaP}$  et  $X_{xy}(\text{In,Ga})\text{As}$  que nous ne pouvons pas discriminer à cause des largeurs à mi-hauteur importantes de ces transitions ( $\sim 90 \text{ meV}$ ). Cependant, l'absence de déclin des transitions tranche avec les résultats obtenus sur les QDs n'ayant subies qu'un recuit sous flux d'As de 30 s. L'augmentation du recuit à 180 s sur les

QDs a donc bien entraîné une modification de la structure électronique des QDs sans toutefois atteindre l'effet laser en excitation continue.

	q	
	< 871 W.cm <sup>-2</sup>	> 871 W.cm <sup>-2</sup>
X <sub>xy</sub> (In,Ga)As	0,45	0,8
X <sub>z</sub> GaP	0,5	0,8
X*	0,4	0,7
	< 2,8 W.cm <sup>-2</sup>	> 2,8 W.cm <sup>-2</sup>
WL	1	0,5

**Tab. 4.1** Coefficients de linéarité d'un pompage optique continu à 10 K pour les transitions X<sub>xy</sub> (In,Ga)As, X<sub>z</sub> GaP, X\* et WL d'une structure laser optique composée de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuit 180 s sous flux d'As réalisée à 550 °C. L'échantillon correspondant est le S1647.

L'injection optique pulsée a aussi été réalisée et est présentée dans la Fig. 4.13. Encore une fois, aucun effet de seuil n'est observé. Comme pour l'injection optique continue, l'évolution des spectres de PL (Fig. 4.13a) en fonction de la densité d'excitation ne montre pas d'effet laser ni de déformation ce qui signifie que toutes les transitions mises en jeu ont un comportement similaire. On retrouve, de plus, les transitions observées pour une excitation continue. L'évolution est sous-linéaire (Fig. 4.13b) pour l'ensemble des transitions (excepté pour la WL pour des densités inférieures 26,2 W.cm<sup>-2</sup>).



**Fig. 4.13 a) Spectres de PL et b) intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation pulsée à 10 K d'une structure laser optique composée de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuits 180 s sous flux d'As réalisés à 550 °C. Les marqueurs rouges, bleus, verts et gris correspondent aux transitions  $X_{xy} (\text{In,Ga})\text{As}$ ,  $X_z \text{ GaP}$ , aux états excités et à la WL. La ligne pointillée est un guide pour les yeux et correspond à une évolution linéaire de l'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation pulsée. L'échantillon correspondant est le S1647.**

Les coefficients d'évolution associés sont présentés dans le Tab. 4.2. Pour des densités de puissances supérieures, un début de phénomène de saturation de la PL est observé qui se traduit par des coefficients de sous-linéarité inférieurs à ceux obtenus pour l'excitation continue. L'excitation pulsée permet l'accès à une plage de puissance supplémentaire. Là encore, aucun effet laser n'est observé sur les QDs (In,Ga)As/GaP avec une faible composition d'In. Pour une densité de puissance inférieure à  $26 \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ , on constate que les coefficients des transitions  $X_{xy} (\text{In,Ga})\text{As}$  et  $X_z \text{ GaP}$  sont proches de ceux obtenus pour l'excitation continue. Pour des densités de puissances supérieures, un début de phénomène de saturation de la PL est observé qui se traduit par des coefficients de sous-linéarité inférieurs à ceux obtenus pour l'excitation continue. L'excitation pulsée permet l'accès à une plage de puissance supplémentaire.

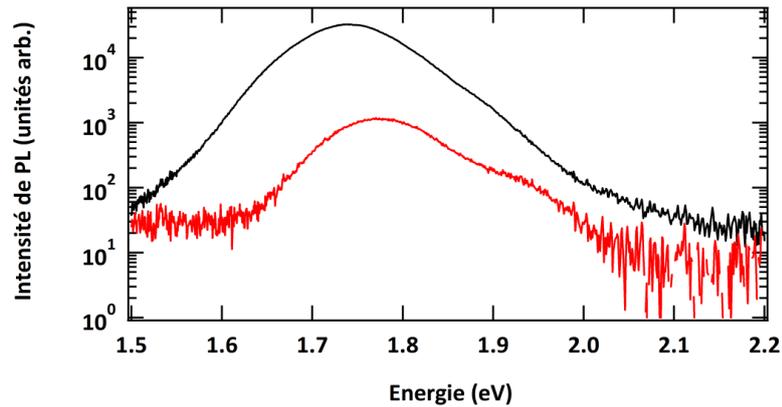
	q	
	< 26 W.cm <sup>-2</sup>	> 26 W.cm <sup>-2</sup>
$X_{xy}$ (In,Ga)As	0,4	0,1
$X_z$ GaP	0,45	0,2
$X^*$	0,7	0,2
WL	0,95	0,3

**Tab. 4.2 Coefficients de linéarité d'un pompage optique pulsé à 10 K pour les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As,  $X_z$  GaP,  $X^*$  et WL d'une structure laser optique composée de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuit 180s sous flux d'As réalisée à 550 °C. L'échantillon correspondant est le S1647.**

Là encore, aucun effet laser n'est observé sur les QDs (In,Ga)As/GaP avec une faible composition d'In. Cependant, une augmentation de la PL et une modification de la structure électronique des QDs ont été obtenus par un choix judicieux des paramètres de croissances (Chapitre 3). Dans la suite, les structures lasers réalisées sont basées sur des QDs crûes à 500 °C et qui présentent une composition d'In plus importante que celles réalisées à 550 °C (Chapitre 3).

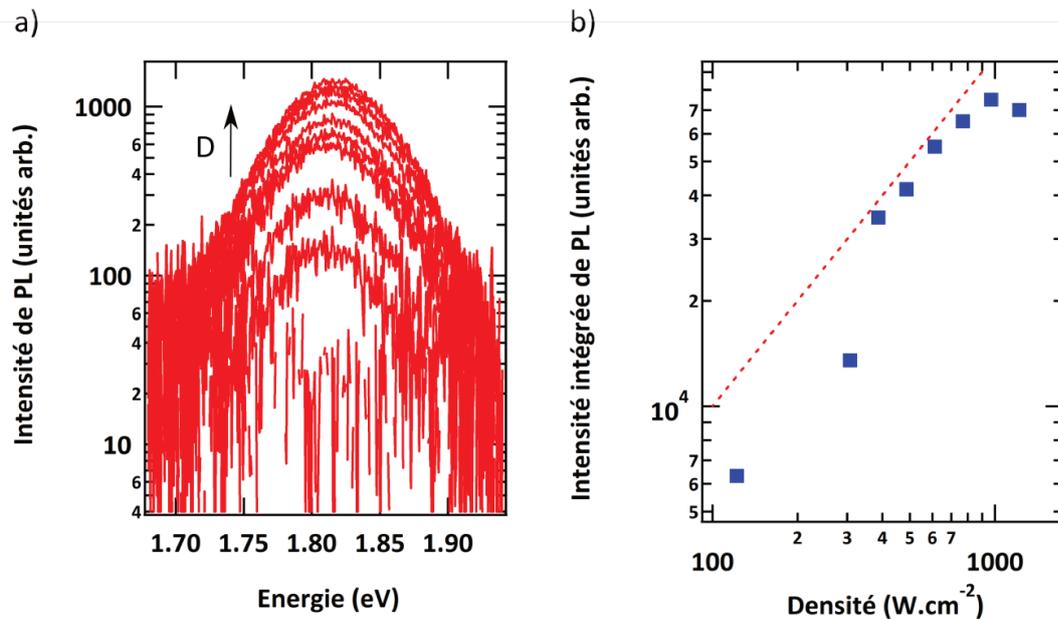
#### 4.3.2. QDs avec une haute composition d'In

Les QDs (In,Ga)As/GaP utilisées sont des QDs réalisées à 500 °C avec une composition effective d'In proche de 35 %. Le recuit sous flux de P et le ratio V/III sont choisis de façon à, d'une part exalter la PL et d'autre part de modifier la structure électronique des QDs comme discuté dans la partie 3.4.4. La première structure réalisée est composée d'un plan de QDs (In,Ga)As/GaP recuit 300 s sous flux d'As et d'épaisseur 4,5 ML. Avant de commenter les résultats du pompage optique, il est important de souligner la très basse intensité de PL obtenue pour cet échantillon comparée à celle obtenue sur la même structure sur GaP (Fig. 4.14). La baisse de PL observée sur l'échantillon réalisée sur GaP/AlGaP est plus importante que celle attendue par la seule présence d'AlGaP (Fig. 4.3). Elle provient d'un problème de fermeture du P lors du passage de la croissance de GaP à l'InGaAs et a entraîné une modification des contraintes ainsi que de l'énergie de surface lors du processus de formation des QDs (équation ( 1.10 )).



**Fig. 4.14** Comparaison de l'intensité de photoluminescence à température ambiante entre 1 plan de QDs (In,Ga)As/GaP réalisé sur GaP (courbe noire, échantillon S1932) et sur GaP/AlGaP (courbe rouge, échantillon S1963) pour une même puissance d'excitation.

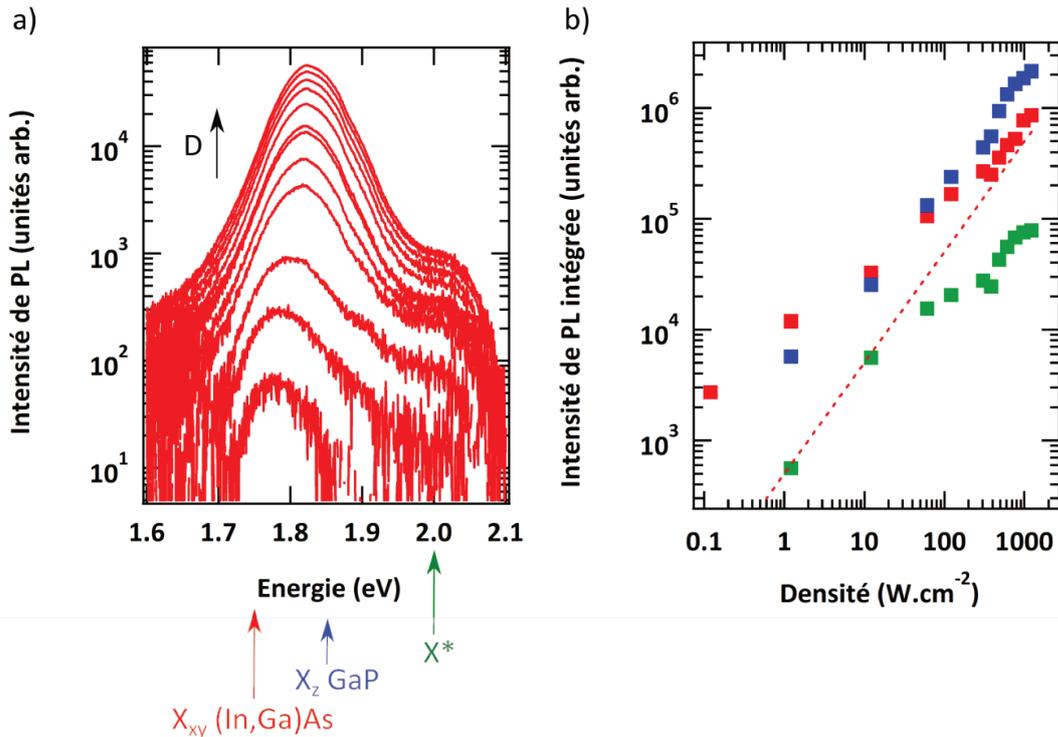
Les résultats de pompage optique pour une injection continue sont présentés dans la Fig. 4.15. L'évolution des spectres de PL en fonction de la densité d'excitation ne montre pas d'effet laser pour cette structure laser composée d'un plan de QDs (Fig. 4.15a). Aucune discrimination entre les transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP n'a pu être effectuée. Le régime sur-linéaire observé (Fig. 4.15b) entre 300 et 400  $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$  est lié à l'apparition de gaussiennes afin de retranscrire au mieux le comportement du spectre de PL en fonction de la densité d'excitation. Pour ces deux raisons, il est peu aisé de commenter en détails l'origine des différents régimes de linéarité observés sur l'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation. L'intensité intégrée augmente jusqu'à 900  $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$  où un phénomène de saturation puis de déclin est observé. Ce phénomène peut s'expliquer par la présence d'un effet thermique et de la redistribution d'énergie entre les porteurs. L'excitation en pulsé n'a pu être réalisée sur cet échantillon par manque d'intensité émise.



**Fig. 4.15 a) Spectres de PL et b) intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation continue à 10 K d'une structure laser optique composée d'un plan de QDs (In,Ga)As/GaP. La ligne pointillée est un guide pour les yeux et correspond à une évolution linéaire de l'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation continue. L'échantillon correspondant est le S1963.**

Ce résultat conforte l'absence d'une transition directe dans nos meilleures structures à un plan de QDs mais il est à mettre en perspective avec l'intensité de PL très basse obtenue sur cet échantillon épitaxié sur GaP/AlGaP (Fig. 4.14).

Comme discuté dans le chapitre 3, l'empilement de QDs est aussi connu pour modifier la structure électronique des QDs et est plus commun pour réaliser un laser à QDs. Dans notre cas, la zone utilisée est composée de 3 plans de QDs d'épaisseur 3 ML recuit 30 s sous flux d'As. Le choix des paramètres de l'empilement a été réalisé à partir des résultats de la partie 3.5 avec pour but d'obtenir une modification de la structure électronique des QDs et d'éviter un effet néfaste des contraintes sur la PL. Les résultats du pompage optique pour une injection continue sont présentés dans la Fig. 4.16.



**Fig. 4.16 a) Spectres de PL et b) intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation continue à 10 K d'une structure laser optique composée de trois plans de QDs (In,Ga)As/GaP. Les marqueurs rouges, bleus, verts correspondent aux transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As,  $X_z$  GaP et aux états excités. La ligne pointillée est un guide pour les yeux et correspond à une évolution linéaire de l'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation continue. L'échantillon correspondant est le S1968.**

L'évolution des spectres de PL (Fig. 4.16a) en fonction de la densité d'excitation ne montre la présence d'aucun effet laser. A la différence des QDs réalisées à 550°C, la PL de la WL n'est pas observée. L'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation des transitions est présentée dans la Fig. 4.16b et les coefficients associés sont donnés dans le Tab. 4.3. Un phénomène de saturation est observé pour des densités de puissance supérieures à 700 W.cm<sup>-2</sup> pour X\* et 1000 W.cm<sup>-2</sup> pour  $X_{xy}$  (In,Ga)As,  $X_z$  GaP. L'évolution quasi-linéaire et linéaire des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP provient de la présence d'états excités de ces mêmes transitions. Il est difficile de les discriminer car, comme c'était le cas pour les QDs réalisées à 550 °C, la largeur à mi-hauteur des transitions  $X_{xy}$  (In,Ga)As et  $X_z$  GaP est importante, de l'ordre de 70 meV et 130 meV respectivement. La transition X\* a le même comportement que la transition WL observée dans la structure laser contenant les QDs avec une faible composition d'In réalisées à 550 °C (partie 4.3.1).

	q	
$X_{z \text{ GaP}}$	1	
	$< 307 \text{ W.cm}^{-2}$	$> 307 \text{ W.cm}^{-2}$
$X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$	0,6	0,9
	$< 62 \text{ W.cm}^{-2}$	$> 62 \text{ W.cm}^{-2}$
$X^*$	0,9	0,7

Tab. 4.3 Coefficient de linéarité d'un pompage optique continu à 10 K pour les transitions  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ ,  $X_{z \text{ GaP}}$ ,  $X^*$  d'une structure laser optique composée de 3 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuit 30 s sous flux d'As réalisés à 500 °C. L'échantillon correspondant est le S1968.

L'injection optique pulsée a aussi été réalisée et est présentée dans la Fig. 4.17. Comme pour l'injection optique continue, l'évolution des spectres de PL en fonction de la densité d'excitation (Fig. 4.17a) ne montre la présence d'aucun seuil laser.

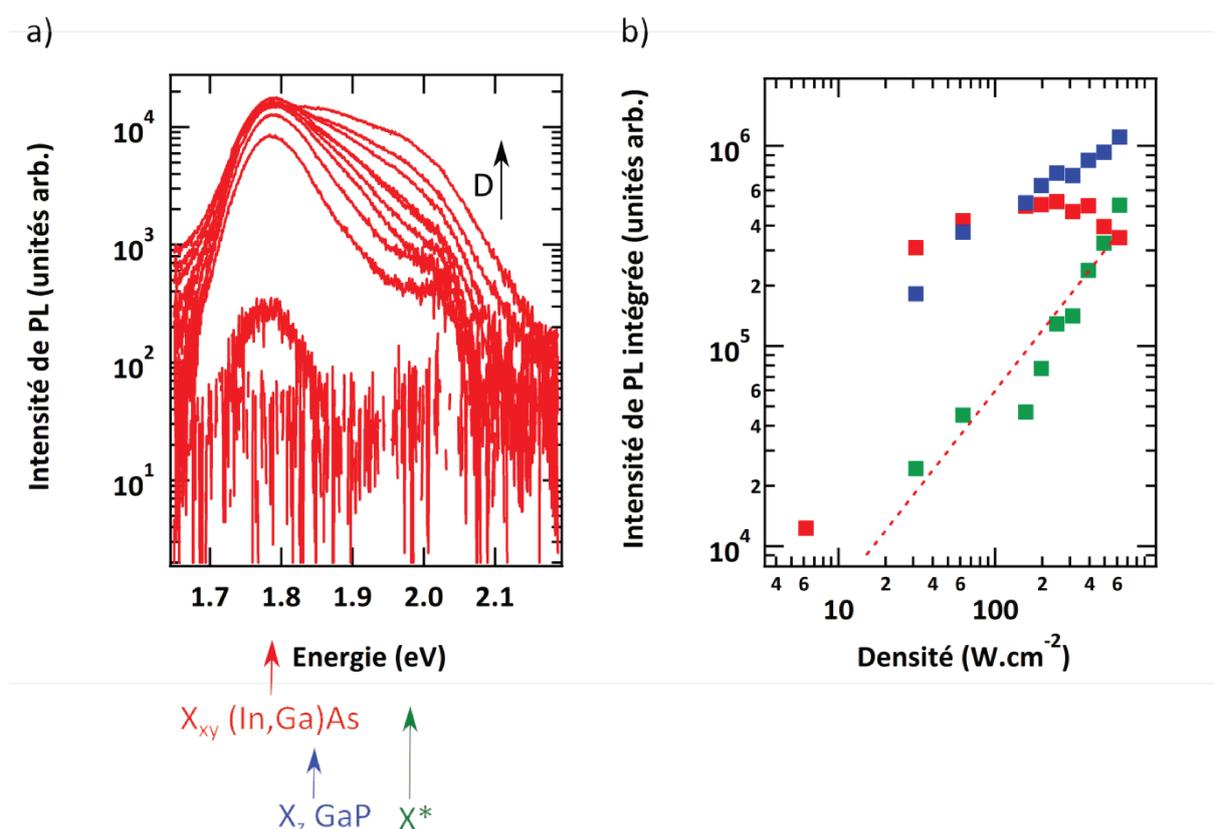


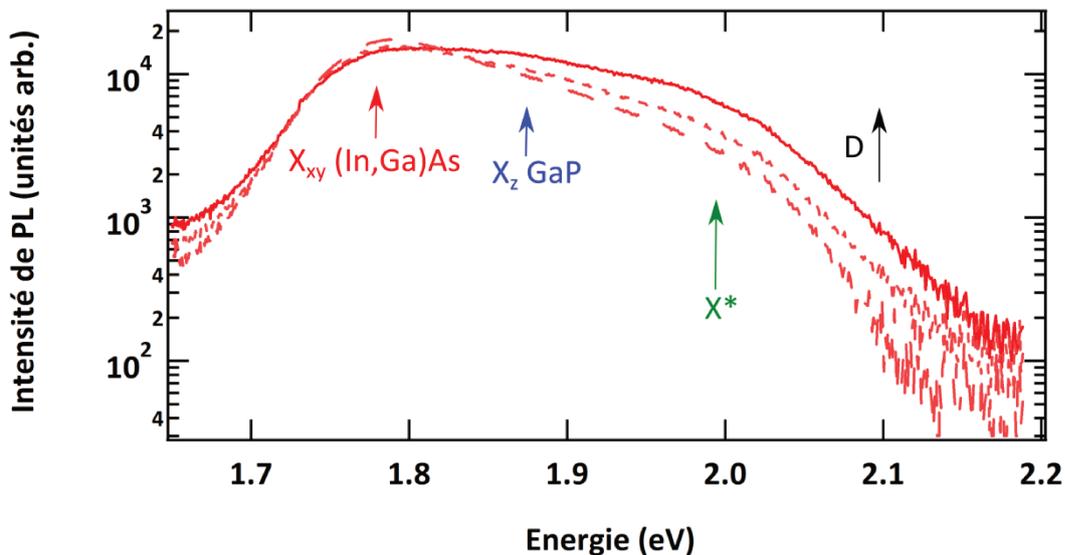
Fig. 4.17 a) Spectres de PL et b) intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation pulsée à 10 K d'une structure laser optique composée de trois plans de QDs (In,Ga)As/GaP. Les marqueurs rouges, bleus, verts correspondent aux transitions  $X_{xy \text{ (In,Ga)As}}$ ,  $X_{z \text{ GaP}}$  et aux états excités. La ligne pointillée est un guide pour les yeux et correspond à une évolution linéaire de l'intensité intégrée de PL en fonction de la densité d'excitation pulsée. L'échantillon correspondant est le S1968.

Cette observation est corrélée par l'évolution de l'intensité intégrée des transitions identifiées :  $X_{xy}(\text{In,Ga)As}$ ,  $X_{z\text{GaP}}$  et  $X^*$  (Fig. 4.17b). Un phénomène de saturation et même de déclin est observé pour la transition  $X_{xy}(\text{In,Ga)As}$  pour des densités d'excitations pulsées supérieures à  $300 \text{ W.cm}^{-2}$  au contraire des autres transitions dont l'intensité intégrée augmente. Les coefficients d'évolution associés sont présentés dans le Tab. 4.4.

	q
$X_{z\text{GaP}}$	0,5
$X^*$	1,7
	$< 62 \text{ W.cm}^{-2}$
$X_{xy}(\text{In,Ga)As}$	2

**Tab. 4.4** Coefficient de linéarité d'un pompage optique pulsé à 10K pour les transitions  $X_{xy}(\text{In,Ga)As}$ ,  $X_{z\text{GaP}}$ ,  $X^*$  d'une structure laser optique composée de 3 plans de QDs (In,Ga)As/GaP recuits 30 s sous flux d'As réalisés à 500 °C. L'échantillon correspondant est le S1968.

Ce comportement atypique ne provient pas d'un artefact lors de l'application du modèle (partie 3.1) mais est bien présent et est observable dans la Fig. 4.18.



**Fig. 4.18** Spectres de PL à 10K d'une structure laser optique composée de trois plans de QDs (In,Ga)As/GaP pour trois densités d'excitation : 393 (courbe en trait discontinue), 495 (courbe pointillée) et  $623 \text{ W.cm}^{-2}$  (courbe pleine). L'échantillon correspondant est le S1968.

Dans notre système de QDs (In,Ga)As/GaP, les trous sont bien confinés dans les QDs (In,Ga)As. Le comportement atypique observé : baisse de la transition  $X_{xy (In,Ga)As}$  et hausse de la transition  $X^*$  n'est pas compatible avec un processus lié aux trous car la transition  $X_{z GaP}$  aurait été impactée ce qui n'est pas le cas. Son évolution n'est perturbée ni par la saturation ni par le déclin de l'intensité de PL de la transition  $X_{xy (In,Ga)As}$ . Le processus concerne donc les électrons au sein de la QDs. Le déclin de l'intensité de PL de la transition  $X_{xy (In,Ga)As}$  et les fortes densités d'excitations sont compatibles avec la présence d'un effet Auger sur les électrons au sein de la QDs qui permet de peupler des niveaux plus hauts en énergie comme des états excités de la transition  $X_{xy (In,Ga)As}$  d'où la hausse de la transition  $X^*$ .

Le coefficient d'évolution de  $X^*$  associé à la baisse de  $X_{xy (In,Ga)As}$  peut aussi être un signe du début du peuplement par effet Auger du niveau  $\Gamma$  de la QD (In,Ga)As/GaP. La transition  $X^*$ , dont la population doit être faible vu sa position énergétique, présente une PL comparable aux autres transitions signe d'une force d'oscillateur importante. Ce comportement atypique n'est pas observé pour la structure laser contenant les QDs avec une faible composition d'In (Fig. 4.13) ce qui souligne l'effet bénéfique d'une part, de l'augmentation de la composition d'In des QDs et d'autre part, de l'empilement de plans de ces mêmes QDs sur la structure électronique des QDs (In,GaAs)/GaP. Cependant, l'effet laser n'est pas obtenu mais l'évolution de la transition  $X^*$  en fonction de la densité d'excitation est très prometteuse pour l'obtention d'une transition directe dans le système de QDs (In,GaAs)/GaP.

La comparaison entre le pompage optique d'un seul plan et de l'empilement de QDs (In,Ga)As/GaP souligne les effets bénéfiques de ce dernier malgré les difficultés vis-à-vis de la qualité de l'interface QDs-barrières et la possible présence de dislocations comme discuté dans la partie 3.5. Malgré l'effet bénéfique de l'empilement de plans de QDs, aucun effet laser n'est obtenu. La raison est très probablement la complexité de la structure électronique des QDs (In,Ga)As/GaP. Il est aussi important de noter que les QDs utilisées dans les structures lasers ont été réalisées sur GaP/AlGaP et non pas directement sur GaP ce qui entraîne une baisse de la PL des QDs (Fig. 4.3). D'autres voies d'améliorations restent encore à explorer de façon à atteindre une transition directe au sein des QDs (In,Ga)As/GaP.

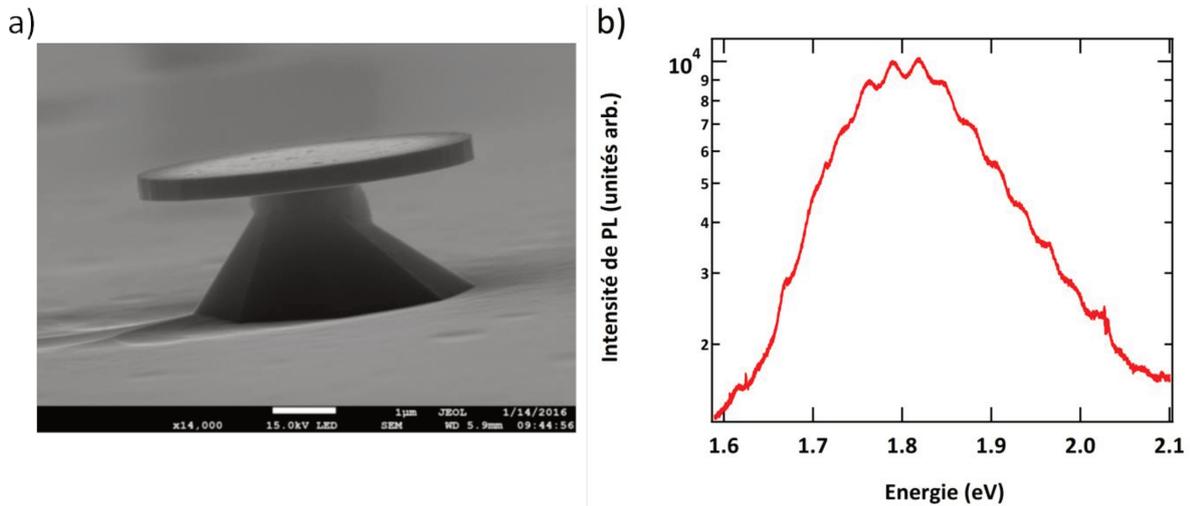
#### 4.4. Vers un laser pompé électriquement sur substrat Si

La démonstration d'un effet laser n'a pas été réalisé au sein de nos structures lasers composées de QDs (In,Ga)As/GaP que ce soit par pompage électrique ou optique. Ce résultat est à mettre en lien avec la conclusion du Chapitre 3 qui est que, malgré une amélioration significative de la PL des QDs (In,Ga)As/GaP, aucun gap direct n'est observé.

Une autre voie est l'obtention d'un gap direct avec des matériaux comme le GaPSb qui est annoncé comme direct pour un pourcentage de Sb supérieur à 0,92 % [40] avec la possibilité de réaliser des zones actives composées de QDs InGaSb/GaP [40]. Un autre avantage du GaPSb est la possibilité d'obtenir l'accord de maille avec l'InP et ainsi développer des émetteurs à 1,55  $\mu\text{m}$ . L'obtention récente au sein du laboratoire FOTON-OHM d'un spectre d'un matériau massif de GaPSb sur substrat Si à basse température est très prometteuse. Toujours dans la volonté d'obtenir un gap direct, l'InGaP [41], [42] est aussi étudié dans notre laboratoire avec l'avantage de pouvoir être en accord de maille avec SiGe.

Cependant, de nombreuses voies d'optimisation restent à explorer pour le système de QDs (In,Ga)As/GaP comme l'ajout d'un flux de Sb durant le recuit des QDs [43], [44], la modification de la vitesse de croissance et la modification de la stratégie d'encapsulation: ajout d'un autre matériau [45] (AlAs, GaAs, AlP, etc.) et/ou l'encapsulation par MEE [46]. Malgré les fortes contraintes rencontrées lors de l'empilement de plans de QDs (partie 3.5), cette voie reste très prometteuse.

Enfin, la réalisation de cavités optiques présentant un seuil laser plus bas que les cavités de type ridge est aussi une voie à explorer. Dans cette optique, une PL à température ambiante a été obtenue au cours de ma thèse sur des structures micro-disques GaP/Si suspendues. Ces micro-disques suspendus sont développés pour l'optique non-linéaire et la gestion de la dissipation thermique n'est donc pas optimisée pour une émission laser. Durant ma thèse, un nouveau masque de lithographie a aussi été réalisé afin de permettre la réalisation et la caractérisation d'émetteurs : diodes et lasers sur substrat Si afin de poursuivre la recherche d'un laser pompé électriquement sur cette plateforme.

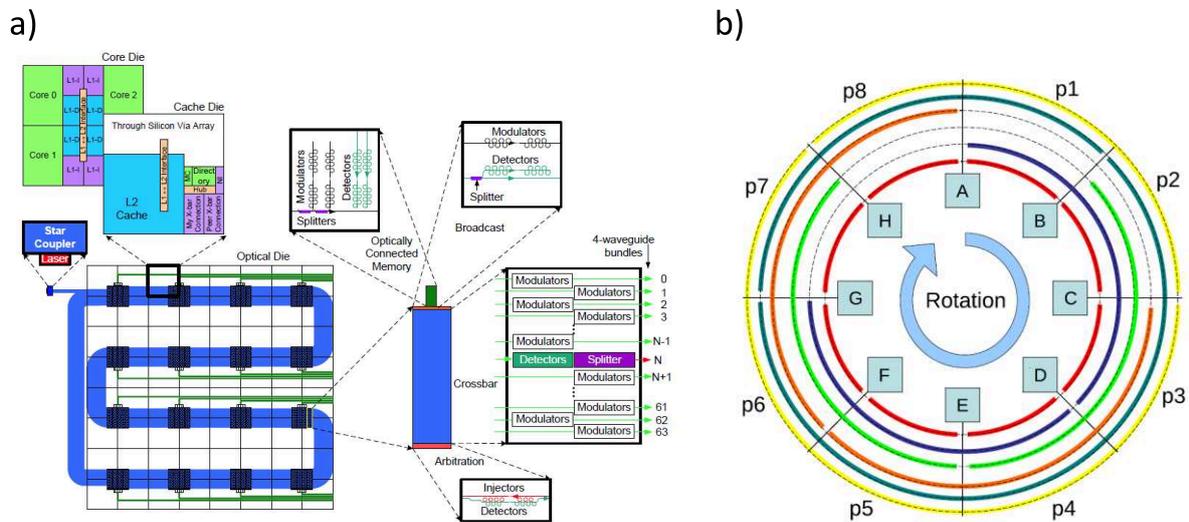


**Fig. 4.19 a) Image MEB d'une structure microdisque GaP/Si suspendue composée de 5 plans de QDs (In,Ga)As/GaP et b) PL associée à température ambiante. Les franges observées correspondent aux modes de galerie du microdisque. Le rayon du microdisque est ici de 3 µm et le premier plan de QDs est à seulement 200 nm de l'interface GaP/Si.**

#### 4.5. Architecture et intégration laser pour les circuits photoniques intégrés

Le projet 3D Optical Many cores du labex CominLabs, présenté dans l'introduction, a pour objectif de passer outre les limitations imposées par les interconnexions électriques à l'aide des communications optiques sur puce. En effet, la majeure partie de l'énergie perdue dans les processeurs provient des interconnexions électriques sur puce [47]. Au niveau de la communication au sein d'un cluster de microprocesseurs, les liaisons optiques ne sont pas compétitives du fait de leurs dimensions cependant ce n'est pas le cas des communications entre clusters, à une échelle millimétrique voire centimétrique. On trouve au sein de la littérature différents types d'architectures qui correspondent à des « philosophies » d'interconnexions différentes. A titre d'exemple, l'architecture Corona se base sur un seul laser multimode déporté hors de la puce [48], [49] (Fig. 4.20a) Au contraire, l'architecture Chameleon sur laquelle s'est développée le projet 3D Optical Many Core fait intervenir un grand nombre de micro-lasers monomodes, intégrés sur la puce [50], [51] (Fig. 4.20b). L'architecture Corona, présentée en Fig. 4.20a, est une architecture de cluster 8 x 8 reliés à l'aide d'un lien optique composé de 256 longueurs d'ondes réparties en 4 guides d'onde. Chaque cluster a un canal et une adresse dédiée ainsi que 64 détecteurs résonateurs. A chaque nœud, des modulateurs résonants sont utilisés afin d'injecter l'information souhaitée sur les 256 canaux. Le processus simplifié de communication entre deux clusters

est le suivant : un cluster envoie une information à un autre cluster en modulant le signal optique sur le canal dédié au cluster cible.



**Fig. 4.20** Architecture de cluster de microprocesseur a) Corona [48] et b) Chameleon [50]. Dans le cas de l'architecture Corona, un cluster de 8 x 8 est relié à l'aide d'un lien optique. La source laser est externe et fournit 64 longueurs d'ondes. Au contraire, l'architecture Chameleon est basée sur un anneau qui relie, ici 8 nœuds. Chaque nœud contient autant de lasers et de détecteurs que de canaux utilisés au sein de cet anneau.

La source lumineuse est un laser externe émettant 64 longueurs d'ondes avec une puissance de sortie de 0,8 W. Aucun laser sur puce n'est pour l'instant capable de telles spécificités. La puissance de l'ensemble des interconnexions photoniques est estimée à 39 W. Une démonstration basée sur ce concept d'architecture avec laser déporté a été réalisée par IBM [52].

L'architecture Chameleon (Fig. 4.20b) quant à elle est basée sur un anneau qui permet de connecter l'ensemble des clusters. L'information échangée au sein de cet anneau peut être transmise dans le sens horaire ou antihoraire. Cette configuration permet de réaliser un partitionnement de la longueur d'onde et ainsi permettre d'utiliser la même longueur d'onde pour différentes communications sur un même guide d'onde. Elle permet aussi de réaliser une allocation dynamique en fonction du besoin avec la possibilité de n'allouer aucune, une ou plusieurs longueurs d'ondes pour la communication entre clusters. Enfin, cette architecture permet la possibilité d'échanger une même information provenant d'un cluster avec les autres clusters. Chaque nœud dispose d'autant de lasers et de détecteurs résonants que de canal utilisé dans le résonateur en anneau. Pour une architecture de

cluster 8 x 8, 16 guides d'ondes de 63 longueurs d'ondes sont nécessaires avec 64 532 lasers et autant de détecteurs. Dans ce cas, la puissance optique nécessaire pour réaliser les interconnexions optiques est de l'ordre de 400 mW dans le cas idéal.

Cependant, à cause des possibles imperfections lors de la fabrication des dispositifs résonants et des variations locales de température lors du fonctionnement [53], [54], la longueur d'onde de résonance des lasers ou des modulateurs et celle des détecteurs peuvent varier et nécessitent un ajustement actif qui augmente grandement le budget énergétique du circuit photonique [49].

Les deux architectures présentées précédemment varient entre autres au niveau du nombre de lasers utilisés. Pour l'architecture Chameleon, les lasers et les détecteurs sont directement intégrés à la verticale des clusters. Plus le nombre de canaux est important, plus la surface qui doit leur être dédiée est importante. Au contraire, pour l'architecture Corona, la taille du laser a peu d'importance car le laser est totalement externe. Il faut quand même prendre en compte le nombre de détecteurs et de modulateurs de chaque cluster. La taille de ces dispositifs est donc un paramètre crucial car les sources lasers ainsi que les détecteurs ne doivent pas représenter plus d'un quart de la surface de la puce sachant qu'une architecture de cluster 8 x 8 a une surface d'un carré d'un pouce afin d'avoir l'espace nécessaire pour le routage et l'isolation optique. Dans le cas de l'architecture Chameleon, la dimension maximale allouée aux composants actifs pour une architecture de cluster 8 x 8 est de 50  $\mu\text{m}$  x 50  $\mu\text{m}$ . Les pertes optiques dans un circuit photonique ainsi que l'efficacité des détecteurs peuvent être estimées. Le taux d'erreur souhaité étant de l'ordre de  $10^{-12}$  [51], la puissance optique minimale des lasers doit atteindre quelques microwatts. La puissance optique minimale ainsi que la dimension maximale seront utilisées comme critères afin de comparer les différentes géométries lasers.

### 4.5.1. Laser idéal pour l'intégration photonique sur puce Si

Du fait des spécificités des architectures présentées précédemment, le laser idéal pour l'intégration doit respecter les critères suivants : la source laser doit présenter les dimensions les plus faibles possibles de façon à s'insérer au mieux au sein du design du cluster de processeur. L'alimentation de ce laser devra être compatible CMOS de façon à ne pas générer de nouveau besoin d'alimentation et donc ne pas augmenter l'empreinte dédiée

au laser. Du fait de la température élevée de fonctionnement des microprocesseurs, le fonctionnement du laser doit donc être optimisé pour cet environnement avec une température maximale de fonctionnement au minimum supérieure à 60 °C. Le signal du laser devant être modulé afin d'échanger les informations entre les clusters de processeurs, une modulation directe du laser est idéale car l'absence de composant modulateur permet de minimiser l'empreinte spatiale et doit également permettre un gain énergétique. Enfin, l'émission dans le plan de la source laser est bien sûr nécessaire si les lasers sont intégrés au sein du circuit photonique. L'émission verticale à l'aide de VCSEL pourrait être utilisée conjointement ou en remplacement des connections électriques verticales (Trough Silicon vias, TSV) [55] afin d'échanger les informations entre les différentes couches : mémoire, cache, etc dans une configuration 3D. Dans la suite, seuls les VCSELs émettant dans le plan seront considérés. Pour ce qui est du nombre de longueurs d'ondes émises par le laser, il dépend de l'architecture utilisée : une pour le laser dans le cadre de l'architecture Chameleon et 64 au sein de l'architecture Corona.

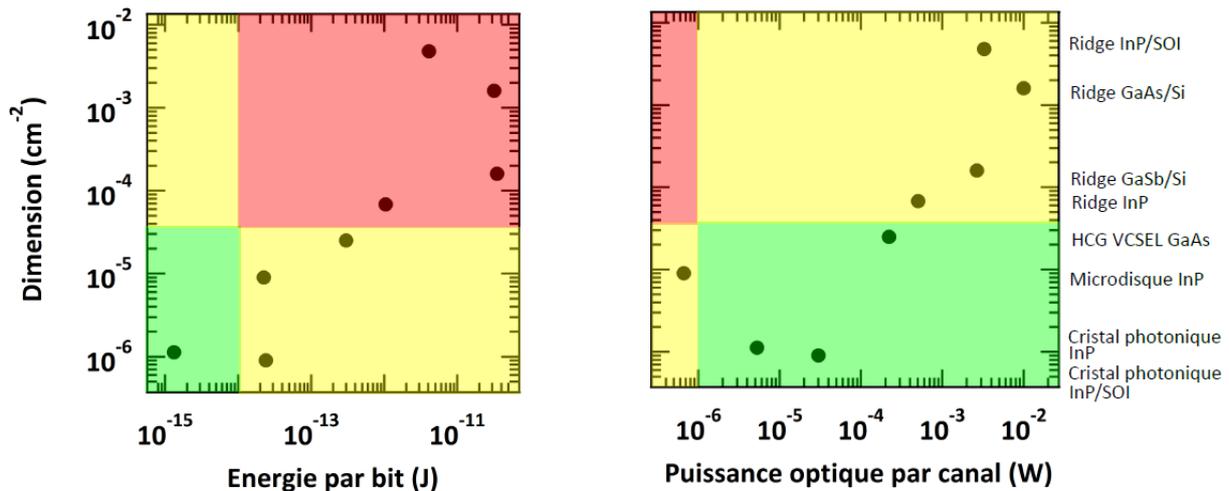
#### 4.5.2. Design du dispositif

Les différentes géométries lasers ont été décrites dans la partie 1.2.3.1. Ces géométries ont chacune leurs spécificités : puissance émise, nombre de longueurs d'ondes, dimensions et consommation électrique. De plus, ces géométries lasers ne sont pas réalisées sur le même substrat ni avec la même zone active. La stricte comparaison de ces différentes géométries est donc complexe cependant notre volonté est ici d'apporter des outils afin d'étudier leur possible intégration sur puce. Les lasers présentés dans le Tab. 4.5 sont à injection électrique, émettent dans le plan et leur intégration sur substrat Si ou SOI est déjà démontrée ou accessible par collage. Les paramètres présents dans le Tab. 4.5 sont extraits de la littérature. Si le taux de modulation n'est pas présent dans la littérature, une modulation de 10 GHz est utilisée. L'énergie par bit peut-être directement estimée à partir du ratio de la puissance injectée sur la multiplication du nombre de longueurs d'onde émises par le laser et le taux de modulation. Pour un laser monomode, ce calcul est rigoureux car la modulation directe peut être utilisée. Dans le cas de lasers multimodes, une modulation indépendante de chaque longueur d'onde par l'intermédiaire de modulateur externe devrait être plus rigoureusement considérée.

Design du laser	Plateforme	Référence	Zone active	Dimension (cm <sup>2</sup> )	Puissance incidente (W)	Courant de seuil (A)	Densité de courant de seuil (A)	Puissance optique (W)	Nombre de canaux	T <sub>max</sub> (K)	λ (μm)	Taux de modulation (Hz)	Energie par bit (J)
Ridge	InP/SOI	[56]	QWs InGaAsP	4,80E-03	1,00E-01	4,10E-02	8,54	3,28E-03	1	338,15	1,55	2,5E+10	4,1E-12
	GaSb/Si	[57]	QWs GaInAsSb	1,60E-04	1,05	1,80E-01	1,13E+03	8E-03	3	308,15	2	-	3,5E-11
	GaAs/Si	[58]	QDs InAs	1,6E-03	3,20E-01	1,00E-01	6,25E+01	1E-02	1	348,15	1,3	-	3,2E-11
Microdisque	InP	[59]	QDs InAs dans QWs InGaAsP	6,80E-05	1,10E-01	2,10E-02	3,09E+02	5,04E-03	10	293,15	1,56	-	1,05E-12
	InP/SOI	[60]	QWs InAsP	9,00E-06	1,12E-03	3,50E-04	3,89E+01	3,30E-06	5	303,15	1,58	1E+10	2,24E-14
	GaAs	[61]	QWs InGaAs	2,50E-05	3,00E-03	3,00E-04	1,20E+01	2,22E-04	1	383,15	1,08	-	3E-13
Cristal photonique	InP/SOI	[62]	QWs InGaAsP	9,00E-07	2,40E-04	1,00E-04	1,11E+02	3E-05	1	303,15	1,56	-	2,4E-14
	InP	[63]	Qws InGaAlAs	1,12E-06	5,04E-11	4,80E-06	4,29	5,25E-06	1	368,15	1,55	1E+10	1,32E-15

Tab. 4.5 Comparaison de structures lasers : ridge [56]–[59], microdisque [60], HCH-VCSEL [61] et cristaux photonique [62], [63] pour différentes filières de matériaux : InP, GaAs, GaSb intégrés ou potentiellement intégrables sur substrat Si ou SOI. Tableau inspiré de [64]. La puissance optique émise est prise arbitrairement à deux fois la valeur du seuil afin de comparer les lasers entre eux.

L'énergie par bit maximale peut être estimée à 10 fJ/bit afin d'être compétitif par rapport aux solutions CMOS [47]. On peut donc comparer les lasers sélectionnés au sein du Tab. 4.5 par rapport aux trois critères mentionnés précédemment : dimension maximale des composants actifs, puissance minimale des lasers et énergie par bit maximale (Fig. 4.21). L'adéquation ou l'inéquation avec les critères est définie par l'échelle des couleurs du vert au rouge en passant par l'orange.



**Fig. 4.21** Comparaison de différents lasers à l'état de l'art (Tab. 4.5) qui sont ou pourraient être intégrés sur substrat Si ou SOI. Les couleurs (du vert au rouge en passant par le jaune) traduisent le degré d'accord avec les critères précédemment définis. Figure inspirée de [64].

La première remarque est qu'un seul laser à l'état de l'art respecte les trois critères. Ce laser à cristal photonique a été réalisé sur InP en 2013 par Takeda et *al.*[63]. Il correspond à un laser continu à 1.5  $\mu\text{m}$  à pompage électrique fonctionnant à 95 °C et qui peut être modulé directement jusqu'à 10 GHz. Même si ce dispositif laser respecte les trois critères, son intégration sur Si ou SOI n'est à ce jour pas démontrée. Pour les sources lasers microdisques et cristaux photoniques sur SOI, leurs petites tailles permettent aisément de respecter le critère de dimension au contraire des deux autres critères : puissance optique émise et énergie par bit. Leur adéquation avec ces critères pourra sans doute évoluer grâce aux futures réalisations de la communauté scientifique. Les ridges ont des dimensions et une énergie par bit trop importantes afin d'être intégrés sur puce malgré leur forte puissance optique par canal. De ce fait, cette géométrie est plus indiquée comme source laser externe comme dans l'architecture CORONA. Les VCSELs, quant à eux, ont des performances

intermédiaires par rapport aux géométries microdisques/cristaux photoniques et ridges. Afin d'être compétitifs, les dispositifs VCSELs doivent donc diminuer l'énergie par bit.

Cette comparaison a montré qu'aucun dispositif intégré sur Si ou SOI ne respecte l'ensemble des critères suivants : dimension maximale des composants actifs, puissance minimale des lasers et énergie par bit maximale quel que soit le type d'architecture utilisée. Une des solutions pourrait être de mélanger différentes géométries de façon à utiliser l'avantage de chacun : forte puissance, faible dimension, etc. et/ou d'utiliser d'autres champs de compétences comme la plasmonique [65], [66], les radiofréquences de type ZIGBEE [67] ou des antennes dans le domaine optique [68]. Malgré la réalisation d'IBM [52] en 2012, l'intégration de dispositif d'émission sur puce reste un important défi et aucune voie n'est pour l'instant préférée [47], [64], [69]. Une avancée notable a toutefois été réalisée en 2016 par Chen *et al.* [58] avec la réalisation d'un laser ridge GaAs continu à pompage électrique émettant à 1,3  $\mu\text{m}$  sur substrat Si(001) (désorientation de 4°) fonctionnant à 75 °C et présentant des durées de vie extrapolées de 100158 heures. Ce laser présente des performances comparables aux lasers réalisés sur substrat GaAs. Plus récemment, en 2017, Chen *et al.* [70] ont démontré la réalisation du même laser mais sur un substrat Si(001) sans désorientation (inférieure à 0,5 °C) avec des performances moindres que sur substrat Si(001) (désorientation de 4°). Cette démonstration est importante car même si l'épitaxie III-V n'a pas été réalisée sur la totalité de la plaque, les substrats Si utilisés étaient de grande taille initialement (300 mm). Ces travaux démontrent donc la compatibilité de l'approche monolithique pour intégration à très grande échelle sur silicium.

## Références du chapitre 4

- [1] M. Heidemann, S. Höfling, et M. Kamp, « (In,Ga)As/GaP electrical injection quantum dot laser », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 1, p. 011113, janv. 2014.
- [2] B. Kunert, A. Klehr, S. Reinhard, K. Volz, et W. Stolz, « Near room temperature electrical injection lasing for dilute nitride Ga(NAsP)/GaP quantum-well structures grown by metal organic vapour phase epitaxy », *Electron. Lett.*, vol. 42, n° 10, p. 601-603, mai 2006.
- [3] S. Liebich *et al.*, « Laser operation of Ga(NAsP) lattice-matched to (001) silicon substrate », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, n° 7, p. 071109-071109-3, août 2011.
- [4] N. Hossain *et al.*, « Band structure properties of (BGa)P semiconductors for lattice matched integration on (001) silicon », 2013, p. 47-48.
- [5] N. Urakami, F. Fukami, H. Sekiguchi, H. Okada, et A. Wakahara, « Growth of dilute BGaP alloys by molecular beam epitaxy », *J. Cryst. Growth*, vol. 378, p. 96-99, sept. 2013.
- [6] C. Robert *et al.*, « Structural and optical properties of AlGaP confinement layers and InGaAs quantum dot light emitters onto GaP substrate: Towards photonics on silicon applications », *Thin Solid Films*, vol. 541, p. 87-91, août 2013.
- [7] M. Gershenzon et R. M. Mikulyak, « RADIATIVE PAIR RECOMBINATION AND SURFACE RECOMBINATION IN GaP PHOTOLUMINESCENCE », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 8, n° 10, p. 245-247, mai 1966.
- [8] Kelley Elise Rivoire, « Nonlinear frequency conversion in III-V semiconductor photonic crystals », Stanford University, Dept. of Electrical Engineering., 2012.
- [9] P. Guillemé *et al.*, « Antiphase domain tailoring for combination of modal and 4-quasi-phase matching in gallium phosphide microdisks », *Opt. Express*, vol. 24, n° 13, p. 14608, juin 2016.
- [10] R. Tremblay *et al.*, « MBE growth and doping of AlGaP », *J. Cryst. Growth*, vol. 466, p. 6-15, mai 2017.
- [11] L. Baojun, L. Enke, et Z. Fujia, « Pd/Zn/Pd ohmic contacts to p-type GaP », *Solid-State Electron.*, vol. 41, n° 6, p. 917-920, juin 1997.
- [12] L. Peternai, J. Jakabovič, et M. Michalka, « Ohmic contacts to n – and p –type GaP », *Appl. Phys. Condens. Matter Proc. 9th Int. Workshop*, p. 157-160, 2003.
- [13] S. V. Ivanov, P. S. Kop'ev, et N. N. Ledentsov, « Interplay of beryllium segregation and diffusion in heavily doped GaAs and AlGaAs grown by molecular beam epitaxy (thermodynamic analysis) », *J. Cryst. Growth*, vol. 108, n° 3-4, p. 661-669, févr. 1991.
- [14] R. Mosca, S. Franchi, P. Frigeri, E. Gombia, A. Carnera, et M. Peroni, « Influence of the As/Ga flux ratio on diffusion of Be in MBE GaAs layers », *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 80, n° 1-3, p. 32-35, mars 2001.
- [15] J. Marcon, M. Ihaddadene, et K. Ketata, « Determination of beryllium and self-interstitial diffusion parameters in InGaAs », *J. Cryst. Growth*, vol. 253, n° 1-4, p. 174-182, juin 2003.
- [16] K. Adomi, N. Noto, A. Nakamura, et T. Takenaka, « Nitrogen doping in AlGaP grown by metalorganic vapor phase epitaxy using ammonia », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 63, n° 5, p. 663-665, août 1993.
- [17] S. Nagao *et al.*, « Type-II photoluminescence from GaP/AIP/GaP quantum wells », *J. Appl. Phys.*, vol. 81, n° 3, p. 1417-1421, févr. 1997.
- [18] K. Arimoto, T. Sugita, N. Usami, et Y. Shiraki, « Effect of the insertion of an ultrathin AIP layer on the optical properties of GaAsP/GaP quantum wells », *Phys. Rev. B*, vol. 60, n° 19, p. 13735-13739, nov. 1999.

- [19] S. Bhuyan *et al.*, « Light emission despite doubly-forbidden radiative transitions in AlP/GaP quantum wells: Role of localized states », *J. Appl. Phys.*, vol. 114, n° 16, p. 163101, oct. 2013.
- [20] M. Ilegems, « Beryllium doping and diffusion in molecular-beam epitaxy of GaAs and Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As », *J. Appl. Phys.*, vol. 48, n° 3, p. 1278-1287, mars 1977.
- [21] O. B. Shchekin et D. G. Deppe, « Low-threshold high-T<sub>0</sub> 1.3- $\mu$ m InAs quantum-dot lasers due to p-type modulation doping of the active region », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 14, n° 9, p. 1231-1233, sept. 2002.
- [22] S. R. Chinn, P. S. Zory, et A. R. Reisinger, « A model for GRIN-SCH-SQW diode lasers », *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 24, n° 11, p. 2191-2214, nov. 1988.
- [23] B. Kunert *et al.*, « Laser operation of the III/V compound material Ga(NAsP) grown lattice matched on (001) Si substrate », in *Device Research Conference, 2009. DRC 2009*, 2009, p. 213-214.
- [24] A. Y. Liu *et al.*, « High performance continuous wave 1.3  $\mu$ m quantum dot lasers on silicon », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 4, p. 041104, janv. 2014.
- [25] J. L. Lievin et F. Alexandre, « Ultra-high doping levels of GaAs with beryllium by molecular beam epitaxy », *Electron. Lett.*, vol. 21, n° 10, p. 413-414, mai 1985.
- [26] J. J. Harris, « Delta-doping of semiconductors », *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 4, n° 2, p. 93-105, juin 1993.
- [27] G. Y. Rudko, I. A. Buyanova, W. M. Chen, H. P. Xin, et C. W. Tu, « Temperature dependence of the GaN<sub>x</sub>P<sub>1-x</sub> band gap and effect of band crossover », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 81, n° 21, p. 3984-3986, nov. 2002.
- [28] M. HENINI, *MOLECULAR BEAM EPITAXY: from research to mass production*. S.I.: ELSEVIER, 2018.
- [29] J.-P. Gauthier *et al.*, « Electrical injection in GaP-based laser waveguides and active areas », in *26th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM)*, 2014, p. 1-2.
- [30] Y. Song et M. L. Lee, « InGaAs/GaP quantum dot light-emitting diodes on Si », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, n° 14, p. 141906, sept. 2013.
- [31] F. Hatami, V. Lordi, J. S. Harris, H. Kostial, et W. T. Masselink, « Red light-emitting diodes based on InP/GaP quantum dots », *J. Appl. Phys.*, vol. 97, n° 9, p. 096106, mai 2005.
- [32] W.-H. Chang *et al.*, « Room-temperature electroluminescence at 1.3 and 1.5  $\mu$ m from Ge/Si self-assembled quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, n° 14, p. 2958-2960, sept. 2003.
- [33] J. X. Chen, U. Oesterle, A. Fiore, R. P. Stanley, M. Ilegems, et T. Todaro, « Matrix effects on the structural and optical properties of InAs quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, n° 22, p. 3681-3683, nov. 2001.
- [34] R. Murray *et al.*, « 1.3  $\mu$ m Room Temperature Emission from InAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38, n° 1S, p. 528, janv. 1999.
- [35] Y. C. Kao et O. Eknoyan, « Electron and hole carrier mobilities for liquid phase epitaxially grown GaP in the temperature range 200–550 K », *J. Appl. Phys.*, vol. 54, n° 5, p. 2468-2471, mai 1983.
- [36] S. M. Sze et G. Gibbons, « AVALANCHE BREAKDOWN VOLTAGES OF ABRUPT AND LINEARLY GRADED p-n JUNCTIONS IN Ge, Si, GaAs, AND GaP », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 8, n° 5, p. 111-113, mars 1966.

- [37] A. S. Barker, « Dielectric Dispersion and Phonon Line Shape in Gallium Phosphide », *Phys. Rev.*, vol. 165, n° 3, p. 917-922, janv. 1968.
- [38] C. Robert, « Study of III-V nanostructures on GaP for lasing emission on Si », INSA, Rennes, 2013.
- [39] R. Z. Bachrach, O. G. Lorimor, L. R. Dawson, et K. B. Wolfstirn, « Evidence for a primarily nonradiative Si<sub>2</sub>O defect in GaP », *J. Appl. Phys.*, vol. 43, n° 12, p. 5098-5101, déc. 1972.
- [40] H. B. Russell, A. N. Andriotis, M. Menon, J. B. Jasinski, A. Martinez-Garcia, et M. K. Sunkara, « Direct Band Gap Gallium Antimony Phosphide (GaSbxP<sub>1-x</sub>) Alloys », *Sci. Rep.*, vol. 6, févr. 2016.
- [41] V. A. Odnoblyudov et C. W. Tu, « Room-temperature yellow–amber emission from InGaP quantum wells grown on an InGaP metamorphic buffer layer on GaP(100) substrates », *J. Cryst. Growth*, vol. 279, n° 1, p. 20-25, mai 2005.
- [42] T. P. Chin, J. C. P. Chang, K. L. Kavanagh, C. W. Tu, P. D. Kirchner, et J. M. Woodall, « Gas-source molecular beam epitaxial growth, characterization, and light-emitting diode application of In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>P on GaP(100) », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 62, n° 19, p. 2369, 1993.
- [43] Y. Zhao, S. J. C. Mauger, N. Bertru, H. Folliot, T. Rohel, et P. M. Koenraad, « Volmer–Weber InAs quantum dot formation on InP (113)B substrates under the surfactant effect of Sb », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, n° 3, p. 033113, juill. 2014.
- [44] K. Pötschke *et al.*, « Ripening of self-organized InAs quantum dots », *Phys. E Low-Dimens. Syst. Nanostructures*, vol. 21, n° 2, p. 606-610, mars 2004.
- [45] G. Stracke *et al.*, « Indirect and direct optical transitions in In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaP quantum dots », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, n° 12, p. 123107, mars 2014.
- [46] Q. Xie *et al.*, « Realization of optically active strained InAs island quantum boxes on GaAs(100) via molecular beam epitaxy and the role of island induced strain fields », *J. Cryst. Growth*, vol. 150, p. 357-363, mai 1995.
- [47] D. A. B. Miller, « Device Requirements for Optical Interconnects to Silicon Chips », *Proc. IEEE*, vol. 97, n° 7, p. 1166-1185, juill. 2009.
- [48] D. Vantrease *et al.*, « Corona: System Implications of Emerging Nanophotonic Technology », in *2008 International Symposium on Computer Architecture*, 2008, p. 153-164.
- [49] J. Ahn *et al.*, « Devices and architectures for photonic chip-scale integration », *Appl. Phys. A*, vol. 95, n° 4, p. 989-997, juin 2009.
- [50] S. L. Beux, J. Trajkovic, I. O'Connor, G. Nicolescu, G. Bois, et P. Paulin, « Optical Ring Network-on-Chip (ORNoC): Architecture and design methodology », in *2011 Design, Automation Test in Europe*, 2011, p. 1-6.
- [51] S. Le Beux *et al.*, « Chameleon: Channel efficient Optical Network-on-Chip », in *Design, Automation and Test in Europe Conference and Exhibition (DATE)*, 2014, 2014, p. 1-6.
- [52] S. Assefa *et al.*, « A 90nm CMOS integrated Nano-Photonics technology for 25Gbps WDM optical communications applications », in *2012 International Electron Devices Meeting*, 2012, p. 33.8.1-33.8.3.
- [53] H. F. Hamann *et al.*, « Hotspot-Limited Microprocessors: Direct Temperature and Power Distribution Measurements », *IEEE J. Solid-State Circuits*, vol. 42, n° 1, p. 56-65, janv. 2007.

- [54] Z. Liu, X. Huang, S. X. D. Tan, H. Wang, et H. Tang, « Distributed task migration for thermal hot spot reduction in many-core microprocessors », in *2013 IEEE 10th International Conference on ASIC*, 2013, p. 1-4.
- [55] J. H. Lau et T. G. Yue, « Thermal management of 3D IC integration with TSV (through silicon via) », in *2009 59th Electronic Components and Technology Conference*, 2009, p. 635-640.
- [56] G. H. Duan *et al.*, « Hybrid III–V on Silicon Lasers for Photonic Integrated Circuits on Silicon », *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 20, n° 4, p. 158-170, juill. 2014.
- [57] J. R. Reboul, L. Cerutti, J. B. Rodriguez, P. Grech, et E. Tournié, « Continuous-wave operation above room temperature of GaSb-based laser diodes grown on Si », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, n° 12, p. 121113, sept. 2011.
- [58] S. Chen *et al.*, « Electrically pumped continuous-wave III–V quantum dot lasers on silicon », *Nat. Photonics*, vol. advance online publication, mars 2016.
- [59] C. Gosset *et al.*, « Sub-Picosecond Pulse Generation at 134 GHz Using a Quantum Dash-Based Fabry-Perot Laser Emitting at 1.56  $\mu\text{m}$  », in *Optical Fiber Communication Conference and Exposition and The National Fiber Optic Engineers Conference (2006), paper OThG1*, 2006, p. OThG1.
- [60] T. Spuesens, L. Liu, T. de Vries, P. R. Romeo, P. Regreny, et D. V. Thourhout, « Improved design of an InP-based microdisk laser heterogeneously integrated with SOI », in *2009 6th IEEE International Conference on Group IV Photonics*, 2009, p. 202-204.
- [61] K. Li, C. Chase, P. Qiao, et C. J. Chang-Hasnain, « Widely tunable 1060-nm VCSEL with high-contrast grating mirror », *Opt. Express*, vol. 25, n° 10, p. 11844-11854, mai 2017.
- [62] G. Crosnier *et al.*, « Hybrid indium phosphide-on-silicon nanolaser diode », *Nat. Photonics*, vol. 11, n° 5, p. 297-300, mai 2017.
- [63] K. Takeda *et al.*, « Few-fJ/bit data transmissions using directly modulated lambda-scale embedded active region photonic-crystal lasers », *Nat. Photonics*, vol. 7, n° 7, p. 569-575, juill. 2013.
- [64] C. Cornet, Y. Léger, et C. Robert, *Integrated Lasers on Silicon*. ISTE-Elsevier, 2016.
- [65] M. T. Hill *et al.*, « Lasing in metallic-coated nanocavities », *Nat. Photonics*, vol. 1, n° 10, p. 589-594, oct. 2007.
- [66] « Low-Threshold near-Infrared GaAs–AlGaAs Core–Shell Nanowire Plasmon Laser - ACS Photonics (ACS Publications) ». [En ligne]. Disponible sur: <https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ph5003945>. [Consulté le: 03-avr-2018].
- [67] « A CMOS 868/915 MHz direct conversion. ZigBee single-chip radio - IEEE Journals & Magazine ». [En ligne]. Disponible sur: <http://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/1561914/>. [Consulté le: 03-avr-2018].
- [68] J. Kern, R. Kulloock, J. Prangma, M. Emmerling, M. Kamp, et B. Hecht, « Electrically driven optical antennas », *Nat. Photonics*, vol. 9, n° 9, p. 582-586, sept. 2015.
- [69] Y. A. Vlasov, « Silicon CMOS-integrated nano-photonics for computer and data communications beyond 100G », *IEEE Commun. Mag.*, vol. 50, n° 2, p. s67-s72, févr. 2012.
- [70] S. Chen *et al.*, « Electrically pumped continuous-wave 1.3  $\mu\text{m}$  InAs/GaAs quantum dot lasers monolithically grown on on-axis Si (001) substrates », *Opt. Express*, vol. 25, n° 5, p. 4632-4639, mars 2017.

## Conclusion

Dans le cadre du projet 3D Optical Manycores du labex CominLabs ayant pour but l'amélioration du rendement énergétique et du débit des interconnexions par l'utilisation d'une couche photonique au sein d'architectures de microprocesseurs 3D, nous avons exploré la possibilité de développer des lasers à QDs dans la filière GaP/Si.

Dans le chapitre 1, l'intégration des sources lasers III/V sur Si a été présentée. Parmi les différentes méthodes d'intégration, l'intérêt de l'approche monolithique GaP/Si avec la possibilité de réaliser une croissance sans dislocation est discuté. Cette approche souffre du caractère indirect du GaP ce qui constitue le verrou technologique principal pour la réalisation de lasers. Deux zones actives sont utilisées dans cette filière : des QWs GaAsPN ayant permis la réalisation de l'unique laser GaP sur Si et des QDs (In,Ga)As. Malgré les études théoriques réalisées à l'institut FOTON sur l'évolution du caractère théorique direct/indirect, type-II/type-I de la transition optique dans ces nanostructures, aucune démonstration du caractère direct de la transition fondamentale n'a pour l'instant été réalisée malgré la réalisation d'un laser GaP sur substrat natif.

Dans le chapitre 2, une étude de la croissance et du dopage de l'AlGaP qui assure le confinement optique et l'injection électrique dans nos structures lasers GaP a été proposée. Le choix s'est porté sur l'utilisation d'AlGaP, peu étudié dans la littérature, au lieu du BGaP dont la croissance est complexe dans un bâti MBE. Aucune relaxation du cristal n'a été observée au cours cette étude, pour des concentrations en Al offrant un confinement optique satisfaisant au sein de la structure laser. Les conditions de croissance comme la température, la vitesse de dépôt et le rapport V/III permettant l'obtention d'une surface de qualité optique avec une faible rugosité et des niveaux de dopage activés élevés sont identifiés. Le dopage n, au contraire du dopage p, présente une gamme de conditions de croissance plus restreinte liée à la présence de pièges à électrons afin d'assurer une activation effective des dopants.

Dans le chapitre 3, une étude des propriétés optiques et structurales des QDs (In,Ga)As/GaP a été menée, avec pour but de les utiliser comme zone active dans nos structures lasers GaP afin de promouvoir une transition directe par une modification de la

structure électronique des QDs. L'origine des transitions observées en PL est identifiée comme étant une transition indirecte de type I entre les niveaux  $X_{xy}$  et HH des QDs (In,Ga)As et une transition indirecte de type-II entre les électrons dans les niveaux  $X_z$  du GaP contraint au voisinage de la QD et les trous dans les niveaux HH des QDs (In,Ga)As. Par un choix judicieux des paramètres de croissance, un croisement type-II/type-I, une réduction de l'énergie des transitions, une hausse de l'intensité de PL et même une transition optique quasi-stable en température ont été obtenus nous assurant une modification effective de la structure électronique des QDs mais sans toutefois obtenir une transition directe. La modification de la procédure d'encapsulation GaP standard et l'empilement de QDs semblent être deux voies prometteuses afin d'y remédier.

Pour finir, les avancées obtenues sur la réalisation de laser GaP sur Si à injection électrique ont été détaillées dans le Chapitre 4. On peut identifier trois verrous technologiques : la maîtrise de l'injection électrique, la maîtrise de l'interface GaP/Si et l'obtention d'une transition optique directe afin d'y accéder. Deux de ces verrous ont été levés par la réalisation d'une LED GaPN/GaP pompée électriquement sur Si émettant à température ambiante. Concernant le dernier verrou, aucun effet laser n'est obtenu dans nos structures lasers ridge à QDs quel que soit le type de pompage. Cependant, pour une injection optique pulsée, un comportement atypique de la PL des transitions est observé qui peut être compatible avec un début de remplissage par effet Auger de l'état excité  $\Gamma$ . L'utilisation d'autre type d'architecture laser afin de baisser le seuil laser est une voie à explorer. Dans cette optique, la PL à température ambiante de plans de QDs (In,Ga)As/GaP a été obtenue au cours de ma thèse sur des structures micro-disques GaP/Si suspendues. Enfin, la comparaison des différents lasers à l'état de l'art intégrés ou potentiellement intégrables sur Si, réalisée en fonction des critères issus des spécificités des interconnexions optique sur puces montre qu'un seul laser respecte pour l'instant ces critères et son intégration sur Si n'est à ce jour pas démontrée. L'intégration de sources lasers respectant les normes des interconnexions optiques reste donc un défi important et aucune voie n'est pour l'instant préférée.

Le verrou principal pour l'obtention d'un laser efficace dans la filière GaP/Si est donc l'obtention d'une transition optique directe. Au sein des QDs (In,Ga)As/GaP, son obtention est très ardue car le GaP a une bande interdite indirecte et la structure électronique associée

aux QDs est complexe avec une compétition entre les transitions indirectes de type-I au sein des QDs et de type-II avec le GaP contraint au voisinage de la QDs. Une possibilité à envisager est l'incorporation de Sb ou d'In dans le cristal de GaP afin de modifier sa structure électronique et ainsi le rendre direct. Cette incorporation d'atomes va modifier le paramètre de maille et l'éloigner de celui du Si avec pour conséquence une augmentation du nombre de dislocations. Il semble donc qu'un compromis reste à trouver entre obtention d'un gap direct et la densité de dislocations créées dans l'approche métamorphique. Une autre voie à explorer est le développement d'un nouveau banc de mesure de pompage optique offrant des densités de puissance optique plus importantes et permettant des mesures de gain afin de clarifier la présence ou non du début de remplissage de l'état excité  $\Gamma$  et à partir de cela, l'exalter dans le but d'obtenir un effet laser. Enfin, l'utilisation d'autres types d'architectures lasers afin de permettre une meilleure dissipation thermique est aussi une possibilité à envisager.



# Annexes

## A. Epitaxie par jet moléculaire

### Principe

L'épitaxie par jet moléculaire (Molecular Beam Epitaxy, MBE) est une technique de croissance dans laquelle les flux d'atomes incidents des éléments constitutants sont envoyés sur un substrat cristallin chauffé. La croissance s'effectue dans un environnement ultravide (Ultra High Vacuum, UHV) à une pression résiduelle d'environ  $10^{-10}$  Torr. Dans cet environnement, les atomes dans la chambre MBE sont dans un régime d'écoulement moléculaire. Ils sont capables de se déplacer tout droit sans aucune collision jusqu'à ce qu'ils atteignent le substrat et s'y collent.

L'empilement d'atomes forme une couche cristalline qui est fortement liée au substrat et est appelée une couche épitaxiée. Le flux d'atomes peut-être temporairement modulé soit par une altération des conditions d'évaporation ou par une interruption mécanique en utilisant un obturateur. La vitesse de croissance est d'environ une monocouche par seconde ce qui permet un contrôle précis de la composition, de l'épaisseur, de la qualité des interfaces et des niveaux de dopage des couches. Cette vitesse peut être ajustée en modifiant les flux d'atomes. L'épaisseur déposée, quant à elle, est contrôlée par le temps d'ouverture des obturateurs.

La plus importante caractéristique pour la croissance par MBE est le fait qu'elle se réalise loin de l'équilibre thermodynamique grâce à l'environnement UHV. La croissance est donc principalement gouvernée par des processus cinétiques de surface. Elle peut être décrite au niveau atomique à l'aide de quatre étapes fondamentales décrites dans la Fig. A.1 : (i) l'adsorption des atomes incidents ou molécules à la surface, (ii) la migration de surface ou dissociation des éléments, (iii) l'incorporation d'atomes dans la maille cristalline du substrat ou des couches épitaxiées et (iv) la désorption thermique des éléments non incorporés dans la maille cristalline. La croissance cristalline hétérogène de couches épitaxiées contraintes par MBE crée une interface solide-solide.

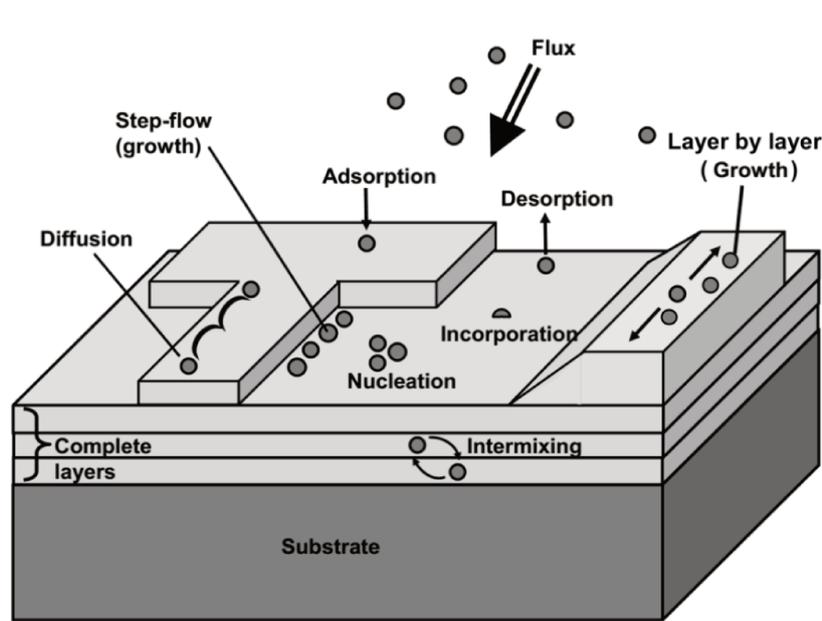


Fig. A.1 Illustration des différents processus physiques durant une croissance MBE

### Bâti de croissance UHV/CVD-MBE

Un bâti de croissance UHV/CVD-MBE a été installé au laboratoire FOTON-OHM en 2010. Il se compose d'une chambre UHV/CVD Riber dédiée à la croissance silicium et d'une chambre MBE à source solides (SSMBE) Riber compact 21 consacrée à la croissance des semi-conducteurs III-V. Les deux chambres sont connectées par un tunnel UHV qui permet de maintenir un vide de l'ordre de  $10^{-9}$  Torr à l'aide d'une pompe ionique. Une représentation schématique de ce bâti est donnée en Fig. A.2.

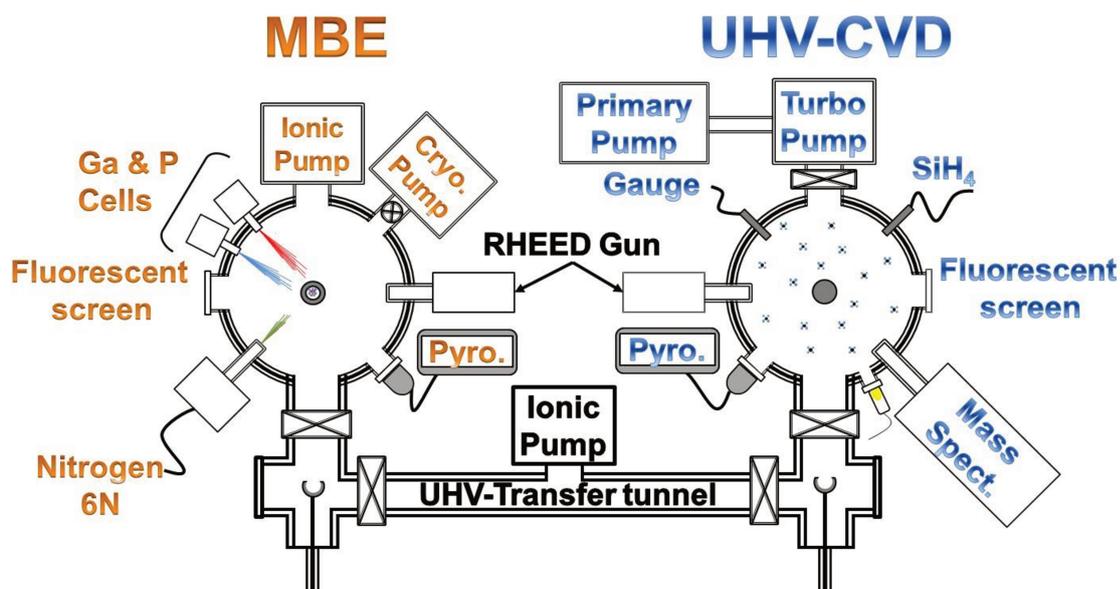


Fig. A.2 Schéma du bâti de croissance UHV/CVD-MBE utilisé au laboratoire FOTON-OHM

Pour ce qui est de la chambre MBE à sources solides, les éléments du groupe III (Ga, Al et In) sont fournis à l'aide de cellules conventionnelles à effusion de type Knusden qui contiennent des sources de métaux solides de haute pureté : 7N pour le Gallium et l'Indium et 6N5 pour l'Al. Les éléments du groupe V (P, As, Sb) sont fournis par des cellules à effusion thermique où les sources solides de ces éléments (pureté 7N) sont chauffées et la vapeur passe ensuite dans une vanne cracker. Sous l'effet du chauffage, le phosphore et l'arsenic sont libérés sous forme de tétramère ( $P_4$ ,  $As_4$ ). Puis, ils sont fracturés par le cracker sous forme de molécules de  $P_2$  et de  $As_2$ . La présence d'une vanne à la sortie des cellules permet un bon contrôle du flux. Une cellule plasma ADDON RF est aussi présente de façon à pouvoir croître des alliages d'azotes dilués comme le GaPN, InGaAsN, le GaAsPN, etc. L'azote gazeux de haute pureté (6N) est injecté dans la cellule à travers un contrôleur de flux permettant un contrôle précis du flux gazeux. Quant au plasma, il est généré par une antenne cuivre. La pression durant la croissance est généralement de l'ordre de  $10^{-7}$ - $10^{-5}$  Torr. La vitesse de croissance des composés III-V est contrôlée par le flux d'éléments III.

La croissance est suivie in-situ grâce à la diffraction d'électrons à haute énergie en incidence rasante (Reflection High-Energy Electron Diffraction, RHEED). Il est principalement composé d'un canon à électron et d'un écran fluorescent. Les diagrammes de diffractions obtenus donnent des informations sur les modes de croissance et les reconstructions de surface.



## B. Diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X est une méthode non destructive ne nécessitant pas de préparation spécifique qui permet l'étude du réseau réciproque d'un cristal.

### Espace réciproque

Dans l'espace réel, la maille élémentaire d'un cristal peut être définie par trois vecteurs de base  $a_1$ ,  $a_2$  et  $a_3$ . On peut définir ainsi un vecteur de position pour les atomes du cristal :

$$R = n_1 a_1 + n_2 a_2 + n_3 a_3 \quad (\text{B.1})$$

avec  $n_1, n_2, n_3$  des nombres entiers. L'espace réciproque est défini suivant les vecteurs de base  $a_1^*$ ,  $a_2^*$  et  $a_3^*$  :

$$a_1^* = \frac{a_2 \times a_3}{a_1 \cdot a_2 \times a_3}$$

$$a_2^* = \frac{a_3 \times a_1}{a_1 \cdot a_2 \times a_3} \quad (\text{B.2})$$

$$a_3^* = \frac{a_1 \times a_2}{a_1 \cdot a_2 \times a_3}$$

On peut définir un vecteur dans l'espace réciproque :

$$G = h a_1^* + k a_2^* + l a_3^* \quad (\text{B.3})$$

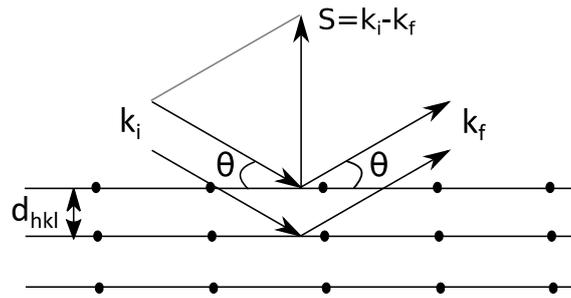
avec  $(h \ k \ l)$ , un plan cristallographique. Ce vecteur est perpendiculaire au plan  $(h \ k \ l)$  et sa norme est l'inverse de la distance entre les plans cristallographiques  $d_{hkl}$ .

### Condition de Bragg

La condition de diffraction d'un plan cristallographique  $(h \ k \ l)$  est donnée par la loi de Bragg (Fig. B.1) :

$$2 d_{hkl} \sin \theta = \lambda \quad (\text{B.4})$$

avec  $\lambda$ , la longueur d'onde et  $\theta$ , l'angle incident (émergent).  $k_i$  et  $k_f$  sont les vecteurs de diffusion réduits selon la direction incidente et diffusée. La norme de ces vecteurs est  $\frac{1}{\lambda}$ .



**Fig. B.1 Schéma du principe de fonctionnement de la diffraction rayons X de plans cristallographique (h k l)**

On peut définir le vecteur de diffusion :

$$S = k_i - k_f \quad (\text{B.5})$$

Dans les conditions de Bragg, on a donc :

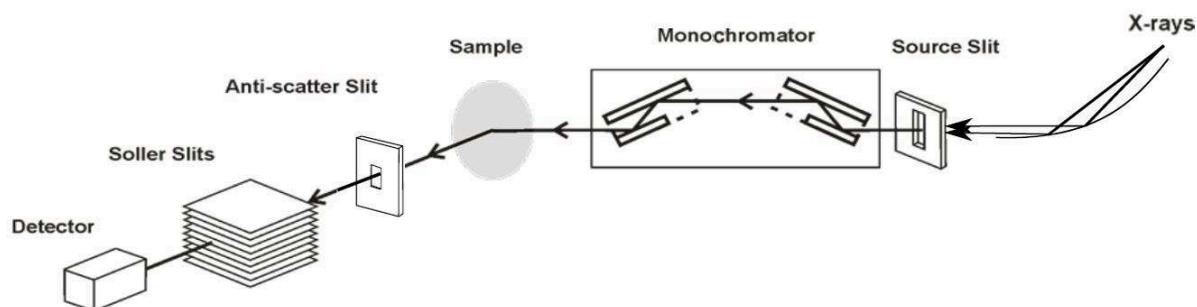
$$|S| = \frac{2 \sin \theta}{\lambda} = \frac{1}{d_{hkl}} = |G| \quad (\text{B.6})$$

Une intensité de rayons X diffractée est observée seulement lorsque le vecteur de diffusion  $S$  est un vecteur de l'espace réciproque. On appelle cette condition la condition de Laue. Pour un scan de type  $\omega$ - $2\theta$ , lorsqu'une rotation d'angle  $\omega$  est appliquée à l'échantillon, le détecteur se déplace d'un angle  $2\theta$  de façon à garantir la condition mentionnée précédemment.

### Diffraction des rayons X au laboratoire

L'Institut FOTON dispose dans l'équipe OHM, d'un diffractomètre sur source Cuivre conventionnel. Il est équipé d'un monochromateur Ge(220) 4 réflexions (Bartels) et d'un détecteur ponctuel. Il permet de réaliser des mesures de base comme le scan  $\omega$ - $2\theta$  décrit précédemment. Nous utilisons également un équipement plus récent au sein de l'équipe CSM de l'institut de Sciences Chimiques de Rennes (ISCR). Sur cet équipement, un miroir parabolique multicouche [1], [2] permet de rendre parallèle le faisceau linéaire issu de la source. De plus, il permet de rendre le faisceau partiellement monochromatique et d'effectuer une amplification du flux total. La largeur du faisceau est limitée à 1 mm à la sortie du miroir. Un monochromateur asymétrique à 4 réflexions Ge(022) (Bartels) est ensuite utilisé de façon à réduire la divergence du faisceau de rayons X à  $0,008^\circ$  et à ne sélectionner que la longueur d'onde  $0,154056 \text{ nm}$  ( $K\alpha_1$  du cuivre). Une fente anti-diffusion de 8 mm de large et 15 mm de haut ainsi que des fentes Soller d'acceptance  $2,5^\circ$  sont

ajoutées avant le détecteur afin de réduire la diffusion parasite. Nous utilisons un détecteur multicanaux linéaire (190 canaux sur 13,5mm de large) qui correspond à une ouverture angulaire de 2,6 degrés selon  $2\theta$ . Ce type de détecteur est maintenant couramment utilisé. Il permet une plus grande souplesse d'utilisation en mode 0D (le détecteur se comporte comme une fente variable). En mode 1D, il permet une cartographie plus rapide de l'espace réciproque. Le dispositif expérimental est résumé dans la Fig. B.2



**Fig. B.2 Dispositif expérimental de diffraction des rayons X au laboratoire FOTON-OHM**



## C. Microscopie à force atomique

La microscopie à force atomique (Atomic Force Microscopy, AFM) est une méthode locale d'analyse qui permet d'obtenir des informations sur la topographie de la surface. C'est un outil important afin d'extraire des informations qualitatives et quantitatives sur la morphologie de la surface. Les semi-conducteurs III-V sont très stables dans l'environnement ambiant malgré l'apparition d'une fine couche d'oxyde due à l'exposition à l'air ambiant. De ce fait, aucun traitement de surface de l'échantillon n'est nécessaire avant de réaliser la mesure. L'AFM utilisé dans cette thèse est le modèle Veeco diInnova 2007 qui permet d'obtenir des images jusqu'à  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  avec une amplitude maximale d'environ  $6 \mu\text{m}$ .

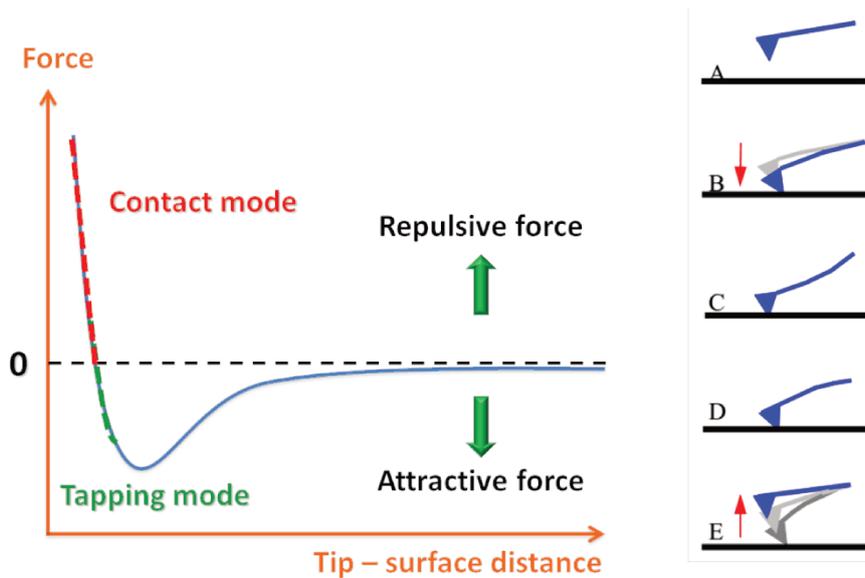
### Principe

Une pointe (typiquement faite en  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ou Si) est fixée à un levier déformable et sonde la surface d'intérêt à l'aide de l'interaction entre la pointe et la surface. Cette interaction peut être de différents types: Force de Van Der Waals, capillarité, électrostatique ou magnétique en fonction de l'échantillon étudié. La déviation du levier  $Z$  est proportionnelle à la force d'interaction  $F$  :

$$F = kZ \quad (\text{C.1})$$

La déviation est mesurée par un système de détection : le faisceau d'une source laser est focalisé sur le haut du levier et est réfléchi puis détecté par un détecteur composé de quatre photodiodes. Ce dispositif de détection va permettre l'enregistrement de la variation spatiale de l'intensité du laser induite par la déviation du levier dans les trois directions de l'espace. En même temps, le substrat est déplacé afin de garder une interaction constante entre la pointe et la surface du substrat. Ce mouvement est réalisé à l'aide d'actuateurs piézoélectriques dont l'expansion et le rétrécissement vont entraîner le déplacement dans les trois directions. A l'aide d'un système de rétroaction, le mouvement de l'actuateur en  $Z$  est indirectement contrôlé par le signal reçu par le détecteur.

Les mesures AFM peuvent être réalisées à l'aide de deux modes : contact et non-contact. La principale différence vient de l'interaction entre la pointe et l'échantillon. Cette interaction peut être attractive ou répulsive en fonction de la distance entre la pointe et l'échantillon comme le montre la Fig. C.1.



**Fig. C.1 Evolution de la force appliquée par la pointe en fonction de la distance pointe-surface (partie gauche) et représentation de l'interaction entre la pointe et la surface (partie droite).**

Le mode de contact utilise seulement la force de répulsion alors que le mode non-contact (« tapping ») utilise alternativement la force de répulsion et d'attraction. Pour commencer, la pointe est loin de la surface de l'échantillon. Quand la pointe s'approche de la surface (A), elle arrive à portée des interactions attractives et vient au contact de la surface (seulement si la force d'attraction de la surface de l'échantillon est assez importante) (B). Une fois que la pointe a touché la surface (C), la partie fixe du levier continue à bouger ce qui induit une augmentation de la déflexion du levier jusqu'à ce que la rétractation commence. Ce processus est réversible et continue jusqu'à obtenir la force souhaitée (D). Quand le levier se retire, les liens formés durant le contact forcent l'adhésion de la pointe à la surface puis se brisent en augmentant la distance entre la surface de l'échantillon et la pointe (E).

Dans cette thèse, seul le mode contact a été utilisé. Après contact de la pointe avec la surface de l'échantillon étudié, la déviation du levier est mesurée à partir d'une position de référence pendant que la pointe balaye la surface. Pour ce qui est de la position de la pointe, elle est mesurée à l'aide de la réflexion du signal laser sur le levier par les photodiodes. La référence étant choisie lorsque la réflexion du laser coïncide avec le centre du dispositif de détection. Le déplacement du levier correspond donc à un décalage de cette position centrale. Le support de l'échantillon est placé sur un piézoélectrique qui est contrôlé par une

boucle de rétroaction électrique. Lorsque la pointe se déplace sur la surface, la position du faisceau réfléchi correspondante est enregistrée et est transmise à la rétroaction. Au même instant, le piézoélectrique change la position de l'échantillon à partir de la rétroaction. La topographie de la surface est obtenue en utilisant le signal de cette boucle.



## D. Caractérisations électriques

### Effet Hall

C'est une technique non destructive qui permet de déterminer la résistivité  $\rho$ , la mobilité  $\mu$  et la concentration de porteurs libres d'un semi-conducteur  $c$ . Le principe de cette mesure est illustré dans la Fig. D.1.

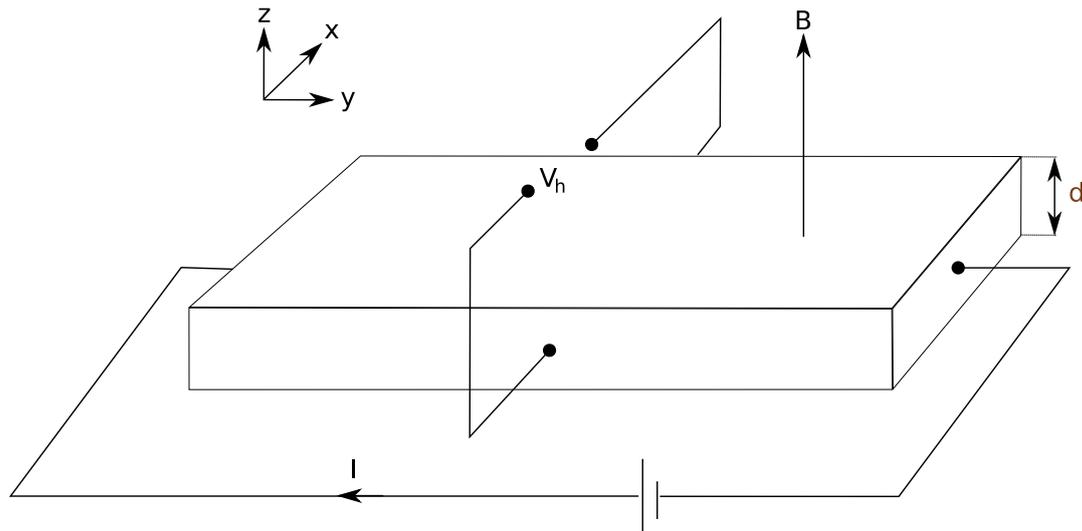


Fig. D.1 Schéma du principe de la mesure par effet Hall.

Si un courant  $I$  traverse un semi-conducteur placé dans un champ magnétique uniforme  $B$ , les trajectoires des porteurs injectés vont être infléchies par la force de Lorentz dû au champ magnétique. Cette accumulation de charges va créer un champ électrique qui va s'opposer à l'effet du champ magnétique et ainsi créer une tension appelée tension de Hall :  $V_H$ . A partir de  $V_H$ , de  $\rho$  et de la dimension du semi-conducteur considéré  $d$ , on peut calculer  $c$  et  $\mu$  à partir de équations suivantes :

$$c = \frac{IB}{q d V_H} \quad (\text{D.1})$$

$$\mu = \frac{1}{q c \rho} \quad (\text{D.2})$$

Avec  $q$ , la charge élémentaire. Le signe de  $V_H$  détermine le type de porteurs majoritaires. La détermination de  $\rho$  et de  $V_H$  est le plus souvent réalisée en utilisant la configuration de Van der Pauw [1]. Dans notre cas, le motif est carré avec les contacts ohmiques circulaires placés dans chacun des coins.

## C(V)

La méthode C(V), capacité en fonction de la tension (voltage, V), est une mesure non destructive de la barrière de capacité d'une association de semi-conducteurs, comme des jonctions p-n, qui permet de déterminer les niveaux de dopants ionisés. Les mesures C(V) nécessitent l'utilisation de contacts circulaires de type Schottky en face avant et ohmique en face arrière. Sous polarisation directe, la largeur de la zone de charge d'espace est  $W$  :

$$W(V) = \sqrt{\frac{2\varepsilon_s}{qN_d}(V_d - V)} \quad (\text{D.3})$$

Avec  $\varepsilon_s$ , la permittivité du semi-conducteur,  $N_d$  la densité de porteurs et  $V_d$ , la tension de diffusion de la diode.

La capacité différentielle est donnée par l'équation suivante :

$$C(V) = \left| \frac{dQ}{dV} \right| = S \sqrt{\frac{\varepsilon_s q N_d}{2(V_d - V)}} = \frac{\varepsilon_s S}{W} \quad (\text{D.4})$$

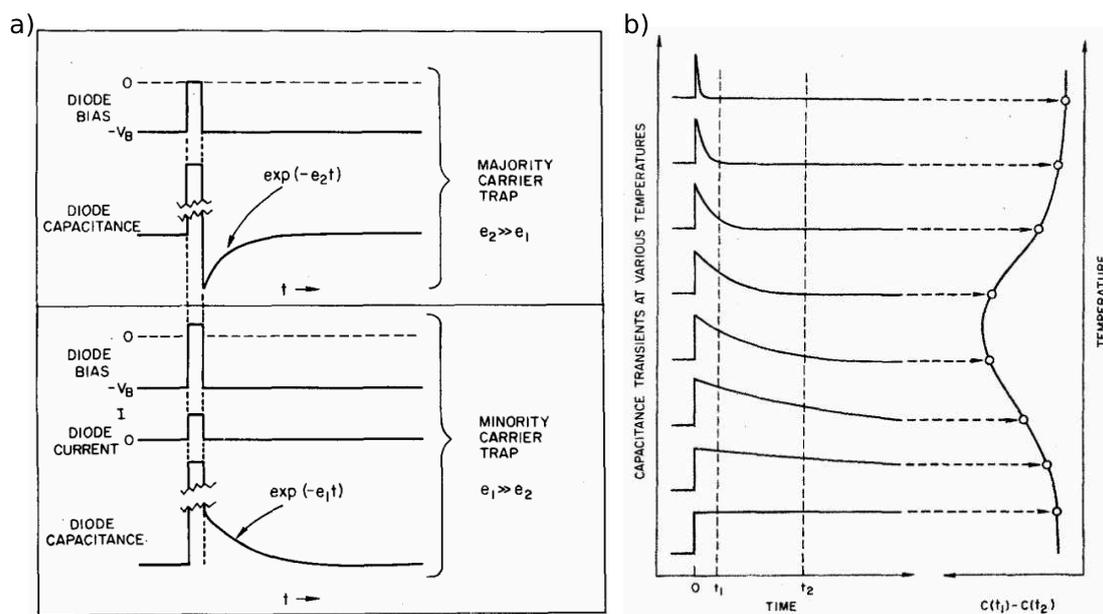
Avec  $S$ , la surface de la jonction.

La concentration de dopants ionisés est donc obtenue par la formule suivante :

$$N_d = \frac{-2}{\varepsilon_s q S^2} \frac{1}{d \frac{1}{C^2}} \frac{1}{dV} \quad (\text{D.5})$$

## Spectroscopie transitoire de centres profonds

La spectroscopie transitoire de centres profonds (Deep Level Transient Spectroscopy, DLTS) est une mesure non-destructive basée sur les travaux de D. V. Lang *et al.* [2]. Cette méthode permet de caractériser les centres profonds : temps de vie, taux d'émission, concentration et énergie d'activation dans une jonction de semi-conducteurs. Les contacts utilisés sont ceux utilisés pour la méthode C(V). On distingue deux types de pièges pour porteurs majoritaires (trous) et minoritaires (électrons). Afin de les étudier séparément, il existe deux types de séquence d'injection décrites dans la Fig. D.2a basées sur une tension de polarisation négative.



**Fig. D.2 a) Polarisation de la jonction et évolution temporelle correspondante de la capacité transitoire pour l'étude des pièges à porteurs majoritaires (partie haute) et des pièges à porteurs minoritaires (partie basse). b) Evolution de la capacité transitoire en fonction de la température (partie gauche) et signal DLTS  $C(t_1) - C(t_2)$  correspondant (partie droite). Figures issues de [2].**

La première séquence (partie haute de Fig. D.2a) consiste à réduire la tension de polarisation brièvement de façon à introduire seulement des porteurs majoritaires (électrons) et ainsi étudier les pièges à porteurs majoritaires. La seconde (partie basse de Fig. D.2a) consiste à polariser brièvement la jonction en direct de façon à introduire seulement des porteurs minoritaires (électrons) et ainsi étudier les pièges à porteurs minoritaires. L'évolution temporelle de la capacité transitoire correspondante est aussi représentée avec  $e_1$  et  $e_2$ , le taux d'émission des porteurs minoritaires et majoritaires. Ce taux d'émission est défini suivant l'équation suivante :

$$e = \frac{1}{\tau_{max}} = \frac{\sigma \langle v \rangle N_c}{g} e^{-\frac{\Delta E}{kT}} \quad (\text{D.6})$$

$\sigma$  représente la section efficace de capture des porteurs minoritaires ou majoritaires,  $\langle v \rangle$  la vitesse thermique,  $N_c$  la densité d'états dans la bande des porteurs minoritaires ou majoritaires,  $g$  le terme de dégénérescence,  $\Delta E$  l'énergie d'activation des pièges,  $T$  la température absolue et  $k$ , la constante de Boltzmann.  $\tau_{max}$  est le temps de vie des pièges considérés et défini suivant l'équation suivante :

$$\tau_{max} = \frac{t_1 - t_2}{\ln \frac{t_1}{t_2}} \quad (\text{D.7})$$

avec  $t_1$  et  $t_2$  qui sont définis comme le temps auquel les mesures de capacité  $C(t_1)$  et  $C(t_2)$  sont réalisés comme illustré dans la Fig. D.2b. Le signal DLTS standard est  $C(t_1) - C(t_2)$  (normalisé ou non par la capacité en régime établi) en fonction de la température. Il existe aussi une méthode appelée la DLTS à température constante (Isothermal DLTS, I-DLTS) [3] où le signal I-DLTS  $C(t_1) - C(t_2)$  est représenté en fonction de  $\tau$  à température constante.

### Références de l'annexe D

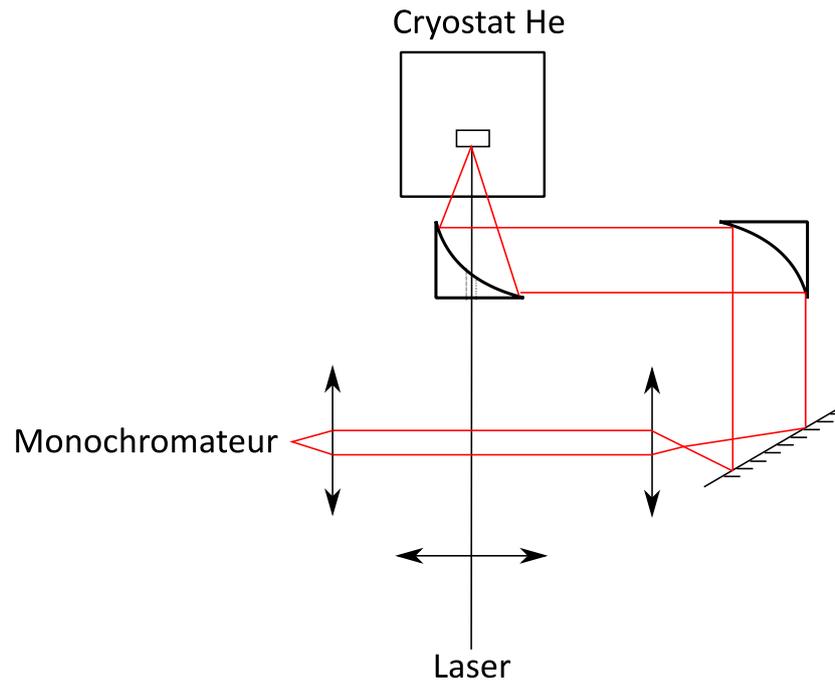
- [1] L. J. Van der Pauw, « A method of measuring the resistivity and Hall coefficients on lamellae of arbitrary shape », *Philips Technical Review*, vol. 20, n° 8, p. 220-224, 1958.
- [2] D. V. Lang, « Deep-level transient spectroscopy: A new method to characterize traps in semiconductors », *J. Appl. Phys.*, vol. 45, n° 7, p. 3023-3032, juill. 1974.
- [3] V. I. Turchanikov, V. S. Lysenko, et V. A. Gusev, « Isothermal DLTS method using sampling time scanning », *Phys. Status Solidi A*, vol. 95, n° 1, p. 283-289, mai 1986.

## E. Caractérisations optiques

### Photoluminescence

La photoluminescence est un outil d'analyse non destructif qui est basé sur l'émission de lumière résultant d'une recombinaison radiative de porteurs dans un échantillon après excitation optique extérieure. Pour réaliser l'excitation non-résonante de nos QDs (In,Ga)As/GaP, nous disposons d'une source laser continue à 405 nm et une source pulsée à 355 nm présentant un taux de répétition de 7 kHz pour des impulsions de 7 ns. Ces sources lasers sont filtrées par un filtre passe-bande afin d'atténuer le pied d'émission de la raie laser dans la bande spectrale mesurée. La densité de puissance injectée est contrôlée par le biais d'une roue de densités optique permettant de sonder 4 ordres de grandeurs de puissance.

Il existe deux dispositifs séparés : l'un dédié à la photoluminescence à température ambiante avec des diamètres de faisceau de l'ordre de 70  $\mu\text{m}$  et l'autre dédié à la photoluminescence en fonction de la température avec des diamètres de faisceau de l'ordre de 50  $\mu\text{m}$ . Dans les deux cas, le signal de l'échantillon est dispersé par un monochromateur Horiba Jobin-Yvon iHR320 et détecté par une CCD Si open-electrode refroidie (Horiba Sincerity). Dans le cas de la photoluminescence en fonction de la température, l'échantillon est placé dans un cryostat à recirculation d'He (ARS Inc.) nous permettant l'accès à des températures de 10 à 350 K. L'excitation et la collection du signal se font en configuration colinéaire grâce à un miroir parabolique percé (Fig. E.1). Cette configuration permet entre autre d'avoir peu de pertes dans le montage pour la puissance d'excitation tout en conservant une grande ouverture numérique et peu d'aberration chromatique au niveau de la détection.



**Fig. E.1 Excitation et collection pour le dispositif expérimental de photoluminescence en fonction de la température.**

### **Pompage optique**

Dans notre cas, ce type de mesure est réalisé en fonction de la température donc l'échantillon est placé dans le cryostat. L'excitation est réalisée par une lentille cylindrique par l'intermédiaire d'une configuration  $2f-2f$  de façon à obtenir un bandeau d'excitation de l'ordre de  $0.01 \times 3 \text{ mm}^2$ . La longueur de ce bandeau peut-être réduite par l'ajout d'une fente réglable au niveau de la focale  $f_1$  afin de réaliser des mesures de gain optique. La collection du signal est réalisée par la tranche à l'aide d'une lentille de collection comme illustré dans la Fig. E.2.

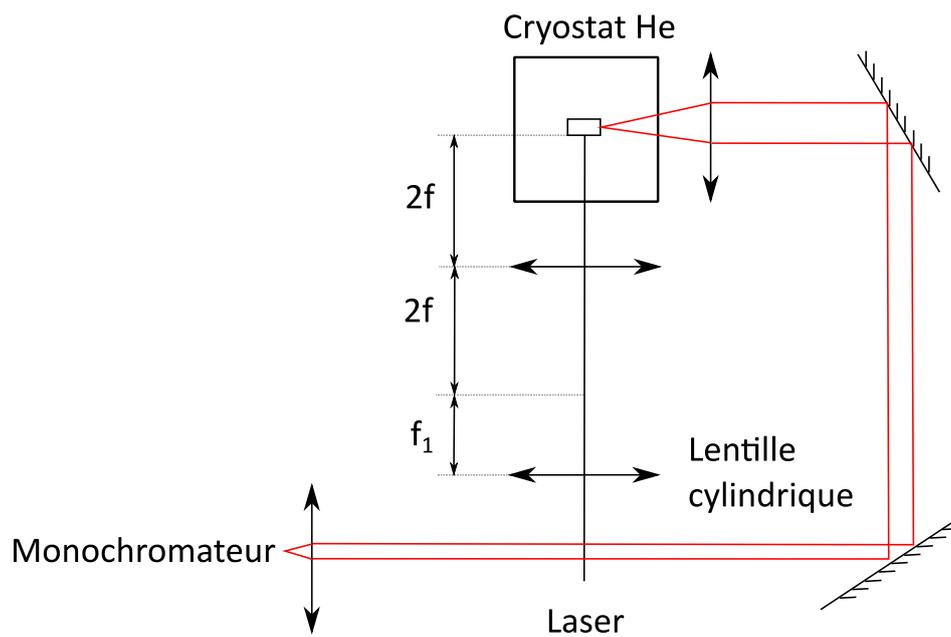


Fig. E.2 Excitation et collection pour le dispositif expérimental de pompage optique



# Publications

## Articles

\***R. Tremblay**, J. P. Burin, T. Rohel, J. P. Gauthier, S. Almosni, A. Létoublon, Y. Léger, A. Le Corre, N. Bertru, O. Durand and C. Cornet. « MBE growth and doping of AlGaP », J. Cryst.Growth, vol. 466, p. 6-15, mai 2017

\*Y. P. Wang, J. Stodolna, M. Bahri, J. Kuyyalil, T. N. Thanh, S. Almosni, R. Bernard, **R. Tremblay**, M. D. Silva, A. Létoublon, T. Rohel, K. Tavernier, L. Largeau, G. Patriarche, A. L. Corre, A. Ponchet, C. Magen, C. Cornet, et O. Durand, « Abrupt GaP/Si hetero-interface using birstepped Si buffer », Applied Physics Letters, vol. 107, no 19, p. 191603, nov. 2015

## Communications orales

\***R. Tremblay**, T. Rohel, Y. Léger, A. Le Corre, R. Bernard, N. Bertru, O. Durand and C. Cornet. «Optical properties of GaP/Si active microdisks containing InGaAs/GaP quantum dots», Oral à NANOP 2017, Barcelone, Espagne, 13 Septembre-15 Septembre 2017.

\*Y. Léger, **R. Tremblay**, A. Létoublon, C. Cornet. «Opportunities and Obstacles of Monolithic III-V Integration on Silicon», Oral invité at Design, Automation & Test in Europe conference (DATE 2017) - 3rd International Workshop on Optical/Photonic Interconnects for Computing Systems (OPTICS Workshop), Mars 2017, Lausanne, Switzerland.

\*Y. Léger, **R. Tremblay**, I. Lucci, C. Cornet « Laser integration challenges for on-chip optical interconnects », Oral invité au workshop OPTICS 2016, Dresden, 14-18 Mars 2016

\*C. Cornet, O. Skibitzki, M. Bahri, Y. Ping Wang, P. Guillemé, M. Da Silva, **R. Tremblay**, P. Rôle, S. Charbonnier, P. Turban, L. Largeau, G. Patriarche, L. Lombez, Y. Dumeige, Y. Yamamoto, P. Zaumseil, M. A. Schubert, T. Rohel, C. Levallois, A. Létoublon, J.-F. Guillemoles, T. Schroeder, Y. Léger and O. Durand, « (In)GaP integration on Si for photonics and energy », Oral invité à l' EMRS Fall meeting, Warsaw, Poland, 15 - 18 Septembre 2015

\***R. Tremblay**, Y. Huang, J.P. Gauthier, R. Piron, A. Beck, C. Levallois, C. Paranthoën, J. P. Burin, L. Pedesseau, J. Even, T. Rohel, K. Tavernier, J. Stervinou, A. Balocchi, H. Carrère, X. Marie, O. Durand, Y. Léger and C. Cornet, « Electroluminescence of InGaAs/GaP quantum dots and band engineering of AlGaP/GaP laser injection layers », Oral à « Compound semiconductor week » Santa Barbara, USA, 28 Juin-2 Juillet 2015

## Séminaires

\***R. Tremblay**, A. Letoublon, C. Cornet, Présentation orale lors de la réunion T0+30 du projet ANR OPTOSI, Paris, 9 Septembre 2015

\***R. Tremblay**, Y. Léger, Présentation orale lors de la réunion du projet Cominlabs : 3D-Optical-ManyCores, Rennes, 5 Novembre 2015

\***R. Tremblay**, Y. Léger, Présentation orale lors de la réunion du projet Cominlabs : 3D-Optical-ManyCores, Lyon, 6 Mars 2015

\***R. Tremblay**, A. Letoublon, C. Cornet, Présentation orale lors de la réunion T0+24 du projet ANR OPTOSI, Montpellier, 4 Décembre 2014

## Présentations posters

\***R. Tremblay**, T. Rohel, Y. Léger, A. Le Corre, R. Bernard, N. Bertru, O. Durand, C. Cornet. « Indium content impact on structural and optical properties of (In,Ga)As/GaP quantum dots » Poster aux Journées Surfaces et Interfaces 2017, Rennes, France, 25-27 janvier 2017.

\* P. Besnard, C. Peucheret, P. Féron, Y. Léger, O. Durand, A. Parini, Y. Dumeige, Y. Boucher, **R. Tremblay**, C. Cornet, O. Sentieys, D. Chillet, C. Killian, J. Luo, V.-D. Pham, A. Elantably, S. Le Beux, I. O'Connor, X. Letartre, C. Monat. « 3D Many-Core Architectures based on Optical Network on Chip », Poster aux CominlabsDays 2016, Rennes, 30 Novembre 2016

\***R. Tremblay**, T. Rohel, Y. Léger, A. Le Corre, R. Bernard, N. Bertru, O. Durand and C. Cornet. « Structural and optical properties investigation of (In,Ga)As/GaP quantum dots for direct bandgap emission », Poster à l'IC-MBE 2016, Montpellier, France, 4 Septembre-9 Septembre

\***R. Tremblay**, J. P. Burin, T. Rohel, J. P. Gauthier, S. Almosni, A. Létoublon, Y. Léger, A. Le Corre, N. Bertru, O. Durand and C. Cornet. « AlGaP-growth and doping by MBE », Poster à l'IC-MBE 2016, Montpellier, France, 4 - 9 Septembre 2016

\***R. Tremblay**, Y. Huang, J.P. Gauthier, R. Piron, A. Beck, C. Levallois, C. Paranthoën, J. P. Burin, L. Pedesseau, J. Even, T. Rohel, K. Tavernier, J. Stervinou, A. Balocchi, H. Carrère, X. Marie, O. Durand, Y. Léger and C. Cornet « Electroluminescence de boîtes quantiques InGaAs/GaP et Ingénierie de bande des couches d'injection laser AlGaP/GaP », Poster à Optique Bretagne 2015, Rennes, 09 Juillet 2015

\*A. Talneau, **R. Tremblay**, A. Lupu « Guides nanostructurés couplés, à couplage ajustable », Poster à Optiques Bretagne 2015, Rennes, 09 Juillet 2015

\* P. Besnard, C. Peucheret, P. Féron, Y. Léger, O. Durand, A. Parini, Y. Dumeige, Y. Boucher, **R. Tremblay**, C. Cornet, O. Sentieys, D. Chillet, C. Killian, J. Luo, M. J. S. Florez, V.-D. Pham, S. Le Beux, I. O'Connor, X. Letartre, C. Monat, « 3D Many-Core Architectures based on Optical Network on Chip », Poster aux CominlabsDays 2015, Rennes, 23 Mars 2015

\*J.-P. Gauthier, C. Robert, S. Almosni, C. Cornet, Y. Léger, M. Perrin, J.-P. Burin, A. Létoublon, J. Even, **R. Tremblay**, A. Beck, H. Carrère, A. Balocchi, X. Marie, and O. Durand « Carrier injection in GaP-based laser waveguides and dilute nitrides gain medium », Poster à l'Euro-MBE 2015, Canazei, Italy, 15-18 Mars 2015.



## AVIS DU JURY SUR LA REPRODUCTION DE LA THESE SOUTENUE

**Titre de la thèse:**

Propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium

**Nom Prénom de l'auteur : TREMBLAY RONAN**

**Membres du jury :**

- Monsieur BERTRU Nicolas
- Monsieur CORNET Charles
- Monsieur LEGER Yoan
- Monsieur CHRISTOL Philippe
- Monsieur WALLART Xavier
- Madame MONROY Eva

Président du jury : *Nicolas BERTRU*

Date de la soutenance : 21 Novembre 2018

Reproduction de la these soutenue

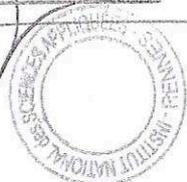
- Thèse pouvant être reproduite en l'état  
 Thèse pouvant être reproduite après corrections suggérées

Fait à Rennes, le 21 Novembre 2018

Signature du président de jury

Le Directeur,

M'hamed DRISSI





**Titre :** Propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium

**Mots clés :** Photonique sur silicium, semi-conducteurs III-V, MBE, Phosphure de gallium, boîtes quantiques InGaAs/GaP

**Résumé :** Ce travail de thèse porte sur les propriétés structurales, optiques et électriques de nanostructures et alliages à base de GaP pour la photonique intégrée sur silicium. Parmi les méthodes d'intégration des semi-conducteurs III-V sur Si, l'intérêt de l'approche GaP/Si est tout d'abord discuté. Une étude de la croissance et du dopage de l'AlGaP est présentée afin d'assurer le confinement optique et l'injection électrique dans les structures lasers GaP. Les difficultés d'activation des dopants n sont mises en évidence. Ensuite, les propriétés de photoluminescence des boîtes quantiques InGaAs/GaP sont étudiées en fonction de la température et de la densité d'excitation. Les transitions optiques mises en jeu sont identifiées comme étant des transitions indirectes de type-I avec les électrons dans les niveaux  $X_{xy}$  et les trous dans les niveaux HH des boîtes quantiques InGaAs et de type-II avec les électrons dans les niveaux  $X_z$  du GaP contraint.

Malgré une modification notable de la structure électronique de ces émetteurs, une transition optique directe et type I n'est pas obtenue ce qui reste le verrou majeur pour la promotion d'émetteurs GaP sur Si. La maîtrise de l'interface GaP/Si et de l'injection électrique est par ailleurs validée par la démonstration de l'électroluminescence à température ambiante d'une LED GaPN sur Si. Si l'effet laser n'est pas obtenu dans les structures lasers rubans GaP, un possible début de remplissage de la bande  $\Gamma$  dans les QDs est discuté. Enfin, l'adéquation des lasers à l'état de l'art avec les critères d'interconnexions optiques sur puce est discuté.

**Title :** Structural, optical, electrical properties of GaP-based nanostructures and alloys for integrated photonics on silicon

**Keywords :** Photonics on silicon, III-V semiconductors, Gallium phosphide, MBE, InGaAs/GaP quantum dots

**Abstract:** This PhD work focuses on the structural, optical, electrical properties of GaP-based nanostructures and alloys for integrated photonics on silicon. Amongst the integration approaches of III-V on Si, the interest of GaP/Si is firstly discussed. A study of the growth and the doping of AlGaP used as laser cladding layers (optical confinement and electrical injection) is presented. The activation complexity of n-dopants is highlighted. Then, the photoluminescence properties of InGaAs/GaP quantum dots are investigated as a function of temperature and optical density. The origin of the optical transitions involved are identified as (i) indirect type-I transition between electrons in  $X_{xy}$  states and holes in HH states of quantum dots InGaAs and (ii) indirect type-II with electrons in  $X_z$  states of strained GaP.

Despite an effective modification in the electronic structure of these emitters, a direct type I optical transition is not demonstrated. This is the major bottleneck in the promotion of GaP based emitters on Si. This said, the control of the GaP/Si interface and electrical injection are confirmed by the demonstration of electroluminescence at room temperature on Si. If no laser effect is obtained in rib laser architectures, a possible beginning of  $\Gamma$  band filling in QDs is discussed. Finally, the adequacy of state of the art integrated lasers with the development of on-chip optical interconnects is discussed.