



HAL
open science

ÉMISSION et MODULATION INTERSOUSBANDE dans les NANOSTRUCTURES de NITRURES

Laurent Nevou

► **To cite this version:**

Laurent Nevou. ÉMISSION et MODULATION INTERSOUSBANDE dans les NANOSTRUCTURES de NITRURES. Physique [physics]. Université Paris Sud - Paris XI, 2008. Français. NNT: . tel-00282996

HAL Id: tel-00282996

<https://theses.hal.science/tel-00282996>

Submitted on 28 May 2008

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.

N° D'ORDRE : 9017



THÈSE DE DOCTORAT

Spécialité : Physique

Présentée par

LAURENT NEVOU

ÉMISSION et MODULATION INTERSOUSBANDE dans
les NANOSTRUCTURES de NITRURES

Soutenue le 20 Mai 2008 devant les membres du jury :

Vincent BERGER	Président du jury
Jérôme FAIST	Rapporteur
Bernard GIL	Rapporteur
François JULIEN	Directeur de thèse
Jean-Michel LOURTIOZ	Examineur
Eva MONROY	Membre invité
Emmanuel ROSENCHER	Examineur

Remerciements

En premier lieu, j'adresse ma plus profonde reconnaissance à mon directeur de thèse François Julien pour ses conseils ainsi que ses grandes compétences scientifiques. Merci pour ta disponibilité et ton soutien durant ces trois années et demie de thèse. Merci encore pour m'avoir encouragé à m'acharner sur des expériences presque impossibles et de m'avoir laissé une très grande liberté durant ma thèse.

Ce manuscrit est un peu le tien, merci pour le temps passé aux nombreuses relectures. Ton enthousiasme (tes blagues pas toujours drôles) contribue à la bonne humeur dans notre laboratoire, à cette super ambiance qui y règne et que de nombreux groupes à l'IEF nous envient [Private communication (2008)]. Plus qu'un directeur de thèse, tu es devenu durant ces trois années un ami.

En deuxième position, je remercie profondément Maria Tchernycheva, ma collègue, ma deuxième chef, ma pote, mon amie. Merci pour les nombreuses discussions théoriques de mécanique quantique ainsi que tes réponses. Un très grand merci pour les corrections de ce manuscrit qui ne serait pas ce qu'il est sans toi.

Je remercie Jean-Michel Lourtioz de m'avoir accueilli à l'IEF pendant ces trois ans et demi et de m'avoir fait l'honneur de participer à mon jury de thèse.

Je voudrais également exprimer ma gratitude aux professeurs Jérôme Faist (fondateur du laser à cascade quantique) et Bernard Gil (expert des nitrures d'éléments III) d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse.

Je remercie Vincent Berger d'avoir accepté le rôle de président du jury. Le spectacle effectué durant ma soutenance a contribué à sa bonne atmosphère. Je remercie également Emmanuel Rosencher pour avoir manifesté son intérêt à mon travail en acceptant de faire partie des membres de mon jury.

Cette thèse doit beaucoup à Eva Monroy qui a fabriqué (avec Fabien Guillot) un grand nombre d'échantillons durant ma thèse (environ 200). La très grande qualité de ses échantillons a permis d'obtenir les résultats que je présente dans ce manuscrit sans quoi rien n'aurait été possible. Merci à vous deux.

Je remercie Myriam Raybaut, Antoine Godard et encore Emmanuel Rosencher pour m'avoir accueilli à l'ONERA, leur laboratoire où j'ai effectué les expériences de génération de second harmonique. Le deuxième chapitre de ce manuscrit n'existerait pas sans leur aide.

Je remercie l'équipe de l'université de Vienne, c'est-à-dire, Gianmauro Pozzovivo, Sebastian Golka, and Gottfried Strasser pour avoir fabriqué les modulateurs que je présente dans mon quatrième chapitre.

Un grand merci à Juliette Mangeney grâce à qui j'ai pu effectuer les expériences de pompe-sonde et de saturation. Malgré les conditions atmosphériques particulières durant l'expérience, nous nous sommes battus pour arracher un micro signal, ce qui a pu donner naissance au sixième chapitre de ma thèse.

Je remercie Laurent Vivien, Paul Crozat et Loïc Meignien pour m'avoir aidé à faire des mesures hautes fréquences et utiliser leurs précieux appareils.

Merci à Thilo Remmele et Martin Albrecht pour avoir effectué quelques images TEM durant ma thèse.

Je remercie le projet européen Nitwave pour m'avoir permis d'effectuer cette thèse dans un cadre idéal.

Enfin, les derniers sont les premiers, je remercie toute l'équipe OptoGaN, c'est-à-dire Virginie Moreau (merci pour toutes les corrections d'orthographe de ce manuscrit), Yannick Chassagneux (les discussions pas toujours scientifiques me manqueront !), Houssaine Machhadani, Nasrin Kheirodin, Raffaele Colombelli, Michaël Bahriz, Adel Bousseksou, Adrien Michon (éternel deuxième...), Elias Warde, mais aussi les anciens : Laetitia Doyennette et Alain Lusson mais encore les transverses : Anatole Lupu et Nicole Paraire.

L'ambiance dans notre laboratoire est extraordinaire, il est évidemment impossible de rédiger quoi que ce soit au bureau, mais l'on peut s'amuser, rigoler et boire un peu tout en travaillant...



Sommaire

Remerciements.....	3
Sommaire	7
Introduction	11
Chapitre 1.....	15
Transitions intersousbandes dans les hétérostructures GaN/AlN	15
1.1) Généralités sur les matériaux nitrures d'éléments III.....	16
<i>1.1.1) L'évolution des nitrures d'éléments III</i>	<i>16</i>
<i>1.1.2) Elaboration des nitrures d'éléments III</i>	<i>17</i>
<i>1.1.4) Propriétés optiques</i>	<i>23</i>
<i>1.1.5) Les phonons dans les nitrures en phase hexagonale.....</i>	<i>27</i>
1.2) Les transitions intersousbandes.....	29
<i>1.2.1) Historique.....</i>	<i>29</i>
<i>1.2.2) Calcul des niveaux d'énergie dans un puits de potentiel dans l'approximation de la masse effective.....</i>	<i>31</i>
<i>1.2.3) Confinement dans les puits quantiques GaN/AlN.....</i>	<i>34</i>
<i>1.2.4) Courbure de bande globale.....</i>	<i>36</i>
<i>1.2.5) Transitions optiques</i>	<i>38</i>
<i>1.2.6) Règles de sélection.....</i>	<i>39</i>
1.3) Revue des transitions intersousbandes dans les hétérostructures de nitrures.....	42
1.4) Point de départ de ma thèse	48
<i>1.4.1) Etude des puits quantiques simples GaN/AlN</i>	<i>48</i>
<i>1.4.2) Etude de l'interface puits/barrière</i>	<i>49</i>
Chapitre 2.....	51
Génération résonante de second harmonique dans les puits quantiques GaN/AlN.....	51
2.1) La génération de second harmonique	52
<i>2.1.1) Cas général</i>	<i>52</i>
<i>2.1.2) Tenseur de susceptibilité d'ordre deux dans le GaN.....</i>	<i>55</i>
<i>2.1.3) Génération de second harmonique dans la maille wurtzite</i>	<i>57</i>
2.2) Revue des travaux sur l'exaltation du $\chi^{(2)}$ par les transitions ISB.....	60

2.3) Mise en évidence de la génération résonante de second harmonique dans les puits quantiques GaN/AlN	64
2.3.1) Structure de l'échantillon E945	64
2.3.2) Spectroscopie	65
2.3.3) Génération résonante de second harmonique	70
Chapitre 3.....	79
Emission intersousbande dans les puits quantiques GaN/AlN.....	79
3.1) Première tentative d'observation de l'émission intersousbande sous pompage interbande	82
3.1.1) Structure de l'échantillon E720	84
3.1.2) Spectroscopie	85
3.1.3) Pompage optique interbande.....	87
3.2) Mise en évidence d'émission sous pompage intersousbande résonant	90
3.2.1) Structure des échantillons E900 et E1000.....	91
3.2.2) Spectroscopie	92
3.2.3) Emission	95
3.2.4) Rendement de luminescence.....	98
3.2.5) Emission Raman ?	98
3.3) Faisabilité d'un laser à Fontaine quantique dans les puits couplés GaN/AlN aux longueurs d'onde des télécommunications	100
3.3.1) Principe.....	100
3.3.2) Laser à Fontaine quantique à puits couplés GaN/AlN.....	101
3.3.3) Calcul du gain stimulé.....	104
Chapitre 4.....	109
Etude du transfert tunnel entre puits couplés GaN/AlN : Application à la modulation électro-optique	109
4.1) Revue des études sur le couplage des puits quantiques GaN/AlN	111
4.2) Etude du transfert tunnel entre puits couplés GaN/AlN	113
4.2.1) Conception de la structure	113
4.2.2) Echantillon E1090.....	116
4.2.3) Caractérisations optiques.....	118
4.2.4) Etude du transfert de charges	122
4.2.5) Application à la modulation électro-optique.....	126
4.3) Modulateur tout optique	134
4.3.1) Echantillon E935.....	135
4.3.2) Spectroscopie	135
4.3.3) Modulateur tout-optique	136

Chapitre 5.....	141
Emission des boîtes quantiques GaN/AlN	141
5.1) Généralités.....	143
5.1.1) <i>Croissance des boîtes quantiques GaN/AlN.....</i>	<i>143</i>
5.1.2) <i>La forme des boîtes</i>	<i>144</i>
5.1.3) <i>Le confinement quantique dans les boîtes GaN/AlN</i>	<i>144</i>
5.1.4) <i>Etats de contrainte</i>	<i>147</i>
5.2) Echantillon et Spectroscopie optique	149
5.2.1) <i>Echantillon E1150.....</i>	<i>149</i>
5.2.2) <i>Spectroscopie UV.....</i>	<i>151</i>
5.2.3) <i>Spectroscopie Infrarouge</i>	<i>152</i>
5.2.4) <i>Spectroscopie d'absorption photoinduite résonante</i>	<i>153</i>
5.3) Emission intrabande des boîtes quantiques assistée par processus Raman résonant.....	156
5.3.3) <i>Mise en évidence de l'émission intrabande des boîtes quantiques GaN</i>	<i>156</i>
5.3.4) <i>Élargissement homogène de la transition intrabande et temps de cohérence.....</i>	<i>160</i>
5.3.5) <i>Emission Raman stimulée.....</i>	<i>162</i>
5.3.6) <i>Spectroscopie de diffusion Raman non résonante.....</i>	<i>163</i>
Chapitre 6.....	167
Relaxation intrabande dans les boîtes quantiques GaN/AlN	167
6.1) Mesure du temps de retour à l'équilibre T_1 de l'absorption $s \rightarrow p_z$.....	169
6.1.1) <i>La source.....</i>	<i>169</i>
6.1.2) <i>L'expérience pompe-sonde.....</i>	<i>169</i>
6.1.3) <i>Mesure du temps de relaxation intrabande des électrons</i>	<i>171</i>
6.1.4) <i>Temps de cohérence T_2 et durée de vie T_1.....</i>	<i>174</i>
6.2) Mesure de l'intensité de saturation intrabande	176
6.2.1) <i>Revue des mesures de saturation intersousbande</i>	<i>176</i>
6.2.2) <i>Les boîtes quantiques GaN/AlN</i>	<i>179</i>
6.2.3) <i>Expérience de saturation de l'absorption intrabande $s \rightarrow p_z$</i>	<i>179</i>
6.2.4) <i>Modèles</i>	<i>182</i>
6.2.5) <i>Limite du modèle de saturation d'un système à deux niveaux.....</i>	<i>187</i>
Conclusion et Perspectives.....	191
Annexe 1	193
Traitement semi-classique non perturbatif de m-ondes, en interaction avec n-niveaux	
.....	193

Annexe 2	201
La Diffusion Raman non résonante	201
Annexe 3	203
Modèle simple de la saturation de l'absorption intrabande.....	203
Références	207
Publications.....	235

Introduction

Depuis les années 90, les dispositifs optoélectroniques utilisant les transitions intersousbandes ont amplement démontré la puissance et la versatilité des concepts d'ingénierie quantique. L'un des composants phare est le laser à cascade quantique reposant sur l'émission radiative des électrons entre niveaux confinés de structures à puits quantiques. Ces sources couvrent aujourd'hui un domaine spectral étendu allant du moyen infrarouge ($\lambda \sim 3 \mu\text{m}$) jusqu'au THz.

Pour atteindre les longueurs d'onde plus courtes, la discontinuité de potentiel entre les matériaux puits et barrière doit être suffisamment grande. Les meilleurs candidats sont les nitrures d'éléments *III* (GaN/AlN) ainsi que les semi-conducteurs InGaAs/AlAs/AlAsSb ou encore les II-VI (CdS/ZnSe/BeTe) dont l'élaboration sous forme de couches minces a fait des progrès considérables ces dernières années.

Outre la possibilité d'accorder facilement la longueur d'onde, une motivation majeure pour les composants intersousbandes à couvrir le domaine télécom réside dans le temps de retour à l'équilibre extrêmement rapide des porteurs entre sousbandes. Ce temps est inférieur à la picoseconde grâce à la forte interaction des électrons avec les phonons optiques longitudinaux *LO*. Cela permet donc d'envisager la réalisation de dispositifs intersousbandes fonctionnant au-delà du Tbit/s.

Les atouts des semi-conducteurs nitrures pour l'optoélectronique intersousbande aux longueurs d'onde des télécommunications par fibres optiques sont multiples. Les matériaux GaN et AlN sont à bande d'énergie interdite directe. Les vallées latérales (*X* et *L*) ainsi que la deuxième bande de conduction du GaN sont à plus de 2 eV au dessus du point Γ . Néanmoins, les points durs de ces matériaux sont la masse effective relativement lourde du GaN ($m_{\text{GaN}}^* = 0,22 m_e$) nécessitant la croissance de couches ultra minces (1-1,5 nm pour atteindre $\lambda \sim 1,3-1,55 \mu\text{m}$) et la présence d'un champ électrique interne compliquant la conception des dispositifs.

Ma thèse s'est inscrite en partie dans le cadre d'un projet européen Nitwave en coordination au laboratoire. Mes travaux se sont portés sur l'exploration de différents mécanismes

intersousbandes pour la réalisation de modulateur télécoms ou de sources de lumière à puits ou à boîtes quantiques de nitrures.

Le premier chapitre introduit les grandes généralités concernant les transitions intersousbandes dans les puits quantiques GaN/AlN. Les propriétés originales des matériaux nitrures sont exposés dans un premier temps. Après un bref historique sur l'étude des transitions intersousbandes, je présente de manière succincte le calcul du confinement des porteurs dans un puits de potentiel. Une revue bibliographique des transitions intersousbandes dans les puits et boîtes quantiques GaN/AlN est enfin exposée.

Le deuxième chapitre est consacré à l'étude des non-linéarités optiques résonantes avec les transitions intersousbandes dans les puits quantiques GaN/AlN. Grâce à l'asymétrie naturelle des puits quantiques GaN/AlN, les conditions de double résonance peuvent être satisfaites. Dans cette partie, je mets en évidence l'exaltation de la génération de second harmonique en proche résonance avec les transitions intersousbandes.

Dans le troisième chapitre, je mets en évidence l'émission intersousbande sous pompage optique dans les puits quantiques GaN/AlN. Grâce au champ électrique interne présent dans les nitrures, il est possible de briser la symétrie du puits quantique et la transition e_1e_3 devient permise. Les électrons peuvent être excités du niveau e_1 vers le niveau e_3 grâce à un pompage optique. J'ai observé la relaxation radiative des électrons du niveau e_3 vers le niveau e_2 à la longueur d'onde de $\lambda \sim 2,13 \mu\text{m}$. Cette émission est difficile à observer car le rendement externe est seulement de 10 pWatt/Watt, ce qui est très faible.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude du transfert tunnel entre deux puits quantiques GaN couplés par une barrière ultra-mince (4 monocouches) en AlN sous l'application d'une tension électrique. Ce transfert tunnel a permis de fabriquer un modulateur électro-optique fonctionnant à $\lambda \sim 1,3 \mu\text{m}$. La profondeur de modulation est de 44 % avec une bande passante à -3 dB de $\sim 1,4 \text{ GHz}$, limitée par la constante RC du dispositif étudié.

Le chapitre 5 est consacré aux boîtes quantiques GaN/AlN et plus précisément à la mise en évidence de l'émission intrabande des électrons. Je montre que sous excitation optique à $1,34 \mu\text{m}$, les boîtes quantiques donnent lieu à une émission à température ambiante à la longueur d'onde record (pour une émission intrabande) de $1,48 \mu\text{m}$. L'émission est attribuée à

la transition électronique $p_z \rightarrow s$ et elle est assistée par la diffusion Raman résonante par les phonons $A_1(LO)$ des boîtes quantiques GaN/AlN. Le processus est sélectif en taille de boîte et ceci permet d'estimer la largeur de raie homogène de l'absorption intrabande d'une boîte quantique GaN. En outre, la largeur de raie de l'émission nous permet d'estimer le temps de cohérence des électrons $T_2 > 320$ fs.

Dans le dernier chapitre, je discute les mesures expérimentales que j'ai effectuées sur la relaxation intrabande des porteurs en bande de conduction dans les boîtes quantiques GaN/AlN à $\lambda=1,55$ μm . J'ai tout d'abord utilisé la technique de spectroscopie femtoseconde pour mesurer directement le temps de relaxation intrabande $p_z \rightarrow s$ des électrons dans les boîtes quantiques GaN. Ce temps ~ 163 fs s'est avéré être aussi court que dans les puits quantiques GaN/AlN. Je présente ensuite les mesures que j'ai effectuées visant à estimer l'intensité de saturation I_s de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$. Ces mesures ouvrent des perspectives intéressantes pour la réalisation d'absorbants saturables ultra-rapides à boîtes quantiques GaN/AlN.

Chapitre 1

Transitions intersousbandes dans les hétérostructures

GaN/AlN

Dans ce chapitre, je présente les grandes généralités concernant les transitions intersousbandes dans les puits quantiques GaN/AlN. Le but est d'apporter les bases essentielles et les outils nécessaires à la compréhension des chapitres suivants qui constituent le cœur de ma thèse. C'est pourquoi, en m'appuyant sur la littérature, je présente dans une première partie les caractéristiques originales propres aux matériaux nitrures. Après un bref historique, je présente dans une seconde partie, de manière très succincte, les transitions intersousbandes ainsi que leurs propriétés. Plus particulièrement, je m'intéresse aux transitions intersousbandes dans les puits quantiques GaN/AlN. Finalement, je présente une revue bibliographique des travaux effectués sur les dispositifs intersousbandes nitrures.

1.1) Généralités sur les matériaux nitrures d'éléments III

1.1.1) L'évolution des nitrures d'éléments III

Les nitrures d'éléments III ont été synthétisés pour la première fois entre la fin des années 1920 et le début des années 1930 par Tiede *et al.* [Tie28] et Johnson *et al.* [Joh32]. Cependant, ce n'est qu'en 1971 que Pankove *et al.* [Pan71a], [Pan71b], [Pan73] ont pu obtenir des monocristaux de GaN de grande surface sur substrat saphir, ce qui entre autres a permis de mesurer la valeur de la bande interdite du GaN [Din71], [Ileg72]. Une année plus tard, le premier dispositif électro-luminescent à base de GaN était né [Pan72a], [Pan72b]. Il était constitué d'une structure métal-isolant-semiconducteur. En raison de nombreuses difficultés technologiques (comme l'absence de substrat adapté en maille, la difficulté d'obtenir le dopage de type p , et un dopage résiduel n trop élevé) le développement des dispositifs à base de nitrures n'a pas progressé pendant plusieurs années.

C'est l'amélioration des techniques de croissance qui a permis de résoudre ces problèmes. Les premières couches de nitrures de bonne qualité ont été fabriquées par Yoshida *et al.* [Yos83] en 1983 par la technique d'épithaxie en phase vapeur par précurseurs organométalliques MOCVD (pour *Metal-Organic Chemical Vapor Deposition*). Le dopage p a été obtenu en 1991 [Aka91] en utilisant le magnésium activé par irradiation électronique ou recuit thermique [Ama89]. A l'heure actuelle, la MOCVD est la technique de choix pour la fabrication des dispositifs optoélectroniques commerciaux.

Les premières diodes électroluminescentes à base de GaN émettant dans le bleu et dans l'UV ont été développées en 1989 par Amano *et al.* [Ama89] et commercialisées en 1993. En 1997 les premières diodes lasers sont apparues [Nak97a], [Nak97b]. Aujourd'hui les hétérostructures de nitrures sont à la base des nombreuses applications optoélectroniques comme les émetteurs de lumière dans le bleu (Blu-Ray, HD-DVD, Play Station 3,...) et dans l'UV, l'éclairage en lumière blanche, les photodétecteurs ultraviolets aveugles à la lumière visible ("solar-blind"), les transistors radiofréquence de puissance, etc. [Gil98], [Gil02], [Dub02].

1.1.2) Elaboration des nitrures d'éléments III

Il existe plusieurs techniques pour l'élaboration des nitrures (MOCVD, HVPE pour *Hydride Vapor Phase Epitaxy*, MBE pour *Molecular Beam Epitaxy*). Je décris ici succinctement l'épitaxie par jets moléculaires qui est la technique utilisée pour élaborer les échantillons étudiés dans ce manuscrit.

Epitaxie MBE

L'épitaxie MBE consiste à faire croître un matériau dans une enceinte sous ultravide par l'interaction d'un flux d'atomes ou de molécules avec la surface de l'échantillon. Les éléments Ga, Al et In sont fournis par des cellules à effusion de type Knudsen et l'azote est apporté soit par craquage de l'ammoniac, soit par une cellule à plasma radiofréquence qui dissocie les molécules de N₂ en phase gazeuse.

Les principaux paramètres contrôlant la cinétique de croissance sont la température des cellules (qui détermine les flux) et la température du substrat (qui régit les mécanismes de diffusion en surface et d'incorporation des espèces). La température du substrat utilisée en MBE est plus faible (700-750° C) que celle utilisée en MOCVD ($\geq 900^\circ$ C) et la vitesse de croissance est également plus faible (0,1-1 $\mu\text{m}/\text{heure}$) [Amb98]. La MBE offre en outre la possibilité de couper le flux atomique de façon quasi-instantanée. C'est la technique de choix pour obtenir des interfaces abruptes et pour contrôler les épaisseurs à l'échelle de la monocouche.

Un autre atout de la MBE est la possibilité de contrôler *in situ* la croissance par diffraction d'électrons de haute énergie à incidence rasante RHEED (*Reflection High Energy Electron Diffraction*). Il est notamment possible de connaître en temps réel le nombre de monocouches déposées, la variation du paramètre de maille, les transitions 2D-3D, etc. [Jai00].

En fonction de la température du substrat et du rapport des flux des éléments III et V, trois modes de croissance de GaN sur AlN peuvent se produire [Mul01], [Ade01] :

- i) la croissance Frank Van der Merwe [Fra49] (la croissance s'effectue couche par couche résultant en structures bidimensionnelles)

- ii) la croissance Stranski-Krastanow [Stra38] (la croissance débute couche par couche, mais se transforme après une certaine épaisseur critique en croissance par îlots tridimensionnels à cause de l'énergie emmagasinée due aux contraintes)
- iii) la croissance Volmer-Weber [Vol26] (la croissance commence par la nucléation de petits amas sur la surface du substrat qui se transforment ensuite en îlots.)

En choisissant les paramètres de croissance, il est possible de passer d'un mode à l'autre et ainsi de synthétiser soit des puits quantiques, soit des boîtes quantiques GaN/AlN. Dans ce travail, nous étudions les propriétés optiques des deux systèmes.

Les substrats

Le retard dans le développement des nitrides d'éléments *III* par rapport aux autres semiconducteurs *III-V* est lié en grande partie à l'absence de substrat adéquat pour la croissance épitaxiale.

La fabrication des monocristaux massifs de GaN [Les99] ou d'AlN [Sch04], qui sont des substrats bien adaptés à la croissance de nitrides avec une densité de dislocations aussi faible que 10^2 cm^{-2} [Sch04], reste à l'heure actuelle très difficile et coûteuse.

Les substrats les plus couramment utilisés pour l'hétéroépitaxie des nitrides sont le *c*-saphir (0001) (désaccord de maille avec GaN de 14%), le carbure de silicium (désaccord de maille de 3,4%) et le silicium (111) (le désaccord de maille de -17%). Le désaccord de maille important entre ces substrats et le GaN ainsi que la différence de coefficient de dilatation thermique induit une forte densité de dislocations dans les couches épitaxiées (10^8 - 10^{10} cm^{-2}). Pour les couches contraintes en tension, cela peut entraîner la formation de fissures (cracks) lors du refroidissement de l'échantillon de la température de croissance à la température ambiante.

Les échantillons étudiés dans ce mémoire ont été synthétisés par MBE sur des pseudo-substrats d'AlN. Ces pseudo-substrats sont constitués d'une couche micrométrique d'AlN déposée sur *c*-saphir (0001) par MOCVD.

Structure cristallographique

La phase stable pour les nitrures d'éléments *III* est la structure wurtzite qui a une symétrie hexagonale appartenant au groupe d'espace C_{6v}^4 ($6mm$). Les atomes d'azote forment un réseau hexagonal compact. Les atomes de gallium (indium ou aluminium) occupent la moitié des sites tétraédriques disponibles. On obtient ainsi deux sous-réseaux hexagonaux compacts, l'un pour les atomes de Ga, l'autre pour les atomes d'azote, décalés selon l'axe c . Les paramètres utilisés pour décrire la structure sont le côté a de l'hexagone dans le plan (0001), et le paramètre c correspondant à la hauteur de la maille selon l'axe [0001]. Le paramètre c correspond à deux monocouches (MC) atomiques. Le paramètre u est la distance de liaison entre les atomes d'azote et l'élément *III* (Al, Ga, In) selon l'axe c . Sa valeur pour la structure wurtzite idéale est $(3/8) \times c$. Dans les structures réelles, sa valeur donne une indication de l'écart par rapport à la structure wurtzite idéale.

Paramètres	AlN	GaN
a (Å)	3,112	3,189
c (Å) (0001)	4,982	5,185
c/a	1,601	1,626
u (Å)	0,380	0,376

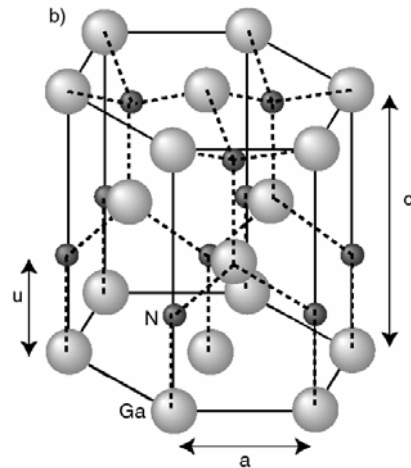


Fig. 1.1 : A gauche : paramètres de maille de l'AlN ainsi que du GaN cristallisés dans la phase wurtzite. A droite : Représentation de la maille wurtzite du GaN.

La structure wurtzite ne possède pas de centre d'inversion, en conséquence les directions [0001] et [000-1] ne sont pas équivalentes. L'axe c de la structure est donc un axe polaire impliquant deux orientations possibles de la maille (face gallium ou face azote). L'orientation face gallium ou (0001) est la plus commune et les échantillons étudiés dans ce travail ont tous cette polarité [Hel98].

1.1.3) Polarisation

L'absence de centre d'inversion dans la structure wurtzite et la forte ionicité de la liaison éléments III-azote ont des conséquences majeures sur les propriétés physiques des nitrures. Dans leur état d'équilibre, ces matériaux possèdent une polarisation spontanée qui a été calculée par Bernardini *et al.* [Ber97]. Elle provient du fait que les barycentres des charges positives (les atomes de Ga, In, Al) et des charges négatives (les atomes d'azote) ne coïncident pas dans l'espace. Ainsi, il y a création d'un dipôle dans chaque maille. Ces dipôles s'ajoutent alors à travers la structure pour donner lieu à une polarisation macroscopique orientée suivant la direction de croissance c [0001] (voir fig. 1.2). En théorie, il serait possible d'observer cette polarisation dans un cristal massif idéal. Cependant, dans la réalité, les charges de surface écrantent le champ électrique interne ce qui rend impossible l'observation directe des effets de la polarisation.

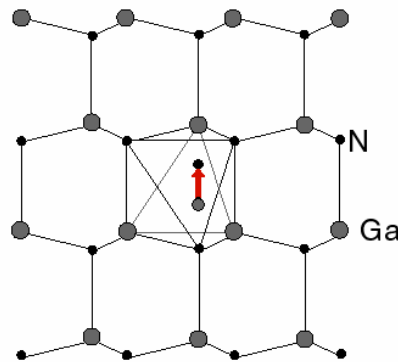


Fig. 1.2 : Projection de la structure wurtzite idéale dans le plan (11-20). La flèche rouge représente la différence entre les barycentres des charges positives et négatives.

La valeur de la polarisation spontanée est différente pour GaN et AlN. Ainsi, dans les hétérostructures composées de multi-couches de matériaux différents, il réside une discontinuité de polarisation à chaque interface. D'autre part, la croissance épitaxiale de couches de matériaux possédant des paramètres de maille différents génère une contrainte biaxiale dans le plan. Si les règles de symétrie du matériau le permettent, les contraintes peuvent engendrer une seconde polarisation dans le matériau, l'effet piézoélectrique. Dans le cas de la structure wurtzite les éléments non-nuls du tenseur de contrainte sont :

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \frac{a_s - a_e}{a_s}$$

$$\varepsilon_{zz} = -\frac{2c_{13}}{c_{33}} \times \varepsilon_{xx}$$

où a_s est le paramètre de maille dans le plan du substrat, a_e celui du matériau de la couche épitaxiée à l'équilibre et c_{13} , c_{33} les coefficients élastiques exprimés en GPa. La polarisation P induite par la contrainte est alors calculée comme $\vec{P} = \sum_j e_{ij} \varepsilon_j$, où e_{ij} est le tenseur piézoélectrique dont les coefficients s'expriment en C/m^2 .

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

Grâce aux règles de symétrie intrinsèques à la maille wurtzite, de nombreux coefficients du tenseur piézoélectrique sont nuls. Ainsi, seule la composante P_z selon l'axe c est non nulle. La valeur des coefficients élastiques et piézoélectriques est récapitulée dans le tableau suivant :

Paramètres	AlN	GaN
$P(C/m^2)$	-0,081	-0,029
c_{13} (GPa)	108	106
c_{33} (GPa)	373	398
e_{31} (C/m^2)	-0,50	-0,35
e_{33} (C/m^2)	1,79	1,27

En particulier, dans une hétérostructure (empilement de couches de matériaux différents), les polarisations spontanée et piézoélectrique s'ajoutent si le matériau contraint est en tension mais se soustraient si le matériau est en compression comme illustré sur la figure 1.3.

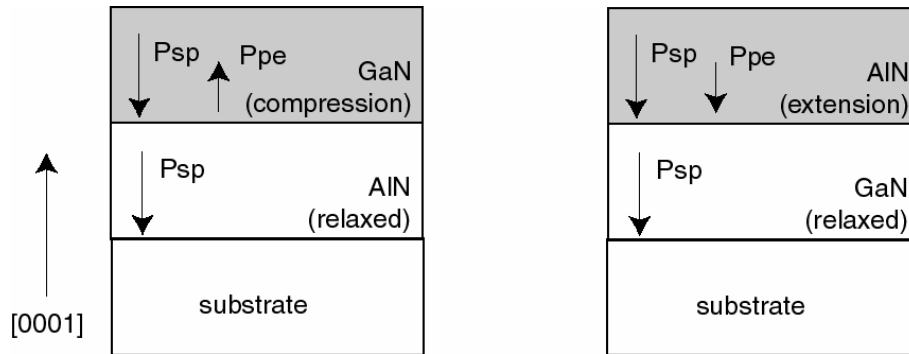


Fig. 1.3 : Direction de la polarisation spontanée et piézoélectrique dans une hétérojonction AlN/GaN pour deux états de contraintes différents.

1.1.4) Propriétés optiques

Les matériaux GaN et AlN en phase hexagonale sont des semi-conducteurs à bande d'énergie interdite directe. Le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction sont situés au point Γ de la zone de Brillouin. Les diagrammes de bande dans les nitrures ont été calculés par différents auteurs [Pug99], [Goa00], [Min92], [Rub93], [Wag02], [Chr94]. La figure 1.4 présente la structure de bandes pour le GaN et l'AlN calculée par Christensen *et al.* [Chr94] en utilisant la méthode de la densité locale (LDA pour *Local Density Approximation*).

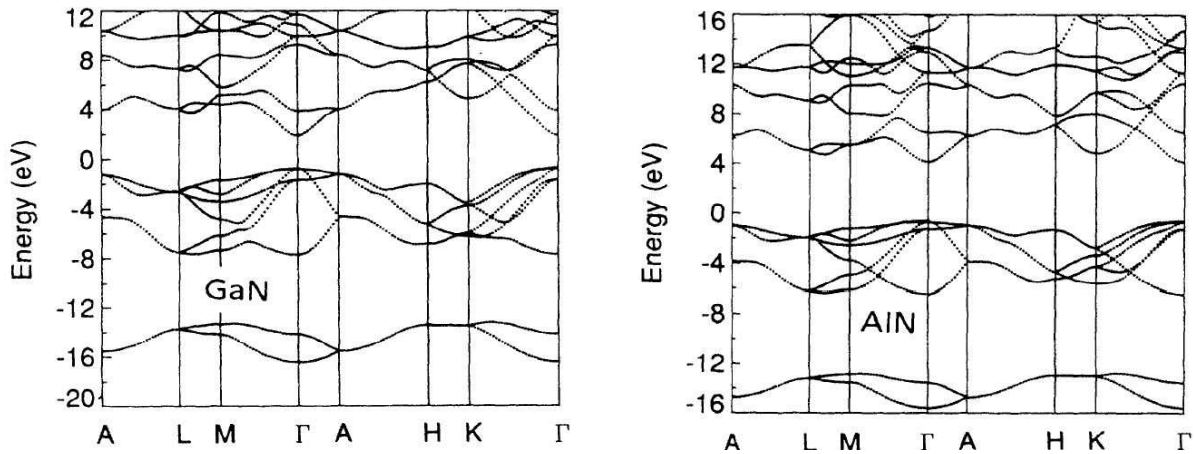


Fig. 1.4 : Structure de bandes de GaN et AlN calculée par Christensen *et al.* [Chr94].

Au voisinage du point Γ , la bande de conduction (de symétrie Γ_7) est unique, alors que la bande de valence est constituée de trois bandes A, B et C, qui sont aussi appelées par analogie avec les semi-conducteurs cubiques respectivement *hh* (trous lourds), *lh* (trous légers) et *ch* (trous spin-orbite), de symétrie Γ_9 , Γ_7 et Γ_7 respectivement. A cause de la moindre symétrie du réseau hexagonal comparée à celle du réseau cubique, mais aussi de l'interaction spin-orbite, la dégénérescence des bandes de valence est levée par le champ cristallin. La figure 1.5 représente schématiquement la structure de bandes au voisinage du point Γ . Les levées de dégénérescence dues au champ cristallin (Δ_{cr}) et au couplage spin-orbite (Δ_{SO}) sont dans GaN de ~ 10 meV et ~ 17 meV respectivement [Vur03].

Bande interdite

La valeur de la bande interdite E_g est un paramètre essentiel propre à chaque semi-conducteur. Les premières mesures de la bande interdite du GaN à basse température datent des années 1970 [Din71], [Ileg72], elles ont donné une valeur $\sim 3,5$ eV à basse température. Depuis, l'énergie de bande interdite des nitrures a été le sujet de nombreuses études [Yim73], [Dav02].

La largeur de la bande interdite de l'AlN correspond aux longueurs d'onde très courtes, dans l'UV profond (6,2 eV = 200 nm). Le tableau suivant regroupe les valeurs des bandes interdites de GaN et AlN.

Energie de bande interdite	GaN	AlN
E_g à 300 K (eV)	3,39	6,2
E_g à 2 K (eV)	3,51	6,28

Les bandes d'énergies interdites indirectes du GaN sont mal connues, mais ont des énergies beaucoup plus grandes que celle de la bande d'énergie interdite directe (minimas secondaires de la bande de conduction sont au moins 2 eV plus haut que le minimum au point Γ) [Vur01]. Cette propriété est un atout pour la réalisation de lasers unipolaires.

Pour l'alliage ternaire $Al_{1-x}Ga_xN$, l'énergie de la bande interdite varie avec la composition selon la loi quadratique [Van70] : $E_g(Al_{1-x}Ga_xN) = (1-x)E_g(AlN) + xE_g(GaN) - x(1-x)C$, où C est le paramètre d'inclinaison, plus connu sous le nom de *bowing parameter*. Il représente la non-linéarité de l'énergie de bande interdite en fonction de la composition. Pour les alliages $Al_{1-x}Ga_xN$, la valeur du *bowing* couramment acceptée est ~ 1 eV [Vur01], [Vur03].

La dépendance en température de la bande interdite est décrite par la loi de Varshni :

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{\beta + T}$$

où $E_g(0)$ est l'énergie de bande interdite à température nulle et le couple (α, β) sont des constantes déterminées expérimentalement. Les valeurs pour GaN recommandées par Vurgaftman *et al.* [Vur03] sont $E_g(0) = 3,51$ eV, $\alpha = 0,909$ meV/K et $\beta = 830$ K.

La largeur de la bande interdite dépend des contraintes appliquées au matériau. Pour le GaN, la contrainte bi-axiale compressive se traduit par une augmentation de l'énergie de bande interdite qui est en première approximation linéaire avec la contrainte appliquée [Gil96], [Sha96].

Les échantillons étudiés dans ce manuscrit sont synthétisés sur un quasi-substrat AlN/saphir. Puisque le paramètre de maille a d'AlN est plus petit que celui de GaN, les couches de GaN se trouvent en compression bi-axiale, se traduisant par l'augmentation de l'énergie de bande interdite $\sim 3,46-3,48$ eV à la température ambiante. En conséquence, la discontinuité de potentiel en bande de conduction entre GaN et AlN est réduite [Kis02], [Tch06].

Constante diélectrique et indice de réfraction

Dans les semi-conducteurs cristallisant dans la phase wurtzite, les composantes parallèle et perpendiculaire selon l'axe c du tenseur diélectrique sont différentes. Il y a une dispersion importante des valeurs des constantes diélectriques citées dans la littérature : la dispersion entre les différentes mesures peut excéder 10 %. Le tableau suivant regroupe quelques valeurs expérimentales des constantes diélectriques à haute fréquence ($\epsilon_{\infty}^{\parallel}$ et $\epsilon_{\infty}^{\perp}$) et statique ($\epsilon_{\text{stat}}^{\parallel}$ et $\epsilon_{\text{stat}}^{\perp}$) pour GaN et AlN. Remarquons que les constantes diélectriques à haute fréquence ϵ_{∞} et statique ϵ_{stat} diffèrent dans GaN de presque un facteur deux. Il est donc important de veiller à l'utilisation de la constante diélectrique appropriée.

	$n(1,55 \mu\text{m})$	$\epsilon_{\infty}^{\parallel}$	$\epsilon_{\infty}^{\perp}$	$\epsilon_{\text{stat}}^{\parallel}$	$\epsilon_{\text{stat}}^{\perp}$
GaN	2,3 – 2,335	5,61	5,18	10,4	9,5
AlN	2,03 – 2,3	4,27	4,13	8,5	8,5

L'indice de réfraction a été mesuré par de nombreuses équipes [Wag02], [Sho03], [Bar73], [Moo05], [Cip00], [Gav00]. L'alliage $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ a été mesuré dans la référence [Hui03]. Les auteurs proposent l'interpolation suivante des données expérimentales :

$$n(\lambda=1,55 \mu\text{m}) = 0,431x^2 - 0,735x + 2,335.$$

La différence entre l'indice ordinaire (direction de la vibration électrique perpendiculaire à l'axe c) et l'indice extraordinaire (direction de la vibration parallèle à l'axe c) est [Hui03b] :

$$n_{\parallel} - n_{\perp} = 0,042.$$

1.1.5) Les phonons dans les nitrures en phase hexagonale

Le groupe d'espace du GaN en phase hexagonale wurtzite est C_{6v}^4 ($6mm$). Au centre de la zone de Brillouin (point Γ), la théorie des groupes prévoit 8 modes de phonons : $2A_1$, $2E_1$, $2E_2$, et $2B_1$. Les modes A_1 et E_1 ont chacun un mode de vibration acoustique (A_1^A et E_1^A) et un mode optique (A_1^O et E_1^O). Les autres modes E_2 et B_1 sont optiques. Les modes optiques A_1^O et E_1^O sont observables en spectroscopie infrarouge et Raman mais le mode E_2 (*high* et *low*) est observable uniquement en spectroscopie Raman. B_1 (*high* et *low*) n'est pas actif [Arg69]. Les modes de phonons optiques sont découplés en deux modes, longitudinaux (*LO*) et transverses (*TO*) qui sont de type A_1 ou E_1 suivant la direction de vibration. A_1^O regroupe les phonons *LO* et *TO* polarisés parallèlement (\parallel) à l'axe c du cristal. Les phonons E_1^O sont polarisés perpendiculairement (\perp) à l'axe c . Les modes de phonon dans GaN et AlN ont été très étudiés par de nombreuses équipes [Bar73], [Sanj83], [Per92], [Per93], [Mac93], [Azu95], [Sie95], [Dav98], [Gil98], [Ruf01], [Har02], [Gil02] et un bon accord a été trouvé entre les expériences et les calculs [Sie97], [Kar97], [Kar98]. On trouve dans la littérature la dispersion de valeurs suivantes [Ioffe06] :

Mode	Energie en cm^{-1} / meV mesuré à 300K	
	GaN	AlN
E_2 (<i>low</i>)	143-146 cm^{-1} / 17,7-18,1 meV	241-252 cm^{-1} / 29,9-31,2 meV
B_1 (<i>low</i>)	337 cm^{-1} / 41,8 meV (<i>calcul</i>)	580 cm^{-1} / 71,9 meV (<i>calcul</i>)
A_1 (<i>TO</i>)	533-534 cm^{-1} / 66,1-66,2 meV	607-614 cm^{-1} / 75,3-76,1 meV
E_1 (<i>TO</i>)	556-559 cm^{-1} / 68,9-69,3 meV	657-673 cm^{-1} / 81,5-83,4 meV
E_2 (<i>high</i>)	560-579 cm^{-1} / 69,4-71,8 meV	655-660 cm^{-1} / 81,2-81,8 meV
B_1 (<i>high</i>)	720 cm^{-1} / 89,3 meV (<i>calcul</i>)	765 cm^{-1} / 94,8 meV (<i>calcul</i>)
A_1 (<i>LO</i>)	710-735 cm^{-1} / 88,0-91,1 meV	888-910 cm^{-1} / 110-113 meV
E_1 (<i>LO</i>)	741-742 cm^{-1} / 91,9-92,0 meV	895-924 cm^{-1} / 111-115 meV

La croissance épitaxiale des couches nitrures se fait généralement sur des substrats désaccordés en maille (Saphir, SiC, Si). Cela génère une compression ou une tension des couches qui peut être très importante. L'influence des états de contraintes sur l'énergie des phonons a été étudiée numériquement (calcul *ab initio*) [Wag00], [Wag02] et

expérimentalement [Dav97], [Dar05]. Il en résulte que les fréquences de résonance de chacun des modes de phonon sont fonction des états de contraintes par la relation :

$$\Delta\omega(j) = 2a(j)\varepsilon_{xx} + b(j)\varepsilon_{zz}.$$

Cette formule est valable dans le cas d'une contrainte biaxiale ($\varepsilon_{xx}=\varepsilon_{yy}$), où l'indice j représente le mode de phonon. Dans l'étude de Wager *et al.* [Wag02], on trouve pour le mode de phonon $A_1(LO)$, (le seul qui nous intéressera par la suite) les valeurs suivantes : $a=-664 \text{ cm}^{-1}$ et $b=-881 \text{ cm}^{-1}$. L'évolution en fréquence des modes de phonon en fonction de la contrainte est représentée sur la figure 1.6 issue de [Wag02].

Pour résumer, mis à part le mode $E_2(low)$, on observe un décalage de la fréquence de vibration vers les basses énergies de $\Delta\omega\sim 30 \text{ cm}^{-1}$ (3,7 meV) pour tous les autres modes lorsque s'exerce une compression biaxiale de $\sim 2 \%$ sur le GaN.

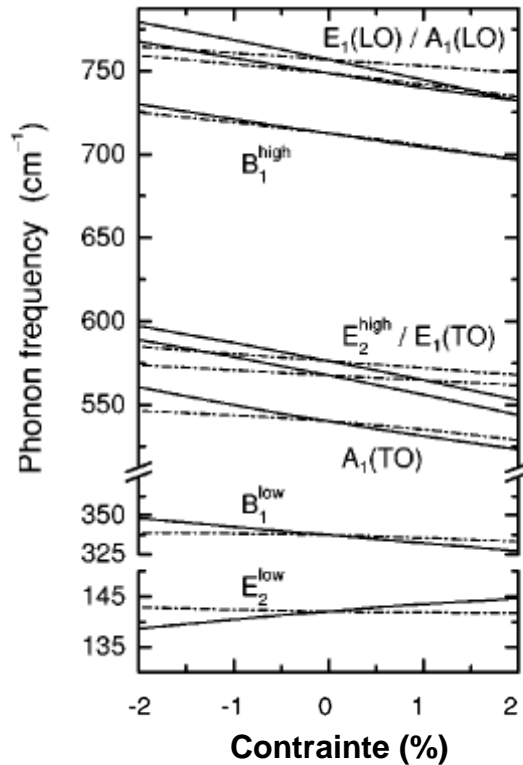


Fig. 1.6 : Evolution des fréquences de vibration des différents modes de phonon du GaN en fonction d'une contrainte bi-axiale dans le plan xy (lignes continues) et d'une contrainte verticale suivant l'axe z (lignes discontinues).

1.2) Les transitions intersousbandes

Après un historique sur l'étude et les applications des transitions intersousbandes, je présente brièvement le calcul des états d'énergie confinés dans un puits de potentiel. J'aborde ensuite la théorie du couplage de la lumière avec ces niveaux d'énergie et je présente les principales propriétés des transitions optiques entre les niveaux confinés de la même bande. Dans une seconde partie, je me focalise sur les transitions intersousbandes dans les nitrures d'éléments III. Finalement, je présente quelques résultats du travail de Maria Tchernycheva effectué dans notre laboratoire, qui a été le point de départ de ma thèse.

1.2.1) Historique

L'existence de transitions entre sous-bandes de conduction d'une hétérostructure à puits quantiques a été mise en évidence pour la première fois par Pinczuk *et al.* en 1979 [Pin79], [Pin82], [Abs86]. Cependant, cette mesure était indirecte puisqu'il s'agissait de spectroscopie par diffusion inélastique. C'est en 1985 que West et Eglash [Wes85] sont les premiers à observer directement l'absorption intersousbande dans des puits quantiques GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As à l'incidence de Brewster. Ils montrent que la longueur du dipôle de la transition est du même ordre de grandeur que l'épaisseur du puits quantique (3 nm). Deux années plus tard, Levine *et al.* mesurent une forte absorption intersousbande dans la configuration « zig-zag », profitant d'un plus grand nombre de passages de la lumière dans la couche active [Lev87a]. Des lors, les transitions intersousbandes sont étudiées tant d'un point de vue fondamental que pour leurs applications.

Du point de vue fondamental, l'énergie des transitions intersousbandes est étudiée en fonction de l'épaisseur des puits quantiques [Hir90], de la hauteur des barrières [Nak87], du dopage [Ram90] et de la température [All88], [Man90]. Le temps de retour à l'équilibre des électrons entre les sous-bandes est mesuré par photo blanchiment ou saturation [Seil87], [Juju88]. Toutes ces études ont contribué à l'optimisation des paramètres pour la réalisation de dispositifs performants par la suite.

En 1987, Levine *et al.* réalisent le premier détecteur de lumière intersousbande fonctionnant à 10,8 μm [Lev87b]. Il portera le nom de QWIP (*Quantum Well Infrared Photodetector*). Ces nouveaux détecteurs sont très convoités pour certaines applications, notamment dans les

fenêtres de transparence atmosphérique (3-5 et 8-12 μm). Un de leurs avantages par rapport aux photodétecteurs InSb ou HgCdTe est la possibilité de fabriquer des barrettes avec un grand nombre de pixels pour l'imagerie. Une innovation récente est la réalisation de QWIP photovoltaïque à cascade quantique [Gen04], [Gen05], [Koe06], [Hof02], [Hof06a], [Gra06], [Gio07].

La modulation de l'absorption intersousbande par effet Stark a été démontrée pour la première fois en 1987 par Harwit et Harris [Har87]. Ces auteurs ont obtenu un déplacement de la résonance intrabande de 1% vers les hautes énergies dans un puits quantique simple. En brisant la symétrie en utilisant un puits quantique à marche de potentiel, l'effet a été fortement renforcé [Mii90]. La modulation de l'absorption intersousbande via le transfert des électrons entre puits couplés a été démontrée par Vodjdani *et al.* en 1991 [Vod91]. Quelques mois plus tard, H. C. Liu *et al.* ont obtenu des résultats similaires [Liu91]. Au cours des années 90, ces dispositifs ont été perfectionnés [Ber92], [Dup93], [Ber96], [Dub97]. Leur principe de fonctionnement sera expliqué plus en détail dans le chapitre 4.

A la fin des années 1980, les chercheurs se focalisent sur l'amplification des non linéarités optiques via les transitions intersousbandes. Il faut cependant briser la symétrie du profil de potentiel par différents artifices pour obtenir une susceptibilité d'ordre deux non nulle [Fej89], [Ros89], [Bou90], [Sir91]. Cette thématique sera développée dans le deuxième chapitre.

Les recherches sur l'émission intersousbande se sont heurtées à de nombreuses difficultés. Si l'amplification d'une onde électromagnétique a été prédite par les soviétiques Kazarinov et Suris [Kaz71] en 1971 puis repris par plusieurs auteurs [Yuh87], [Liu88], [Bor89], [Loe91], [Kas91], [Hu91], [Kor94], la première démonstration expérimentale d'émission de photons fut obtenue par M. Helm en 1988 [Hel88]. L'inversion de population et ensuite l'effet laser ont été démontrés en 1994 par J. Faist *et al.* [Fais94]. Ces lasers à cascade quantique ont connu des développements spectaculaires comme nous le verrons dans le chapitre 3.

Les propriétés fondamentales des transitions intersousbandes continuent à être étudiées. Citons comme exemple l'observation du couplage fort des résonances intersousbandes avec les modes de cavité. Ce couplage donne naissance à une nouvelle particule, « le polariton intersousbande ». Lorsque la transition intersousbande entre en résonance avec un mode propre à la cavité, la transition se scinde en deux. C'est le *splitting de Rabi*. Il a été observé en absorption, en émission et en photocourant [Din03], [Dup03], [Ana05], [Ana06], [Ana07], [Col05], [Ciu05], [Ciu06], [Sap07], [Lib07].

1.2.2) Calcul des niveaux d'énergie dans un puits de potentiel dans l'approximation de la masse effective

Dans cette partie, j'introduis les notions fondamentales concernant le confinement quantique des électrons dans un puits de potentiel. Le but n'est pas de décrire en détail les modèles utilisés mais de donner les bases nécessaires au calcul des niveaux d'énergie.

Le formalisme des fonctions enveloppes pose le cadre théorique dans lequel les états d'hétérostructures semi-conductrices peuvent être calculés. Considérons le mouvement de l'électron dans une seule bande, la bande de conduction. La fonction d'onde $\psi(\mathbf{r})$ de l'électron s'écrit comme le produit de la fonction de Bloch au bas de la bande de conduction $u_{\Gamma}(\mathbf{r})$ par une fonction enveloppe $\varphi(\mathbf{r})$, lentement variable à l'échelle atomique :

$$\psi(\vec{r}) = \varphi(\vec{r})u_{\Gamma}(\vec{r}).$$

Il est alors possible de montrer que la fonction enveloppe vérifie l'équation de Schrödinger à une particule dans une seule bande :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2} \vec{\nabla} \left[\frac{1}{M} \right] \vec{\nabla} + V(\vec{r}) \right) \varphi(\vec{r}) = E \varphi(\vec{r})$$

où $V(\mathbf{r})$ est le potentiel de confinement du porteur. M est le tenseur de masse effective ayant pour forme :

$$\left[\frac{1}{M} \right] = \begin{pmatrix} \frac{1}{m_x^*} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{m_y^*} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{m_z^*} \end{pmatrix}.$$

La masse effective est considérée anisotrope mais constante dans chacune des trois directions de l'espace, c'est l'approximation des bandes paraboliques. Quand l'énergie des états confinés s'éloigne du bas de la bande, il faut tenir compte de l'effet de la non-parabolicité. Traiter cet effet consiste à résoudre l'équation de Schrödinger en prenant des masses effectives dépendantes de l'énergie ($m_z^* = m^*(E)$). La prise en compte de la non-parabolicité rend impossible la résolution analytique de l'équation de Schrödinger.

Cas des boîtes quantiques

Dans un modèle très simple, où le porteur est confiné suivant les trois directions de l'espace (boîte quantique parallélépipédique), avec des barrières de hauteur infinie, les fonctions enveloppes ainsi que leurs niveaux d'énergie peuvent être calculés analytiquement. C'est d'ailleurs un des cas rares où une solution analytique simple existe. Ce petit calcul très instructif a pour but de mettre en évidence l'évolution des niveaux d'énergie en fonction des différents paramètres du matériau et du potentiel de confinement.

Le potentiel de confinement tridimensionnel constitue pour chaque direction de l'espace un simple puits quantique de hauteur infinie. Dans ce cas, l'équation de Schrödinger est à variables séparables :

$$-\frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{m_x^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{1}{m_y^*} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{1}{m_z^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(x, y, z) \right) \varphi(x, y, z) = E \varphi(x, y, z)$$

avec $V(x, y, z) = 0$ pour $x \in (0, L_x)$, $y \in (0, L_y)$, $z \in (0, L_z)$ et l'infini ailleurs.

La fonction enveloppe s'annule sur les murs de potentiel définissant la boîte de longueur L_x , L_y et L_z . Indexée par les nombres quantiques n_x , n_y et n_z (entiers strictement positifs), la solution de cette dernière équation a pour forme :

$$\varphi_{n_x, n_y, n_z}(x, y, z) = \frac{2^{2/3}}{\sqrt{L_x L_y L_z}} \sin\left(n_x \frac{\pi}{L_x} x\right) \sin\left(n_y \frac{\pi}{L_y} y\right) \sin\left(n_z \frac{\pi}{L_z} z\right).$$

Il est alors trivial de montrer que l'énergie des niveaux de la boîte parallélépipédique s'écrit sous la forme simple :

$$e_{n_x, n_y, n_z} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2} \left(\frac{n_x^2}{m_x^* L_x^2} + \frac{n_y^2}{m_y^* L_y^2} + \frac{n_z^2}{m_z^* L_z^2} \right).$$

D'après cette dernière formule, on voit très clairement que pour le confinement dans une direction de l'espace, l'écart énergétique Δe_{nm} entre deux niveaux quantiques n et m est d'autant plus grand (quadratiquement) que l'épaisseur du puits de confinement est petite. De plus, on constate que l'utilisation de semi-conducteur à petite masse effective exalte les effets

de confinement. Enfin, les niveaux d'énergie évoluent quadratiquement avec leurs nombres quantiques n_x , n_y et n_z .

En pratique, ce modèle simple est insuffisant pour décrire correctement les systèmes réels. Des traitements beaucoup plus sophistiqués doivent être mis en œuvre. Cependant, les tendances listées plus haut restent valables.

Cas des puits quantiques

Dans un puits quantique, le confinement des porteurs se fait uniquement suivant la direction de croissance z . Dans les directions du plan (x,y) ou $\mathbf{r}_{//}$, l'électron est libre. Dans ce cas, les fonctions enveloppe $\varphi(x,y,z)$ sont séparées en produit d'ondes planes $e^{i\mathbf{k}_{//}\cdot\mathbf{r}_{//}}$ et d'une fonction de z , $\chi(z)$.

$$\varphi_{n_z}(x,y,z) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\vec{k}_{//}\cdot\vec{r}_{//}} \times \chi_{n_z}(z) \quad \text{et} \quad \chi_{n_z}(z) = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \sin\left(n_z \frac{\pi}{L_z} z\right)$$

avec :

$$e = \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_{//}^*} + e_{n_z} \quad \text{et} \quad e_{n_z} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2} \left(\frac{n_z^2}{m_z^* L_z^2} \right).$$

Ces solutions sont présentées graphiquement sur la figure 1.7.

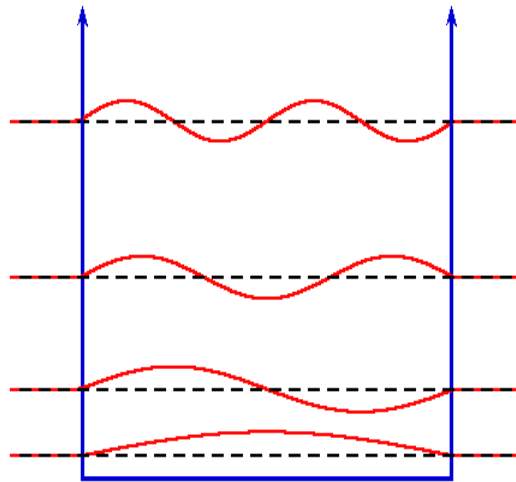


Fig. 1.7 : Illustration d'un puits de potentiel unidimensionnel infini avec les niveaux d'énergie ainsi que les fonctions enveloppes.

1.2.3) Confinement dans les puits quantiques GaN/AlN

Dans ce paragraphe, je discute les effets du champ électrique interne sur les énergies et les fonctions enveloppes des états en bande de conduction dans les hétérostructures de GaN/AlN. Il est facile de montrer que dans le cas d'un puits quantique isolé GaN avec des barrières d'épaisseur infinie d'AlN, le champ à l'intérieur du puits F_p est égal à :

$$F_p = \frac{P_b - P_p}{\varepsilon_p \varepsilon_0}$$

où P_p (P_b) est la polarisation totale, spontanée et piézoélectrique, dans le puits GaN (barrière AlN), ε_p est la constante diélectrique du GaN et ε_0 la permittivité du vide. En utilisant la valeur de discontinuité de polarisation calculée dans la section 1.1.3), on obtient la valeur du champ électrique interne de l'ordre de 10 MV/cm.

Dans une hétérostructure périodique, si l'on peut supposer une chute de potentiel nulle aux bornes de chaque période, on a alors la relation suivante :

$$-e(L_b F_b + L_p F_p) = 0$$

où L_p (L_b) est l'épaisseur du puits (de la barrière) et F_p (F_b) est le champ dans le GaN (AlN). D'autre part, la continuité de la composante normale du vecteur de déplacement à travers l'interface puits/barrière impose que :

$$\varepsilon_0 \varepsilon_p F_p + P_p = \varepsilon_0 \varepsilon_b F_b + P_b$$

Avec ces deux conditions, le champ dans les puits et les barrières est donné par :

$$F_p = \frac{P_b - P_p}{\varepsilon_0} \left(\frac{L_b}{\varepsilon_p L_b + \varepsilon_b L_p} \right)$$

$$F_b = -\frac{P_b - P_p}{\varepsilon_0} \left(\frac{L_p}{\varepsilon_p L_b + \varepsilon_b L_p} \right).$$

Le champ dans le puits et dans la barrière dépend ainsi de la discontinuité de polarisation à l'interface et des épaisseurs relatives du puits et de la barrière.

Il faut résoudre l'équation de Schrödinger en présence d'un champ électrique superposé au potentiel de confinement :

$$-\frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{m_z^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z) + eFz \right) \chi(z) = E\chi(z).$$

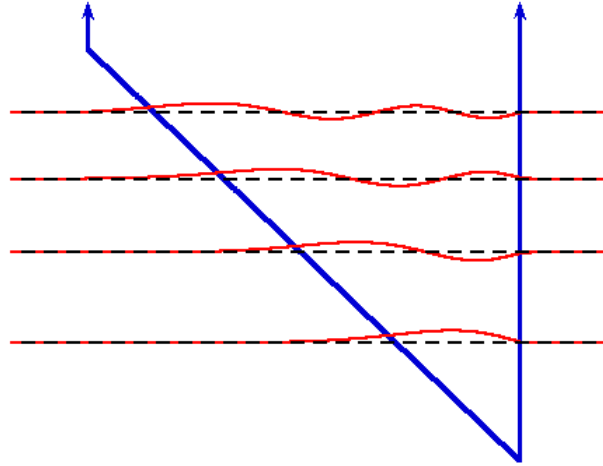


Fig. 1.8 : Illustration d'un puits de potentiel unidimensionnel infini sous champ électrique avec les niveaux d'énergie ainsi que les fonctions enveloppes.

Analytiquement, il existe des solutions qui sont les fonctions d'Airy. Néanmoins, ces solutions sont rarement utilisées car elles font l'hypothèse d'un potentiel parfaitement triangulaire, ce qui est rarement une bonne approximation. Il faut donc résoudre cette équation numériquement. Une méthode couramment utilisée est la résolution par les matrices de transfert. Cela consiste à discrétiser le potentiel $V(z)$ de l'hétérostructure en marches d'escalier (le potentiel $V(z)$ est considéré comme constant dans chaque segment) et construire la solution tenant compte de la continuité de χ et χ'/m^* à chaque interface. Le profil de potentiel ainsi que les solutions calculées par la méthode des matrices de transfert sont présentés sur la figure 1.8.

Dans le cas où les puits quantiques sont dopés n , il faut tenir compte de l'interaction que subissent les électrons entre eux et avec les donneurs ionisés. Il est alors nécessaire d'introduire un terme supplémentaire dans l'équation de Schrödinger. Ce terme peut être approximé par un potentiel électrostatique moyen régissant les interactions coulombiennes des porteurs sur un électron. Il s'agit dans ce cas de l'*approximation d'Hartree*. Ce potentiel électrostatique moyen est une solution de l'équation de Poisson. Dans notre laboratoire, Maria Tchernycheva a développé dans le cadre de sa thèse [Tch05], un programme permettant de résoudre les équations de Schrödinger-Poisson, et donc de calculer de manière fiable les niveaux quantiques dans les hétérostructures GaN/AlN.

1.2.4) Courbure de bande globale

Dans les calculs précédents, j'ai supposé des conditions périodiques (c'est-à-dire que la chute de potentiel est nulle aux bords d'une période) mais ceci n'est pas toujours vérifié dans les structures à multi-puits quantiques GaN/AlN.

En effet, la discontinuité de polarisation entre GaN et AlN résulte en l'apparition de charges fixes aux hétérointerfaces qui sont à l'origine du champ interne et qui peuvent également induire une courbure globale du potentiel dans l'échantillon. L'effet de la courbure de bande est illustré dans la fig. 1.9a). Cette figure montre le profil de potentiel en bande de conduction calculé pour 15 périodes de multi-puits quantiques GaN(1 nm)/AlN(3 nm) entre deux couches contacts en GaN.

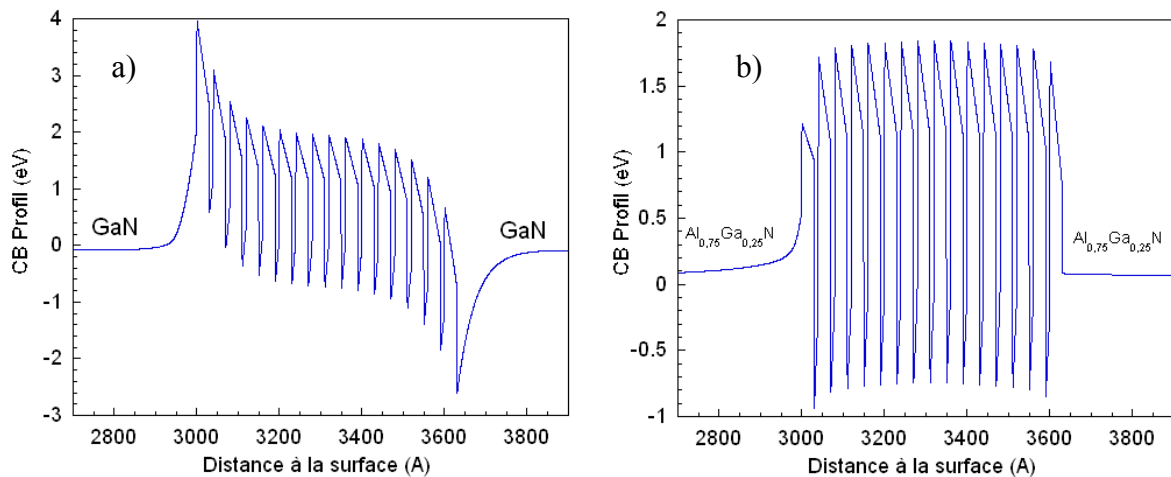


Fig. 1.9 : Profil de potentiel en bande de conduction calculé pour les multi-puits quantiques GaN/AlN entre deux couches de contact en GaN (a) et en $Al_{0.75}Ga_{0.25}N$ (b).

On observe l'effet majeur de la composition des couches de contact sur le profil de potentiel. Dans le cas de contacts GaN, le potentiel est fortement perturbé à proximité des contacts. On observe :

- i) la formation d'un puits de potentiel triangulaire entre le contact du bas et la région active (gaz d'électrons 2D)
- ii) la courbure de potentiel dans la région contenant les puits quantiques
- iii) l'apparition d'une zone dépeuplée dans le contact du haut résultant en une barrière de potentiel de ~ 2 eV.

La courbure de bande pourrait être évitée en choisissant des couches de contact adaptées. Considérons N puits quantiques GaN d'épaisseur L_p avec des barrières d'AlN d'épaisseur L_b entre deux couches de contact en $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Pour trouver les conditions qui correspondent à une courbure de bande nulle dans une telle structure, on approxime chaque hétérointerface par un plan de charge σ qui est positif pour l'interface GaN/AlN et négatif pour l'interface AlN/GaN (l'ordre est défini par rapport à l'axe de croissance). La charge entre la couche de contact $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ et l'AlN est alors donnée par $\sigma' = (1-x)\sigma$. En imposant la condition de chute de potentiel nulle aux bords de la région active, on trouve l'expression suivante pour σ' :

$$\sigma' = \frac{NL_p}{(N+1)L_b + NL_p} \sigma.$$

On obtient pour la concentration d'Al x requise :

$$x = \frac{(N+1)L_b}{(N+1)L_b + NL_p}.$$

Dans le cas de l'hétérostructure de la figure 1.9a), cette concentration est $x=75\%$. La fig. 1.9b) montre le profil de potentiel calculé pour la même région active, avec des couches de contact en $\text{Al}_{0,75}\text{Ga}_{0,25}\text{N}$. On voit que les effets *i)* et *iii)* décrits plus haut y sont quasiment absents. Dans ce cas, les conditions périodiques peuvent être appliquées pour calculer le confinement quantique.

1.2.5) Transitions optiques

Dans cette partie, je décris brièvement l'interaction électron-photon puis les règles de sélections des transitions intersousbandes.

Considérons l'interaction entre une onde électromagnétique et un électron. L'onde est une onde plane s'écrivant $\vec{F}(\vec{r}, t) = F\vec{\varepsilon} \exp[i(\vec{q}\vec{r} - \omega t)]$ où $\vec{\varepsilon}$ est le vecteur de polarisation. On a également $\vec{F} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t}$ où \vec{A} est le potentiel vecteur. Ainsi, l'Hamiltonien s'écrit :

$$H = \frac{(\vec{p} + e\vec{A})^2}{2m_z^*}$$

en développant on trouve : $H = \frac{p^2}{2m_z^*} + \frac{e}{2m_z^*}(\vec{p}\vec{A} + \vec{A}\vec{p}) + \frac{e^2 A^2}{2m_z^*}$.

Si l'on utilise la jauge de Coulomb, $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$, les opérateurs \vec{p} et \vec{A} commutent, $[\vec{p}, \vec{A}] = 0$.

Dans l'approximation d'un champ faible, le terme du deuxième ordre en \vec{A} est négligeable. Il reste alors :

$$H = H_0 + W(\vec{r}, t) \quad \text{avec} \quad W(\vec{r}, t) = \frac{e}{m_z^*} \vec{A}(\vec{r}, t) \cdot \vec{p}$$

$W(\vec{r}, t)$ représente le couplage entre l'électron et le champ électromagnétique. Ce dernier est une perturbation dépendant du temps pouvant induire des transitions d'un niveau initial $|i\rangle$ d'énergie E_i vers un niveau final $|f\rangle$ d'énergie E_f avec une probabilité par unité de temps donnée par la règle d'or de Fermi :

$$P_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f|V|i\rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega)$$

$$\text{où} \quad V = \frac{ieF}{2m_z^*\omega} \vec{\varepsilon} \cdot \vec{p}$$

Pour obtenir la puissance absorbée par unité de temps, il faut sommer les probabilités d'absorption sur tous les états initiaux et finaux disponibles :

$$P(\omega) = \hbar\omega \sum_{i,f} P_{if} (f(E_i) - f(E_f))$$

où la fonction $f(E_i)$ est la distribution de Fermi-Dirac donnant la probabilité que l'état i d'énergie E_i soit occupé.

Le coefficient d'absorption est défini comme la perte d'énergie de l'onde électromagnétique par unité de volume et par unité de temps divisée par l'intensité incidente :

$$\alpha_{if}(\omega) = \frac{2\pi\omega}{\Omega n c \varepsilon_0} \frac{F^2}{2} \sum_{i,f} 2 \left| \langle f | V | i \rangle \right|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) (f(E_i) - f(E_f))$$

où Ω est le volume actif et n est l'indice de réfraction du milieu. Le facteur 2 dans la somme correspond à la dégénérescence du spin. Pour une absorption entre deux sousbandes dans un puits quantique, la somme dans cette dernière formule se traduit par la différence des populations électroniques des sousbandes en question :

$$\sum_{i,f} 2 (f(E_i) - f(E_f)) = S(n_i^s - n_f^s)$$

où n^s est la densité surfacique des porteurs et S est la surface du cristal considérée.

On peut montrer que :

$$\langle f | \vec{\varepsilon} \cdot \vec{p} | i \rangle = \frac{m_0(E_i - E_f)}{ie\hbar} \langle f | \vec{\varepsilon} \cdot e\vec{r} | i \rangle = \frac{m_0(E_i - E_f)}{ie\hbar} \vec{\varepsilon} \cdot \vec{\mu}_{if} \quad (1)$$

où le moment dipolaire électrique est défini comme $\vec{\mu}_{if} = \langle f | e\vec{r} | i \rangle$.

1.2.6) Règles de sélection

En utilisant la forme des fonctions enveloppes dans un puits quantique (section 1.2.2), l'élément de matrice, intervenant dans (1), se calcule comme

$$\langle \psi_f | \vec{\varepsilon} \cdot e\vec{r} | \psi_i \rangle \cong \langle u_f(\vec{r}) | \vec{\varepsilon} \cdot e\vec{r} | u_i(\vec{r}) \rangle \langle \phi_f(\vec{r}) | \phi_i(\vec{r}) \rangle + \langle u_f(\vec{r}) | u_i(\vec{r}) \rangle \langle \phi_f(\vec{r}) | \vec{\varepsilon} \cdot e\vec{r} | \phi_i(\vec{r}) \rangle. \quad (2)$$

Le premier terme de l'expression (2) est non nul uniquement pour les états issus de bandes différentes ayant les fonctions $u_i(\vec{r})$ et $u_f(\vec{r})$ de parité opposée ; il donne lieu aux transitions interbandes. Les fonctions $u_n(\vec{r})$ étant orthogonales, le deuxième terme ne couple que les états

issus de la même bande ; il décrit les transitions intersousbandes. La forme particulière de la fonction enveloppe dans le puits quantique :

$$\varphi_{n_z}(\vec{r}_{//}, z) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\vec{k}_{//}\vec{r}_{//}} \times \chi_{n_z}(z)$$

impose des transitions intersousbandes uniquement entre états ayant même vecteur d'onde $\vec{k}_{//}^i = \vec{k}_{//}^f$ et pour une polarisation de l'onde électromagnétique ayant une composante parallèle à l'axe z . Cette propriété fondamentale des absorptions intersousbandes permet de les distinguer facilement de toutes les autres absorptions possibles.

L'expression du coefficient d'absorption entre les sousbandes i et f est la suivante :

$$\alpha(\omega) = \frac{\pi(E_i - E_f)^2 (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{\mu}_{if})^2}{\Omega \omega \hbar^2 n c \varepsilon_0} S(n_i^S - n_f^S) \delta(E_f - E_i - \hbar\omega). \quad (3)$$

Dans les puits quantiques réels, la fonction $\delta(E)$ de Dirac doit être remplacée par une fonction d'élargissement spectral $g(E)$ qui reflète la largeur finie de la raie d'absorption. Cette fonction est introduite de manière phénoménologique. Dans les cas particuliers d'élargissement purement homogène ou purement inhomogène, $g(E)$ correspond à une fonction de type Lorentzien ou Gaussien respectivement.

Pour un angle θ entre la direction de propagation de l'onde dans le matériau et la normale aux couches, nous avons $(\vec{\varepsilon} \cdot \vec{\mu}_{if}) = \mu_{if} \sin(\theta)$ et $S/\Omega = 1/L \cos(\theta)$, où L est l'épaisseur de la région active et $\mu_{if} = \langle f | e z | i \rangle$. Le coefficient d'absorption (3) est alors égal à :

$$\alpha(\omega)L = (n_i^S - n_f^S) \sigma(\omega)$$

où nous avons introduit la section efficace de l'absorption,

$$\sigma(\omega) = \frac{\pi(E_i - E_f)^2 \mu_{if}^2 \sin^2(\theta)}{\omega \hbar^2 n c \varepsilon_0 \cos(\theta)} g(E_f - E_i - \hbar\omega).$$

Une dernière quantité pouvant être utile est la force d'oscillateur de la transition :

$$f_{if} = \frac{2m_0(E_f - E_i)}{e^2 \hbar^2} (\vec{\mu}_{if})^2$$

avec $|\mu_{12}| = e \times |z_{12}| = \frac{2^4}{3^2} \frac{L}{\pi^2}$ pour le cas d'un puits quantiques simples dont les barrières sont infiniment hautes. Ces quantités déterminent l'efficacité du couplage entre les deux sousbandes.

1.3) Revue des transitions intersousbandes dans les hétérostructures de nitrides

Une des propriétés remarquables des dispositifs intersousbandes est que la longueur d'onde de fonctionnement peut être accordée sur plus de deux décades en changeant l'épaisseur des couches. Une autre propriété intéressante est que le temps de retour à l'équilibre de l'absorption intersousbande est sub-picoseconde grâce à l'interaction avec les phonons optiques, permettant d'envisager des composants, par exemple, du type commutateur tout optique fonctionnant dans le régime Tbit/s.

La longueur d'onde minimale des transitions intersousbandes est déterminée par la discontinuité de potentiel entre les semiconducteurs constituant l'hétérostructure. Dans les dispositifs à base d'InGaAs/AlInAs sur InP ou de GaAs/AlGaAs, elle est limitée respectivement à $\lambda=3,5 \mu\text{m}$ et $\lambda=8 \mu\text{m}$ [Fai98a], [Sir98]. Pour atteindre les longueurs d'onde plus courtes, de nouveaux matériaux doivent être employés présentant une discontinuité de potentiel plus grande. Ainsi l'observation des transitions intersousbandes aux longueurs d'onde des télécommunications par fibre optique (1,3-1,55 μm) a été possible dans les semiconducteurs InGaAs/AlAs(Sb) [Neo99], [Hira94], ZnSe/BeTe [Aki01], [Aki02], CdS/ZnSe/BeTe [Li06], [Con07], GaInAsN/AlAs [Ma07] et GaN/Al(Ga)N [Suz99], [Gma00], [Kis02], [Hel03]. Parmi tous ces systèmes, les nitrides possèdent la réponse optique la plus rapide, car l'interaction électron-phonon est très efficace dans ces matériaux fortement polaires [Suz97], [Suz98]. Les matériaux *II-VI* sont davantage polaires que les *III-V* mais la présence de la vallée latérale *X* dans BeTe à basse énergie augmente considérablement le temps de relaxation des porteurs vers l'état fondamental [Aki02b]. Le temps de relaxation intersousbande dans les nitrides est aussi court que 160-310 fs [Iiz00], [Heb02], [Ham04], [Ham05], [Wan05], [Wan06], ce qui est 10 fois plus rapide que dans les puits quantiques d'InGaAs [Iiz00], [Hira94]. Les deux semiconducteurs GaN et AlN ont des bandes d'énergies interdites directes et forment une hétérostructure de type *I*. De plus, les vallées latérales *X* et *L* sont situées à plus de 2 eV au dessus du point Γ dans le GaN, tout comme la deuxième bande de conduction.

Suzuki *et al.* ont montré à Toshiba en 1997 par le calcul la possibilité d'accorder les transitions intersousbandes dans les puits quantiques GaN/Al(Ga)N à 1,55 μm [Suz97]. Ce

travail théorique prévoit des transitions e_{12} à 1,55 μm pour des barrières en AlGaIn avec 70-80 % d'aluminium et des puits de GaN de 5 à 6 monocouches (1,3-1,56 nm). Les premières expériences ont porté sur des puits quantiques multiples GaN/Al_{0,65}Ga_{0,35}N synthétisés par MOCVD. Elles ont permis d'observer les transitions intersousbandes aux longueurs d'onde de 3 μm et 4 μm [Suz99]. Durant les années 2000, des longueurs d'onde plus courtes (1,41-4,15 μm) ont été rapportées par l'équipe de C. Gmachl *et al.* à Bell Laboratories dans les puits GaN/Al_xGa_{1-x}N avec $x=0,65-0,85$ fabriqués par MBE [Gma00], [Gma01], [Gma01b]. Les premiers puits quantiques de GaN avec des barrières en AlN pur ont été réalisés par Iizuka *et al.* [Iiz02] en 2002 en croissance MBE et montrent des absorptions intersousbandes à 1,3-2,2 μm . Les expériences de saturation d'absorption ont permis de déduire un temps de relaxation intersousbande de $T_1 \sim 400$ fs sous excitation à $\lambda \sim 1,48$ μm . Un temps de relaxation encore plus court (~ 140 fs) a été observé dans les puits quantiques GaN/AlN à $\lambda = 1,55$ μm [Ham04]. La longueur d'onde la plus courte ($\lambda = 1,08$ μm) a été rapportée par Kishino *et al.* [Kis02] pour un puits de 3 monocouches de GaN avec des barrières d'AlN. L'élargissement de l'absorption intersousbande, mesuré par Kishino *et al.* [Kis02], est remarquablement faible (61 meV), ce qui correspondait à l'état de l'art pour les puits quantiques de nitrures à cette époque (2002). Dans notre laboratoire, les premières expériences ont porté sur l'évolution des transitions intersousbandes en fonction du dopage [Hel03]. Il s'est avéré que les absorptions intersousbandes se décalent vers les grandes énergies (courtes longueurs d'onde) quand les puits quantiques sont fortement dopés. L'étude systématique de puits quantiques GaN/AlN a permis de remonter aux paramètres fondamentaux comme la discontinuité de potentiel de conduction (1,75 eV) et la polarisation (10 MV/cm) entre GaN/AlN [Tch06a]. Le couplage fort entre puits quantiques GaN séparés par une barrière d'AlN aussi fine que 2 monocouches atomiques a aussi été mis en évidence au laboratoire [Tch06b]. Récemment, nous avons mesuré une largeur de raie (FWHM) de l'absorption intersousbande remarquablement faible (40 meV) à $\lambda=1,43$ μm dans un échantillon très faiblement dopé ($\Delta E/E \sim 4,6$ %) [Nev06c]. L'émission intersousbande de puits quantiques GaN/AlN a également été observée au laboratoire [Nev06b], [Nev07a]. Ces résultats seront détaillés au chapitre 3. Il s'agit d'un premier pas vers la réalisation d'un laser à fontaine quantique nitrure.

L'épitaxie MOCVD est délicate pour les hétérostructures de faible épaisseur car la vitesse de croissance est rapide et le contrôle de l'épaisseur des couches à la monocouche près est difficile. Il est également difficile d'obtenir des interfaces abruptes. Néanmoins, l'équipe de

N. Grandjean à l'EPFL (*École Polytechnique Fédérale de Lausanne*) a réussi à épitaxier par MOCVD des hétérostructures GaN/AlN de faible épaisseur et nous avons mesuré au laboratoire des absorptions intersousbandes proches des longueurs d'onde des télécommunications ($\lambda \sim 1,6 \mu\text{m}$) [Nic06], [Nic07a]. Il s'est avéré que la température de croissance élevée favorise l'interdiffusion Ga/Al à l'interface GaN/AlN, l'effet étant renforcé suivant le signe de la contrainte, *i. e.* plus fort pour une épitaxie sur pseudo-substrat GaN que AlN [Nic07a]. Notons que la MBE avec source ammoniac souffre aussi de l'interdiffusion aux interfaces mais l'utilisation de pseudo substrat AlN/saphir permet de réduire les effets d'échange Ga/Al [Nic07b] et donc d'accorder les transitions intersousbandes dans la gamme télécom [Nic07b].

Afin de réduire le désaccord de maille important (2,4 %) entre le GaN et l'AlN, le développement des alliages ternaires est apparu. En particulier, l'AlInN accordé en maille sur GaN diminue fortement l'accumulation des contraintes le long de la structure. Ce matériau alternatif permet de diminuer le nombre de dislocations et de cracks. Nous avons observé au laboratoire des transitions intersousbandes à $\lambda \sim 3 \mu\text{m}$ dans des puits quantiques GaN/AlInN épitaxiés par MOCVD [Nic05]. Ce nouveau matériau offre la perspective de fabriquer des composants intersousbandes nitrures de grande qualité structurale dans la gamme 3-5 μm , ce qui est intéressant pour les applications à la détection d'agents biochimiques.

Une autre alternative pour limiter les contraintes entre GaN et AlN consiste à fabriquer des hétérostructures GaInN/AlInN à contrainte compensée. Cette solution a l'avantage de garder une discontinuité de potentiel entre puits et barrières suffisante pour obtenir des transitions intersousbandes aux longueurs d'onde des télécommunications par fibre optique. C'est à Unipress et TopGaN en Pologne que les premières structures GaInN/AlInN ont été fabriquées en épitaxie par jets moléculaires assistée par plasma d'azote. Nous avons mesuré au laboratoire dans ces échantillons, des transitions intersousbandes à $\lambda \sim 1,52 \mu\text{m}$ [Cyw06], [Cyw06b], [Ski06], [Mot06], [Kud08].

Le premier dispositif unipolaire en nitrures est une diode tunnel résonante composée de deux barrières d'AlN de 4 monocouches et d'un puits de GaN de 3 monocouches, fabriquée par l'équipe de Kishino au Japon [Kik02]. Néanmoins, leur observation d'une résistance différentielle négative est sujette à caution comme le montrent les commentaires sur cet article [Bel03], [Kik03]. Plus récemment, Golka *et al.* [Golk07] ont fabriqué une diode tunnel

résonante sur substrat GaN massif, bénéficiant ainsi d'une densité de dislocations *a priori* très faible ($10^2/\text{cm}^2$). Néanmoins, la résistance différentielle négative observée par ces auteurs s'est avérée également non reproductible.

L'une des applications séduisantes des transitions intersousbandes dans les nitrures est l'absorbant saturable. Ce composant ne demande pas une ingénierie des couches très complexe et bénéficie d'un temps de retour à l'équilibre de l'absorption via la relaxation intersousbande extrêmement rapide dans les nitrures ($\sim 150\text{-}300$ fs). Cela permet d'envisager la fabrication de commutateurs tout-optique multi-Tbits/s. Cet axe de recherche a été fortement développé par Iizuka *et al.* au Japon [Iiz04], [Iiz05], [Iiz06a], [Iiz06b], [Shim07]. Ces auteurs ont montré une extinction de 11,5 dB pour une énergie par impulsion pompe de 100 pJ [Shim07]. Récemment, l'équipe de Roberto Paiella à l'Université de Boston a montré qu'en optimisant le guide d'onde, c'est-à-dire, en augmentant le recouvrement modal du champ électromagnétique avec les puits quantiques, l'énergie de saturation peut être diminuée à 38 pJ pour une profondeur de modulation de 10 dB [Li.Y07a], [Li.Y07b]. Pour diminuer encore l'énergie de saturation, ces auteurs travaillent sur l'insertion de puits quantiques couplés dans la région active [Sun05], [Li.Y06], [Dri07].

Les premiers photodétecteurs infrarouges (QWIPs) photoconducteurs à base de matériaux nitrures ont été réalisés par l'équipe de D. Hofstetter à l'Université de Neuchâtel. Le pic de photocourant a été mesuré à basse température (10 K) vers $1,76\ \mu\text{m}$ [Hof03]. Le photocourant est observé jusqu'à 170 K. La réponse de ce photodétecteur est estimée à $100\ \mu\text{A/W}$ et la détectivité $D^* \sim 2 \times 10^9\ \text{cm}\sqrt{\text{Hz}}/\text{W}$. Néanmoins, ces photodétecteurs souffrent d'un courant d'obscurité gigantesque lié probablement à la présence de fuites de courant par les dislocations traversantes en grande densité.

Pour pallier à ces difficultés, des détecteurs fonctionnant en mode photovoltaïque ont été réalisés à partir de structures à multi-puits quantiques GaN/AlN épitaxiées par MBE ou par MOCVD par l'équipe de D. Hofstetter [Bau06b], [Hof06b]. Le photovoltage est induit par la différence de potentiel créée entre un contact ohmique et un contact Schottky déposés à la surface de l'échantillon, ce dernier étant irradié par une lumière infrarouge. On a tout d'abord pensé que le photovoltage était dû au transfert des électrons d'un puits à l'autre, celui-ci induisant un dipôle et donc une différence de potentiel entre le contact métallique irradié et celui non irradié. Le photovoltage a été observé jusqu'à température ambiante et des mesures

à haute fréquence ont été réalisées [Gio07a]. Hofstetter *et al.* ont montré depuis que le photovoltage généré dans ces dispositifs n'est pas lié au transfert des électrons entre puits quantiques mais a pour origine un processus non linéaire du second ordre, la rectification optique [Hof07].

Récemment, Vardi *et al.* ont réalisé le premier photodétecteur à cascade quantique GaN/AlN [Var08]. Ils ont observé un pic de photocourant à $\lambda=1.7 \mu\text{m}$ à température ambiante avec une réponse de 1 kVolt/Watt. L'originalité des détecteurs à cascade quantique dans les nitrures est que l'on peut exploiter le champ électrique interne pour réaliser la cascade de niveaux séparés par un phonon optique *LO*. De manière générale, ces détecteurs bénéficient d'un courant d'obscurité beaucoup plus faible que les QWIP, ce qui est particulièrement important pour la réalisation de rétines CCD. Ils sont aussi potentiellement ultra-rapides.

S'il semble difficile pour les QWIP nitrures de rivaliser avec les détecteurs InGaAs actuels, il en est tout autrement concernant les modulateurs électro-optiques. Intrinsèquement, le temps de réponse est extrêmement court, de l'ordre de la picoseconde. La vitesse de modulation ne dépend que de la constante *RC* du dispositif. Avec une ingénierie des contacts électriques, les modulateurs électro-optiques nitrures pourraient devenir très performants. Des fréquences de coupure dépassant les 60 GHz ont été prédites par P. Holmström [Hol06].

C'est l'équipe de D. Hofstetter qui a mis en évidence le premier modulateur électro-optique basé sur le transfert des électrons entre un super-réseau (SR) et le gaz d'électrons bidimensionnel formé à l'interface entre le SR et la couche épaisse inférieure de GaN [Bau06a].

Au laboratoire, nous avons développé le premier modulateur électro-optique à transfert de charges entre deux puits quantiques couplés (chapitre 4) [Nev07b]. La bande passante (-3 dB) de modulation optique limitée par la constante *RC* atteint déjà 1,4 GHz pour des mesas de $15 \times 15 \mu\text{m}^2$ [Kei08].

Les propriétés intrabandes des boîtes quantiques GaN/AlN ont été étudiées dans notre laboratoire. Les premières expériences sur des boîtes GaN/AlN épitaxiées par MBE à source ammoniac au CRHEA, ont montré des absorptions intrabandes photoinduites à température ambiante autour de $\lambda \sim 2 \mu\text{m}$ [Mou03]. En optimisant les conditions d'épitaxie MBE avec source plasma d'azote, il a été possible de réduire les tailles des boîtes (hauteur 1-1,8 nm) et d'observer des absorptions intrabandes dans la gamme 1,3-1,55 μm [Tch05b], [Gui06].

Nous avons également fabriqué le premier photodétecteur à boîtes quantiques GaN/AlN à transport dans le plan [Doy05], [Var06]. Ce détecteur fonctionne à température ambiante, à $\lambda=1,38 \mu\text{m}$ avec une réponse de 10 mA/Watt. Ce travail a été réalisé dans le cadre de la thèse de Laetitia Doyennette [Doy06]. Je montrerai au chapitre 5 que les boîtes quantiques GaN peuvent aussi donner lieu à une émission intrabande à $\lambda=1,55 \mu\text{m}$ et sont très intéressantes comme milieu actif pour la réalisation d'absorbants saturables.

1.4) Point de départ de ma thèse

1.4.1) Etude des puits quantiques simples GaN/AlN

Mon travail de thèse s'inscrit dans la continuité du travail de thèse de Maria Tchernycheva au sein de notre laboratoire [Tch05a]. Durant sa thèse, elle a effectué une étude systématique entre la simulation du confinement quantique des porteurs et les mesures expérimentales dans les hétérostructures GaN/AlN. Les mesures de photoluminescence UV ont permis de déterminer l'énergie de la transition fondamentale interbande hh_1e_1 , et les mesures d'absorption dans le proche infrarouge de sonder le confinement quantique intersousbande des électrons. Cette étude systématique a permis de développer un programme fiable permettant de calculer les niveaux quantiques en bande de conduction et d'affiner les paramètres fondamentaux du matériau comme la valeur du champ électrique interne (~ 10 MV/cm) ou la valeur de la discontinuité de potentiel en bande de conduction entre GaN et AlN ($\sim 1,75$ eV) [Tch06a]. Pour atteindre les longueurs d'onde des télécommunications (1,3-1,55 μm), l'épaisseur des puits quantiques GaN doit être comprise entre 4 et 6 monocouches atomiques. Il s'est avéré que les effets à n -corps décalent l'énergie des transitions intersousbandes vers le bleu. De plus, la prise en compte de la non-parabolicité des bandes a un rôle majeur puisqu'elle diminue pour les puits fins (4-6 monocouches) l'énergie de transition de plus de 25%.

L'étude de Maria Tchernycheva a révélé un aspect original sur le confinement électronique. La fluctuation d'une monocouche de l'épaisseur du puits quantique décale la transition intersousbande d'une énergie supérieure à la largeur spectrale de la transition. Cela se traduit par l'observation de raies d'absorptions intersousbandes distinctes propres à chaque épaisseur de puits quantique et ayant un élargissement homogène comme le montre l'ajustement Lorentzien (voir fig. 1.10).

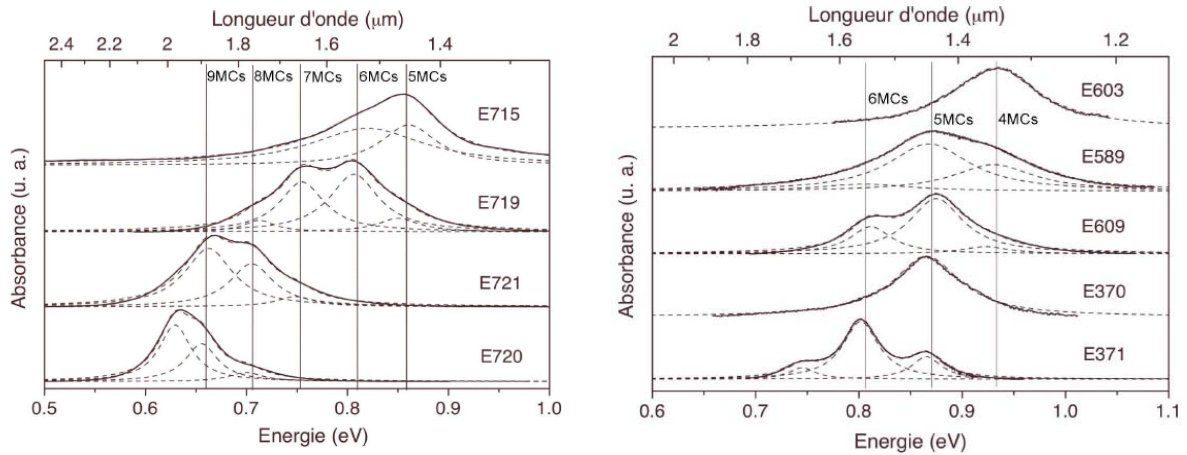


Fig. 1.10 : Absorbance intersubbande de plusieurs échantillons ajustée avec une somme de courbes Lorentziennes. Les spectres sont décalés verticalement pour faciliter la compréhension. Les absorbances mesurées sont représentées avec des traits pleins, les ajustements Lorentziens, avec des courbes en pointillé.

1.4.2) Etude de l'interface puits/barrière

Les travaux de Bernardini et Fiorentini sur les hétérojonctions AlN/GaN ont montré que la discontinuité de potentiel entre l'AlN et le GaN est répartie sur une monocouche, entre les couches de GaN et d'AlN [Ber98]. L'impact de cette discontinuité de potentiel non abrupte sur les niveaux d'énergie dans les puits quantiques GaN/AlN est considérable sur les puits quantiques étroits (épaisseur inférieure à 6 monocouches) mais aussi sur les puits quantiques couplés où la barrière de couplage ne mesure que quelques monocouches atomiques.

Si l'on tient compte de la répartition de la discontinuité de potentiel sur une monocouche d'après Bernardini *et al.*, le profil de potentiel d'une barrière de 2 MCs peut être approximé par un profil triangulaire. La figure 1.11, issue de la référence [Tch06b], montre le profil de potentiel de deux puits quantiques GaN couplés dont la barrière de couplage en AlN mesure seulement 2 MCs. Dans la figure 1.11-gauche, la discontinuité aux interfaces est abrupte et dans la figure 1.11-droite, elle s'étale sur une monocouche à chaque interface, donnant un profil de potentiel triangulaire à la barrière d'AlN de 2 MCs. La figure 1.11 donne également le spectre d'absorption expérimental ainsi que les spectres déterminés par simulation. La courbe de simulation pour le cas où le profil de potentiel de la fine barrière d'AlN est triangulaire est en très bon accord avec le spectre expérimental [Tch06b].

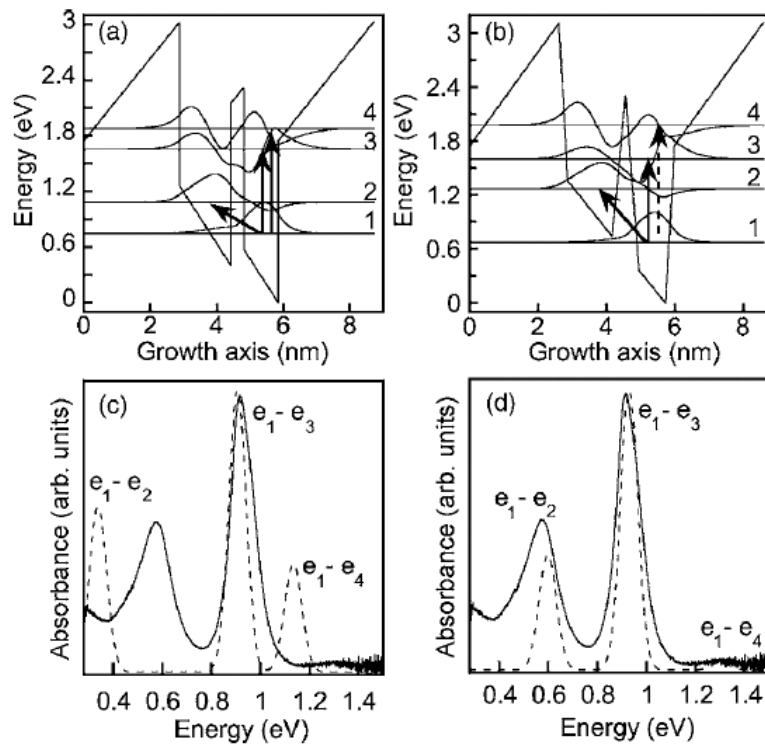


Fig. 1.11 : En haut : Profil de potentiel des puits couplés GaN/AlN avec ses états électroniques avec en (a), le profil de potentiel abrupt aux interfaces entre les puits et les barrières, en (b), le profil de potentiel aux interfaces variant linéairement sur une monocouche répartie entre le puits et la barrière. En bas : Spectres d'absorbance mesurés (trait plein) et simulés (en pointillé) pour des interfaces abruptes en (c), et non abruptes en (d) [Tch06b].

Conclusion

Après un rappel rapide des propriétés fondamentales des matériaux nitrures, j'ai présenté le calcul du confinement quantique des porteurs dans un système 2D et 0D. J'ai ensuite dressé un bref historique des transitions intersousbandes et des dispositifs associés dans les hétérostructures GaN/AlN.

Chapitre 2

Génération résonante de second harmonique dans les puits quantiques GaN/AlN

Sous excitation intense, la relation entre la polarisation du milieu et le champ électrique de l'onde électromagnétique n'est plus linéaire. Il apparaît alors, dans le développement de la polarisation en fonction du champ électrique, des termes d'ordre supérieur. L'ordre 2 décrit la génération de somme (SFG) ou différence (DFG) de fréquences avec deux cas particuliers, la génération de second harmonique ($\omega+\omega$) et la rectification optique ($\omega-\omega$).

En 1961, Franken *et al.* [[Fra61](#)] ont doublé pour la première fois la fréquence du laser à Rubis. Ils ont ainsi généré à travers un cristal de Quartz 60 μW de puissance lumineuse à 347 nm de longueur d'onde. Ce travail pionnier a permis par la suite la fabrication de sources intenses accordables dans des domaines spectraux très étendus.

Dans ce chapitre, je présente dans une première partie les généralités concernant la génération de second harmonique, et plus particulièrement, les propriétés liées à la structure wurtzite des nitrures. La seconde partie est consacrée à la mise en évidence de l'exaltation de la susceptibilité non linéaire en proche résonance avec les transitions intersousbandes dans les puits quantiques GaN/AlN. A la résonance, une valeur de $\chi_{2\omega}=114$ pm/V a été mesurée, en bon accord avec la valeur théorique calculée [[Nev06](#)]. En annexe 1, sont présentées les grandes lignes du traitement semi-classique non perturbatif basé sur les équations de la matrice densité pour décrire les interactions résonantes à deux-ondes trois-niveaux, et déduire la susceptibilité non linéaire dans les puits quantiques.

2.1) La génération de second harmonique

2.1.1) Cas général

De manière générale, le champ électrique s'écrit: $\vec{E}(z,t) = \sum_i \vec{E}_i(z) e^{i(\omega_i t - k_i z)} + c.c.$

et la polarisation liée au champ est : $\vec{P}_i = \varepsilon_0 (\chi_{ij}^{(1)} \vec{E}_j + \chi_{ijk}^{(2)} \vec{E}_j \vec{E}_k + \chi_{ijkl}^{(3)} \vec{E}_j \vec{E}_k \vec{E}_l + \dots)$

où $\chi^{(n)}$ est le tenseur de susceptibilité électrique d'ordre n et ε_0 est la permittivité du vide. Le premier terme de ce développement est la susceptibilité linéaire qui définit la constante diélectrique du milieu : $\varepsilon_{ij}(\omega) = 1 + \chi_{ij}(\omega)$ et donc l'indice de réfraction.

Dans mon étude, je ne m'intéresserai qu'à la susceptibilité non linéaire d'ordre deux qui intervient dans la génération de second harmonique. Ainsi,

$$\vec{P}_i^{(2)} = \sum_{j,k=x,y,z} \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} \vec{E}_j \vec{E}_k .$$

Considérons dans un premier temps deux ondes se propageant dans la même direction de l'espace. Leur champ électromagnétique \vec{E}_1 et \vec{E}_2 de pulsation ω_1 et ω_2 interagissent dans un milieu non linéaire pour donner la polarisation suivante :

$$\vec{P}^{(2)}(t) = \chi^{(2)} [\vec{E}_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + \vec{E}_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2\vec{E}_1 \vec{E}_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2\vec{E}_1 \vec{E}_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c.] + 2\chi^{(2)} [\vec{E}_1 \vec{E}_1^* + \vec{E}_2 \vec{E}_2^*]$$

En développant $\vec{P}^{(2)}(t)$ en série de Fourier : $\vec{P}^{(2)}(t) = \sum_n \vec{P}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}$, où n s'étend sur les valeurs positives et négatives, nous pouvons identifier les différents termes correspondant aux processus non linéaires d'ordre deux.

$$\vec{P}(2\omega_1) = \chi^{(2)} \vec{E}_1^2 \text{ génération de second harmonique à la fréquence } 2\omega_1$$

$$\vec{P}(2\omega_2) = \chi^{(2)} \vec{E}_2^2 \text{ génération de second harmonique à la fréquence } 2\omega_2$$

$$\vec{P}(\omega_1 + \omega_2) = 2\chi^{(2)} \vec{E}_1 \vec{E}_2 \text{ génération de la somme de fréquences}$$

$$\vec{P}(\omega_1 - \omega_2) = 2\chi^{(2)} \vec{E}_1 \vec{E}_2^* \text{ génération de la différence de fréquences}$$

$$\vec{P}(0) = 2\chi^{(2)} [\vec{E}_1 \vec{E}_1^* + \vec{E}_2 \vec{E}_2^*] \text{ rectification optique}$$

Tous ces processus ne sont pas observables simultanément. Dans mon étude, je m'intéresse au cas où il existe un unique champ source, soit $\vec{E}_1 = \vec{E}_2 = \vec{E}_\omega$ avec $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, et le champ harmonique sera noté $\vec{E}_{2\omega}$ à la fréquence 2ω .

La propagation des ondes dans un milieu matériel est décrite par les équations de Maxwell. Si les densités de charge et de courant macroscopiques sont nulles, nous avons :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B} \quad (1)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \vec{E} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial}{\partial t} \vec{P} \quad (2)$$

où \vec{B} est le champ magnétique. En combinant les équations (1) et (2), on obtient :

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}.$$

Il est alors commode d'effectuer une décomposition de transformée de Fourier temporelle du champ électrique et de la polarisation du milieu, tout en distinguant la partie linéaire et non linéaire de celle-ci :

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) + \vec{P}^{NL}(\omega).$$

On obtient donc :

$$\nabla^2 \vec{E}(\omega) + k^2 \vec{E}(\omega) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{NL}(\omega).$$

Dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable (à l'échelle de la longueur d'onde optique) et dans le cas d'un milieu transparent [Shen84], [Boyd92], [Ros02] :

$$\left| \nabla^2 \vec{E}(\omega) \right| \ll \left| (k \cdot \vec{\nabla}) \vec{E}(\omega) \right|$$

on obtient finalement un système non linéaire d'équations couplées selon la direction de propagation z :

$$\frac{\partial}{\partial z} \vec{E}_{2\omega} = \frac{i2\omega}{2n_{2\omega}c} \left[\chi_{2\omega}^{(2)} \vec{E}_\omega^2 \right] e^{i\Delta kz} \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \vec{E}_\omega = \frac{i\omega}{2n_\omega c} \left[\chi_\omega^{(2)} \vec{E}_\omega^* \vec{E}_{2\omega} \right] e^{-i\Delta kz}$$

avec $\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c}(n_\omega - n_{2\omega})$. La quantité Δkz , généralement appelée « désaccord de phase », a une grande influence sur l'intensité de l'onde harmonique générée, comme il sera expliqué par la suite.

Si l'on suppose que le rendement de conversion n'est pas trop grand et que l'intensité de la pompe reste constante le long du chemin de propagation (approximation de la pompe non déplétée), on peut intégrer la première équation du système (3) sur une longueur de propagation L avec la condition $E_{2\omega}(z=0)=0$:

$$E_{2\omega}^{(z=L)} = \frac{i2\omega}{2n_{2\omega}c} \chi_{2\omega}^{(2)} E_\omega^2 e^{i\frac{\Delta kL}{2}} L \frac{\sin(\Delta kL/2)}{\Delta kL/2}.$$

La puissance de second harmonique est donnée par $P_{2\omega} = 2n_\omega \varepsilon_0 c S |E_{2\omega}^{(z=L)}|^2$ où S est la surface illuminée par le laser sur l'échantillon, et on obtient finalement :

$$P_{2\omega}^{(z=L)} = \frac{(2\omega)^2}{8\varepsilon_0 c^3 S} \frac{|\chi_{2\omega}^{(2)}|^2}{n_{2\omega} n_\omega^2} P_\omega^2 L^2 \left(\frac{\sin(\Delta kL/2)}{\Delta kL/2} \right)^2.$$

Cette relation montre le rôle important de l'accord de phase, c'est-à-dire de la mise en phase de l'onde engendrée par le processus non linéaire et de celle qui se propage déjà dans le milieu actif. En effet, dans le cas où $\Delta k=0$, l'accord de phase est parfait et l'intensité de l'onde harmonique croît de façon quadratique en fonction de la longueur de propagation L . Le transfert d'énergie vers l'onde harmonique est maximal. Dans le cas contraire ($\Delta k \neq 0$), l'évolution de l'intensité est oscillante en fonction de L , et passe par zéro tous les $2\pi/\Delta k$. Le transfert d'énergie et par conséquent le rendement du processus est plus faible. On définit la longueur de cohérence comme la longueur pour laquelle le désaccord de phase est de π , c'est-à-dire, $L_c = \lambda/4(n_{2\omega} - n_\omega)$. Si la longueur de propagation est courte devant cette longueur de cohérence, le désaccord de phase devient négligeable.

La forme du tenseur $\chi_{2\omega}^{(2)}$ dépend de la symétrie cristalline du matériau utilisé. Dans la suite, je me concentre sur le cas particulier de la structure wurtzite.

2.1.2) Tenseur de susceptibilité d'ordre deux dans le GaN

La maille wurtzite ne possède pas de centre d'inversion ce qui permet au nitrure de Gallium (GaN) de présenter une susceptibilité d'ordre deux non nulle. Le $\chi_{2\omega}^{(2)}$ est un tenseur d'ordre trois. Compte tenu des relations de symétrie qui permettent d'annuler la plupart des éléments du tenseur, ce dernier peut être simplifié en :

$$d_{il}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

où

$$d_{il} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) \quad \text{quand } j=k$$

$$d_{il} = \frac{1}{4} [\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) + \chi_{ikj}^{(2)}(2\omega)] \quad \text{lorsque } j \neq k \text{ puisque } \chi_{ijk} = \chi_{ikj}$$

et la relation entre le nouvel indice l et les originaux jk est :

$$\begin{cases} l=1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6 \\ jk = xx & yy & zz & yz, zy & xz, zx & xy, yx \end{cases}$$

Dans les semi-conducteurs nitrures (AlN, GaN et InN et leurs alliages), de nombreux travaux théoriques [Che95], [Che97], [Gav00], [Gav01], [Hug97] et expérimentaux [Ang99], [Lar06], [Mir93], [San05], ont été menés pour déterminer les valeurs de la susceptibilité non linéaire d'ordre deux dans le matériau massif. On trouve ainsi dans la littérature, les valeurs de susceptibilités suivantes à comparer avec celles des cristaux non-linéaires usuels :

Cristal	référence	d_{il} (pm/V)
GaN	[Mir93]	$d_{33}=-11,03$
		$d_{31}=5,28$
		$d_{15}=5,5$
	[San05]	$d_{33}=-10,3$
		$d_{31}=2,9$
	[Lar06]	$d_{33}=-4,28$
AlN	[Che95]	$d_{33}=-6,3$
InN	[Gav00]	$d_{33}=6,17(\text{théorique})$
GaAs		$d_{36}=170$
BaTiO ₃		$d_{31}=-18,01$
LiNbO ₃		$d_{33}=41,05$
Quartz		$d_{11}=0,40$
KDP		$d_{36}=0,51$
SiO ₂		$d_{11}=16$
BBO		$d_{22}=2,3$
KTP		$d_{33}=16,6$

Pour les effets non-linéaires du second ordre, les matériaux les plus utilisés sont les ferroélectriques (KDP, ADP, KTP, LiNbO₃, ...) qui possèdent certes des susceptibilités inférieures à celles des semi-conducteurs, mais dont les autres qualités (anisotropie, transparence, seuil de claquage optique) sont tout à fait remarquables.

Néanmoins, le GaN est un matériau intéressant pour l'optique non linéaire. Il possède un grand domaine spectral de transparence qui s'étend de l'UV (370 nm) à la bande Reststrahlen (13 μ m). Il présente également un seuil de dommage optique très élevé (~ 34 nJ/pulse à 400 nm) [\[Eli99\]](#). C'est en outre un matériau biréfringent, propriété qui pourrait être mise à profit pour satisfaire les conditions d'accord de phase.

2.1.3) Génération de second harmonique dans la maille wurtzite

La polarisation à la fréquence 2ω s'écrit :

$$\vec{P}_i^{(2)}(2\omega) = \sum_{j,k=x,y,z} \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} \vec{E}_j(\omega) \vec{E}_k(\omega)$$

ce qui donne pour la structure wurtzite :

$$\begin{cases} P_x(2\omega) = 2\varepsilon_0 d_{15} E_x(\omega) E_z(\omega) \\ P_y(2\omega) = 2\varepsilon_0 d_{15} E_y(\omega) E_z(\omega) \\ P_z(2\omega) = \varepsilon_0 d_{31} [E_x(\omega)^2 + E_y(\omega)^2] + \varepsilon_0 d_{33} E_z(\omega)^2 \end{cases}$$

Dans la maille wurtzite parfaite $d_{31}=d_{15}$ et $d_{15}=-2d_{33}$. Ces relations sont vérifiées expérimentalement dans les couches de bonne qualité [Mir93], [San05].

L'intensité de l'onde SH $I_{2\omega}$ est une fonction de l'angle d'incidence θ de l'onde fondamentale et s'écrit :

$$I_{2\omega}^{m-p}(2\omega) \propto CI_{\omega}^2 (2\pi L / \lambda)^2 (d_{eff}^{m-p})^2 \left(\frac{\sin(\Psi)}{\Psi} \right)^2 \quad (4)$$

où $I_{2\omega}^{m-p}$ est l'intensité de l'onde SHG polarisée TM (p) induite par l'onde fondamentale polarisée m. C est un coefficient proportionnel à la transmission de Fresnel, L l'épaisseur des couches, et $\Psi(\theta) = (2\pi L / \lambda)(n_{\omega} \cos \theta_{\omega} - n_{2\omega} \cos \theta_{2\omega})$ où n_{ω} et $n_{2\omega}$ sont les indices de réfraction de l'onde pompe et de l'onde SH générée dans les couches [Kra00].

d_{eff}^{m-p} est la susceptibilité effective à la polarisation incidente m. On détermine donc les véritables coefficients d_{il} via les formules suivantes [Mir93], [Kra00], [San05] :

$$\begin{aligned} d_{eff}^{s-p} &= d_{31} \sin \theta_{2\omega} \\ d_{eff}^{45-p} &= d_{15} \sin \theta_{\omega} \\ d_{eff}^{p-p} &= d_{15} \cos \theta_{2\omega} \sin 2\theta_{\omega} + d_{31} \cos^2(\theta_{\omega}) \sin \theta_{2\omega} + d_{33} \sin^2(\theta_{\omega}) \sin \theta_{2\omega} \end{aligned}$$

Optimisation du rendement de conversion

Pour les applications pratiques, il faut maximiser l'efficacité de conversion de fréquence. Dans la formule (4), l'optimisation peut porter sur les deux termes suivants : la susceptibilité effective d_{eff}^{m-p} et le terme $\left(\frac{\sin(\Psi)}{\Psi}\right)^2$ directement lié à l'accord de phase.

En ce qui concerne l'accord de phase, plusieurs approches sont utilisées. Par exemple, il peut être réalisé grâce à la biréfringence du milieu, par le renversement de la polarité du matériau sur une longueur de cohérence [Cho03], ou encore, en utilisant par exemple, la dispersion du mode dans un guide d'onde [Hah99].

Il est également important de maximiser la susceptibilité intrinsèque du matériau. Le $\chi^{(2)}$ peut être augmenté en structurant le matériau ou en utilisant des résonances optiques aux fréquences mises en jeu. Voici quelques illustrations pour ces deux approches :

- i) Des résultats intéressants ont été obtenus sur l'exaltation des non linéarités en structurant le semi-conducteur par un cristal photonique [Bal01], [Dum01], [Joh93], [Sak96]. Des valeurs géantes d'exaltation de génération de second harmonique ont été mesurées, proche d'un facteur 10^4 [Tor04a], [Tor04b] mais cette technique demande des étapes technologiques de gravure très complexes.
- ii) Des grandes valeurs de $\chi^{(2)}_{2\omega}$ peuvent être obtenues en proche résonance avec la bande interdite des matériaux semi-conducteurs massifs ou avec la bande interdite d'hétérostructures à puits quantiques asymétriques [Ata94], [Fio95a], [Fio95b], [Khu88], [Pel95], [Qu94], [Ros96], [Xie91]. Cela a été réalisé dans les nitrures, [Kim97], [Yan06] et le doublage de fréquence a été mis en évidence en proche résonance avec la bande interdite des puits quantiques InGaN/GaN [Sch99] où une valeur de $\chi^{(2)}_{2\omega} \sim 130$ pm/V a été mesurée à $\lambda \sim 420$ nm.

La conversion de fréquence en proche résonance avec les transitions interbandes du matériau sous forme massive ou sous forme d'hétérostructure présente un inconvénient. En effet, proche de la bande interdite, l'indice optique du matériau

semi-conducteur varie très fortement avec la longueur d'onde ce qui complique la réalisation de l'accord de phase.

- iv)* L'utilisation des transitions intersousbandes dans les puits quantiques en résonance avec les fréquences optiques mises en jeu est beaucoup mieux adaptée et plus flexible. En effet, les résonances intersousbandes peuvent être ajustées à la demande en faisant varier l'épaisseur du puits quantique, ou la composition de l'alliage dans les barrières. C'est la technique qui a été choisie dans ce travail.

Je présente dans la suite, un bref historique des travaux menés mettant en évidence l'amplification des non-linéarités optiques avec les résonances intersousbandes dans les puits quantiques en utilisant différents matériaux.

2.2) Revue des travaux sur l'exaltation du $\chi^{(2)}$ par les transitions ISB

Les non-linéarités optiques en résonance avec les transitions intersousbandes ont été intensément étudiées à la fin des années 80. Gurnick et De Temple [Gur83] ont développé en 1983 un modèle basé sur les équations de la matrice densité dans un traitement semi-classique non perturbatif pour décrire l'exaltation de la susceptibilité non linéaire via les résonances intersousbandes. Ces auteurs prédisent dans les hétérostructures $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, des non linéarités 10 à 100 fois plus grandes que dans le GaAs massif. Les grandes lignes de ce modèle très puissant sont développées en annexe 1.

Avec un système d'ingénierie des couches, il est possible de satisfaire la condition de double résonance, ce qui amplifie fortement la valeur de la susceptibilité. Dans ce cas, la susceptibilité non linéaire varie proportionnellement avec le produit des dipôles de transition et est inversement proportionnelle au produit des élargissements homogènes des transitions. Puisque le dipôle des transitions intersousbandes est orienté suivant la direction de confinement z , seule la susceptibilité $\chi^{2\omega}_{zzz}$ ($=2d_{33}$) sera amplifiée ce qui donne :

$$\chi^{(2\omega)}_{zzz}(\omega) = \frac{e^3 n_{3D}}{\epsilon_0 \hbar^2} \frac{z_{12} z_{23} z_{31}}{(\omega - \Omega_{12} - i\Gamma_{12})(2\omega - \Omega_{31} - i\Gamma_{31})} \quad (5)$$

où e représente la charge élémentaire de l'électron, n_{3D} est le dopage en cm^{-3} de la structure, ϵ_0 est la permittivité du vide, $2\pi\hbar$ la constante de Planck, z_{ij} la longueur du dipôle de la transition i vers j , Ω_{ij} la fréquence de résonance de la transition ij , ω la fréquence de pompe, et Γ_{ij} la largeur de raie homogène de la transition ij .

Il est évident d'après la formule (5), que pour maximiser la valeur le $\chi^{2\omega}_{zzz}$, il faut maximiser le produit des dipôles de chaque transition. La première difficulté, c'est que dans un puits quantique symétrique, le dipôle de la transition $e_1 e_3$ est nul. Il est donc nécessaire de briser la symétrie du potentiel des puits quantiques. Pour cela, plusieurs approches sont possibles. Fejer *et al.* [Fej89] ont en 1989 appliqué un champ électrique de 36 kV/cm à une structure de puits quantiques GaAs/AlGaAs (voir fig 2.1a). N'étant pas exactement à la double résonance, ils ont amplifié la susceptibilité d'un facteur 73 par rapport au GaAs massif. La même année, Emmanuel Rosencher *et al.* [Ros89a] ont quant à eux, choisi une structure à puits quantiques GaAs/AlGaAs en profil de marche d'escalier (fig 2.1b). Ce profil a permis d'amplifier très

fortement $\chi_{zzz}^{2\omega}$ par un facteur 1900 ($\chi_{2\omega}^{(2)} \sim 720$ nm/V) car la condition de double résonance était satisfaite. Sur le même échantillon, Boucaud *et al.* [Bou90] mettent en évidence en 1990 l'exaltation de la génération de second harmonique via le spectre d'excitation en résonance avec les transitions intersousbandes. Pour finir, Sirtori *et al.* [Sir91] ont utilisé en 1991 un système à puits couplés InGaAs/AlInAs sur InP (fig 2.1c) plus compliqué, mais permettant d'optimiser au maximum le produit des dipôles et de satisfaire les conditions de double résonance. Ils exploitent également la masse effective plus faible d'InGaAs. Malgré ces optimisations, ils obtiennent la valeur $\chi_{2\omega}^{(2)} \sim 48$ nm/V, qui n'est que 100 fois plus importante que dans GaAs, InAs et InP massif. Cette valeur un peu faible de l'exaltation dans ce système pourtant optimisé peut s'expliquer par la largeur de raie importante des transitions intersousbandes (FWHM ~ 30 meV) dans les puits quantiques couplés.

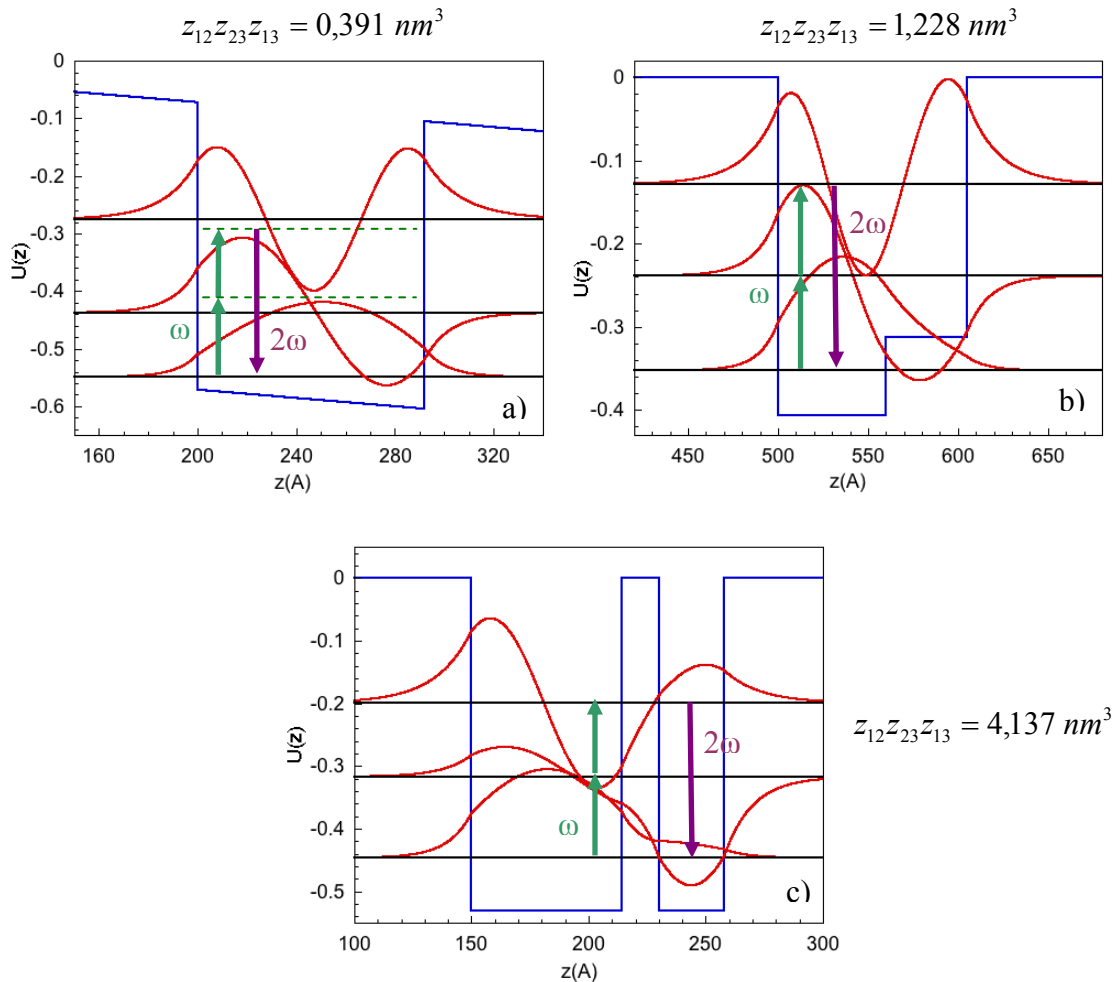


Fig. 2.1 : Profils de potentiels dissymétriques utilisés par a) Fejer *et al.* [Fej89], b) Rosencher *et al.* ainsi que Boucaud *et al.* [Ros89a], [Bou90], et c) Sirtori *et al.* [Sir91], pour satisfaire les conditions de double résonance.

L'exaltation de la génération de second harmonique a aussi été observée dans les puits quantiques en SiGe sur silicium [Set94]. Les transitions mises en jeu sont dans ce cas en bande de valence.

Au milieu des années 90, plusieurs auteurs se sont intéressés à la somme (SFG) ou différence (DFG) de fréquences en résonance dans les puits quantiques. Sirtori *et al.* [Sir94] ont observé la différence de fréquences de deux lasers CO₂ doublement résonants dans des puits quantiques couplés InGaAs/AlInAs. Ils ont ainsi généré une onde dans le lointain infrarouge à $\lambda \sim 60 \mu\text{m}$. Sur le même principe, Chui *et al.* [Chui94] ont quant à eux généré une onde accordable entre $\lambda = 8,66\text{-}11,34 \mu\text{m}$ par différence de fréquences. H. C. Liu *et al.* [Liu95], [Liu96] ont réalisé la somme de fréquences de deux lasers CO₂ en résonance avec les niveaux confinés dans des puits quantiques en profil de marche d'escalier GaAs/AlGaAs. Plus récemment, en faisant la différence de fréquence de deux laser CO₂, Dupont *et al.* ont générés des ondes dans le domaine GHz [Dup06].

D'autres non linéarités résonantes ont été mises en évidence comme la rectification optique [Ros89b], ou encore, la génération résonante de troisième harmonique dans des puits quantiques couplés InGaAs/AlInAs [Sir92], [Cap94], voire même avec les résonances intrabandes dans les boîtes quantiques InAs/GaAs [Sau99], [Bru00], [Sau01].

Toutes ces démonstrations de processus non linéaires résonants sont très intéressantes mais peu utiles si l'accord de phase n'est pas réalisé. En 1998, Vodopyanov *et al.* [Vodo98] réalisent l'accord de phase dans une structure à puits couplés InGaAs/AlInAs résonante. Ils obtiennent ainsi une conversion de 1 % dans un guide d'onde de seulement 200 μm de longueur à $\lambda = 8,6 \mu\text{m}$.

Dans les matériaux GaAs/AlGaAs ou InGaAs/AlInAs ou SiGe/Si étudiés précédemment, le domaine spectral utilisable pour la conversion de fréquence est limité au moyen infrarouge (5-25 μm) à cause de la faible valeur de la discontinuité de potentiel en bande de conduction ou de valence. Grâce à leur grande discontinuité de potentiel en bande de conduction ($\sim 1,75 \text{ eV}$), les hétérostructures de nitrures (GaN/AlN) permettent d'étendre ce domaine au proche IR. De plus, grâce au champ interne gigantesque dans ces matériaux, la symétrie est

naturellement brisée dans des puits quantiques simples GaN/AlN (fig. 2.2) permettant ainsi de bénéficier de la force d'oscillateur sur la transition e_1e_3 normalement interdite.

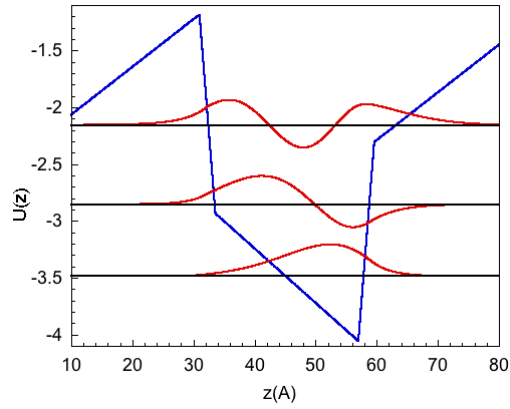


Fig. 2.2 : Profil de potentiel en bande de conduction d'une hétérostructure GaN/AlN avec les niveaux d'énergies et les fonctions enveloppes correspondantes.

2.3) Mise en évidence de la génération résonante de second harmonique dans les puits quantiques GaN/AlN

Je présente dans cette partie les expériences que j'ai menées pour mettre en évidence l'exaltation de la susceptibilité non linéaire d'ordre deux par les résonances intersousbandes dans les puits quantiques GaN/AlN.

2.3.1) Structure de l'échantillon E945

L'échantillon utilisé pour la génération de second harmonique a été fabriqué par épitaxie par jets moléculaires avec un plasma d'azote comme source d'élément V (PAMBE pour *Plasma Assisted Molecular Beam Epitaxy*). La croissance a été réalisée dans le laboratoire Nanophysique et Semiconducteurs DRFMC du CEA/CNRS de Grenoble par Fabien Guillot et Eva Monroy. Le substrat utilisé pour démarrer la croissance est fourni par l'entreprise NGK et consiste en une couche tampon d'un micron d'AlN déposée par MOCVD sur un substrat saphir (0001). La structure de l'échantillon E945 est illustrée ci-dessous :

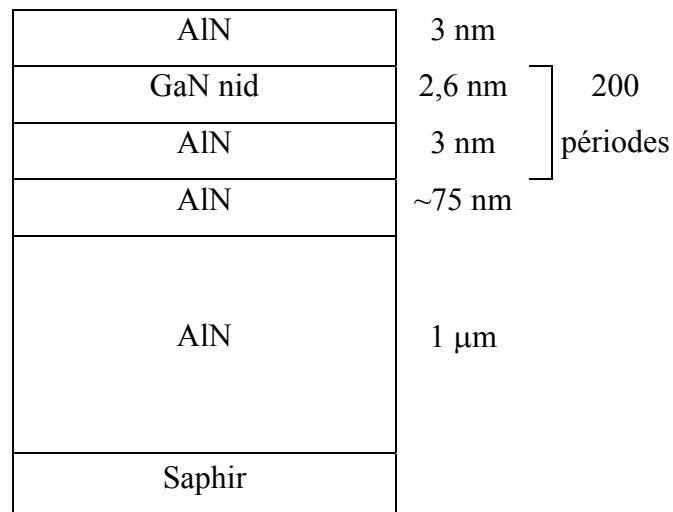


Fig. 2.3 : Structure de l'échantillon E945.

La structure active de l'échantillon contient une série de 200 périodes de puits quantiques GaN de 10 monocouches (2,6 nm), séparé par des barrières d'AlN de 3 nm. Les puits quantiques sont non intentionnellement dopés, et la concentration électronique provient du dopage résiduel. Il faut souligner que l'échantillon contient du GaN uniquement dans les puits quantiques.

Deux échantillons témoins ont également été utilisés dans les expériences qui suivent. Tous les deux sont épitaxiés sur un substrat saphir : l'un contient 3,5 μm d'épaisseur de GaN massif, et l'autre, 1 μm d'épaisseur d'AlN massif.

Il faut noter que l'épaisseur de GaN parmi ces trois échantillons n'excède pas 3,5 μm , ce qui est très inférieur à la longueur de cohérence [Cho03].

2.3.2) *Spectroscopie*

Dans un premier temps, j'ai étudié l'échantillon par spectroscopie à transformée de Fourier. La figure 2.4 montre le spectre d'absorption intersousbande mesuré à l'incidence de Brewster en polarisation TM (p) à température ambiante. On observe un pic à 1,94 μm (0,64 eV) avec une amplitude de 6,5 % et une largeur totale à mi-hauteur de 84 meV. Ce pic est attribué à la transition e_1-e_2 dans les puits quantiques. Les oscillations présentes sur le spectre sont dues à la fluctuation d'épaisseur des puits quantiques comme expliqué dans le chapitre I. Les pics correspondent à l'absorption de puits quantiques faiblement dopés de 10, 9 et 8 monocouches d'épaisseur respectivement [Tch06a]. Chacun d'eux a une largeur totale à mi-hauteur de 42 meV. Cet élargissement est remarquablement faible ($\Delta E/E = 6,6\%$) pour des transitions intersousbandes dans les nitrures à température ambiante.

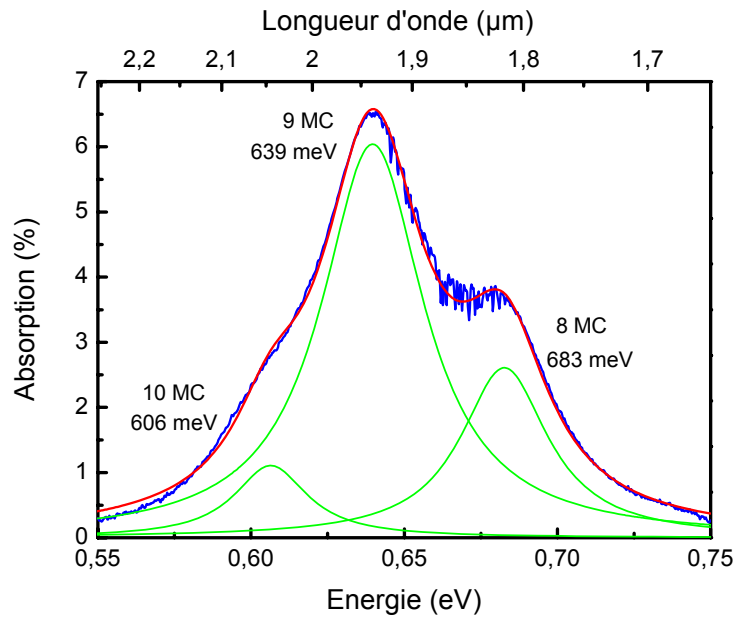


Fig. 2.4 : Spectre d'absorption intersousbande e_1e_2 à l'incidence de Brewster de l'échantillon E945 (courbe bleue) ainsi que les ajustements Lorentziens (courbes vertes et rouge).

A l'incidence de Brewster, il est très difficile d'observer la transition e_1e_3 qui est beaucoup plus faible que la transition e_1e_2 . La figure (2.5) ci-dessous représente le spectre d'absorption intersousbande de l'échantillon E945 dans le proche infrarouge en configuration zigzag avec 15 réflexions totales internes.

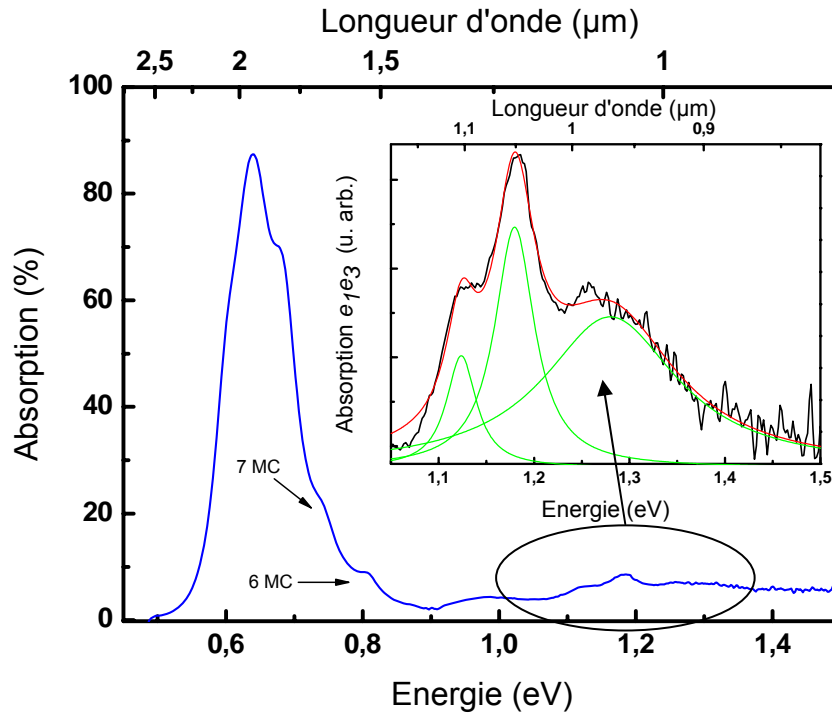


Fig. 2.5 : Spectre d'absorption intersousbande en configuration zigzag de l'échantillon E945. En insert est représenté un agrandissement de la partie située à haute énergie ainsi que les ajustements Lorentziens (courbes rouge et vertes).

Ce deuxième spectre montre une très forte absorption (87 %), uniquement polarisée TM (p), piquée à la même énergie qu'à l'incidence de Brewster : 1,94 μm (0,64 eV) avec cette fois ci, une largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de 110 meV. Ce plus fort élargissement est lié à la plus grande longueur de propagation dans la couche active qui exalte les faibles absorptions dans la configuration multi-passage. On note aussi la contribution des puits de 7 et 6 monocouches d'épaisseur.

On observe également sur ce spectre un second pic de faible amplitude, à très haute énergie, piqué à 1,18 eV (1,05 μm), attribué à la transition e_1e_3 (voir insert fig. 2.5). On remarque que la transition e_1e_3 possède un élargissement très important (FWHM~200 meV), mais elle est également structurée. Par analogie avec la transition e_1e_2 , on attribue ces structures aux absorptions de puits d'épaisseurs différentes. Si l'on décompose cette transition e_1e_3 en somme de trois Lorentziennes, on obtient les élargissements individuels de 40, 50 et

170 meV. La largeur à mi hauteur des pics augmente fortement avec l'énergie et donc avec la réduction de l'épaisseur du puits quantique. On peut proposer l'explication suivante à ce phénomène inattendu : à partir d'une épaisseur critique du puits quantique, le troisième niveau se délocalise dans le continuum, ou plutôt, dans la partie triangulaire du profil de potentiel de la barrière AlN (fig. 2.6). Ainsi, la fluctuation d'épaisseur du puits GaN ne fait varier que très faiblement l'énergie du niveau e_3 contrairement à celle du niveau e_1 . Ceci peut expliquer l'élargissement important du pic Lorentzien situé à très haute énergie (FWHM=170 meV) dans lequel réside la contribution de plusieurs épaisseurs de puits quantiques GaN. De plus, la position de ce troisième niveau est très sensible à la valeur de la discontinuité de potentiel ($\sim 1,75$ eV) ainsi qu'à la valeur du champ interne dans la structure (~ 9 MV/cm). Il est donc difficile d'attribuer de façon non ambiguë une épaisseur de puits quantique à chaque pic de la transition e_1e_3 dans l'insert de figure 2.5. Pour lever cette incertitude, une expérience intéressante aurait été d'effectuer une spectroscopie pompe-sonde ou « hole-burning » résolue spectralement sur les transitions e_1e_2 et e_1e_3 , c'est-à-dire, saturer les différents pics dans l'absorption e_1e_2 tout en sondant l'absorption e_1e_3 . On s'attend à observer une diminution du pic d'absorption e_1e_3 pendant la durée de l'impulsion du laser accordé sur le pic correspondant à l'absorption e_1e_2 .

La position des pics des transitions e_1e_2 ainsi que leur force d'oscillateur respective est en bon accord avec les prédictions du modèle de Maria Tchernycheva décrit dans la section 1.2.3). Le profil de potentiel en bande de conduction calculé pour un puits quantique de 9 monocouches d'épaisseur de GaN est représenté sur la figure 2.6. La longueur des dipôles est calculée comme étant 0,495, 0,011 et 0,673 nm pour les transitions e_1e_2 , e_1e_3 et e_2e_3 , respectivement.

Avec la valeur du dipôle calculée et l'amplitude de l'absorption e_1e_2 mesurée à l'incidence de Brewster, il est possible d'estimer la concentration électronique dans les puits quantiques par

unité de surface grâce à la relation $n_{2D} = \frac{\alpha_{12}L}{\sigma_{12}}$, où σ_{12} est la section efficace d'absorption de

la transition 1 vers 2 et $\alpha_{12}L$, l'absorbance mesurée. On obtient $n_{2D}=1,05 \times 10^{12}$ cm⁻², ce qui est équivalent à un dopage volumique de $3,8 \times 10^{18}$ cm⁻³ dans le puits. Cette dernière valeur correspond au dopage résiduel dans les puits quantiques GaN/AlN non intentionnellement dopés. Les porteurs sont issus de défauts situés dans le matériau puits ou barrière.

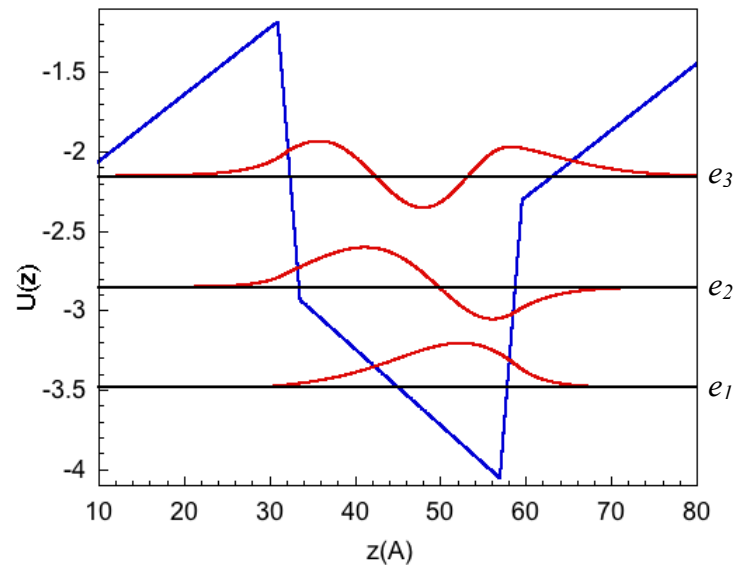


Fig. 2.6 : Profil de potentiel en bande de conduction de l'échantillon E945 ainsi que les niveaux d'énergie et les fonctions enveloppes correspondantes.

2.3.3) Génération résonante de second harmonique

L'expérience de génération résonante de second harmonique a été menée en collaboration avec Myriam Raybaut, Antoine Godard et Emmanuel Rosencher, à l'ONERA (*Office National d'Etudes et de Recherches Aéronautiques*).

La mesure de génération de second harmonique a été effectuée à température ambiante en utilisant un oscillateur paramétrique optique (OPO) délivrant des impulsions de 6 ns de durée avec une cadence de 30 Hz. L'OPO utilise un cristal non-linéaire de Potassium Titanyl Phosphate (KTP) pompé par un laser Nd :YAG (yttrium aluminium garnet) à 1,064 μm de longueur d'onde. L'émission de l'OPO est accordable de 1,9 à 2,1 μm pour l'onde « signal » et de 2,1 à 2,3 μm pour l'onde « idler ». Une lame demi-onde (à 2 μm) est utilisée pour tourner la polarisation en sortie d'OPO. L'échantillon ainsi que le détecteur sont encapsulés dans une boîte opaque dont l'ouverture est une fenêtre de Germanium (Ge) de 5 mm d'épaisseur. Cette fenêtre permet de laisser passer uniquement le signal de l'OPO à 2 μm de longueur d'onde, et de couper très fortement l'émission diffusée à 1 μm par le laser YAG. Le faisceau est focalisé sur l'échantillon à l'incidence de Brewster avec une lentille en fluorure de calcium (CaF_2) de 5 cm de longueur focale. Le diamètre de la tache illuminée sur l'échantillon a été mesuré égal à 300 μm . Des filtres interférentiels sont intercalés entre l'échantillon et le détecteur pour s'affranchir du signal de la pompe à 2 μm mais laisser passer celui à 1 μm de longueur d'onde. La détection se fait à 300 K en utilisant une photodiode Si à avalanche Hamamatsu (C5460), un oscilloscope, et un box-car pour moyenner les mesures. La réponse du détecteur ainsi que la transmission des optiques ont été soigneusement calibrées spectralement. L'expérience est schématisée dans la figure 2.7.

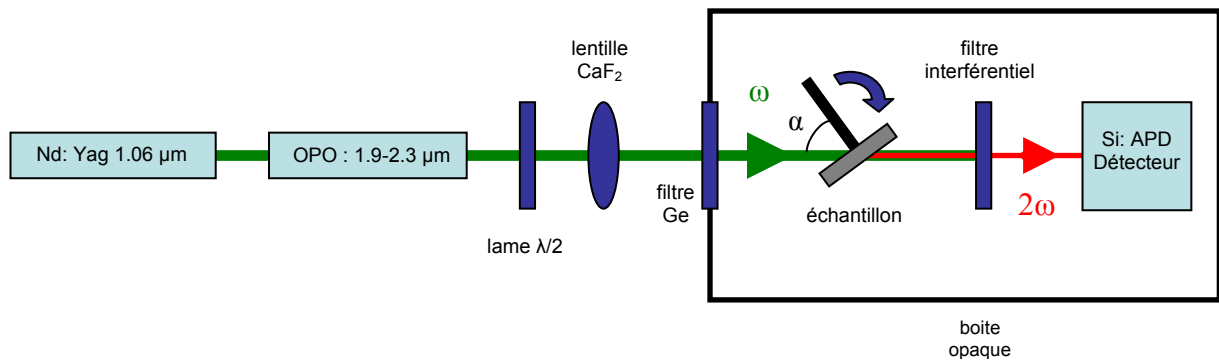


Fig. 2.7 : Schéma expérimental utilisé pour observer la génération de second harmonique.

La figure 2.8 montre (courbe rouge) la puissance émise par les puits quantiques à $\sim 1 \mu\text{m}$ de longueur d'onde en fonction de la puissance pompe. La longueur d'onde de la pompe est $1,98 \mu\text{m}$, c'est-à-dire, en résonance avec la transition e_1e_2 . Le faisceau pompe est polarisé TM (p). Le graphe montre une évolution quadratique de la puissance à $\lambda \sim 1 \mu\text{m}$ en fonction de la puissance pompe. Ceci est attendu pour un processus de génération de second harmonique puisque $P_{2\omega} \propto |\chi_{2\omega}^{(2)}|^2 L^2 P_\omega^2$. Le signal émis par l'échantillon chute drastiquement lorsque la polarisation de la pompe est tournée en TE (s) ou lorsque l'on oriente l'échantillon à incidence normale (voir graphe 2.9). Ce comportement pourrait être un premier signe de l'exaltation du processus non linéaire par les résonances intersousbandes. Cependant ceci n'est pas une démonstration, puisque cette sensibilité à la polarisation pompe a aussi été observée pour les mesures de SHG dans le GaN massif [Lar06], [Kra00]. Sur le même graphe 2.8 est représentée l'évolution en puissance de la génération de second harmonique de l'échantillon de référence constitué de $3,5 \mu\text{m}$ de GaN massif (courbe bleue). Sur cet échantillon, l'émission générée est 2,77 fois supérieure à celle des puits quantiques. A noter que l'onde pompe traverse dans ce cas une épaisseur de $3,82 \mu\text{m}$ de GaN massif (à l'incidence de Brewster) alors qu'elle ne traverse que $0,57 \mu\text{m}$ de GaN dans les puits quantiques. De plus, la génération de second harmonique évolue quadratiquement avec l'épaisseur traversée. Si l'on normalise la conversion par la longueur d'interaction au carré, la conversion de fréquence est 16 fois plus efficace dans l'échantillon à puits quantiques que dans l'échantillon de GaN de référence. La mesure a également été répétée avec l'autre échantillon de référence comprenant $1 \mu\text{m}$ d'AlN sur substrat saphir. Aucun signal n'a pu être détecté dans la limite de sensibilité expérimentale. Ceci démontre que le signal de second harmonique mesuré sur l'échantillon à puits quantiques vient exclusivement du GaN situé à l'intérieur des puits quantiques et non de la couche tampon d'AlN ou du substrat saphir.

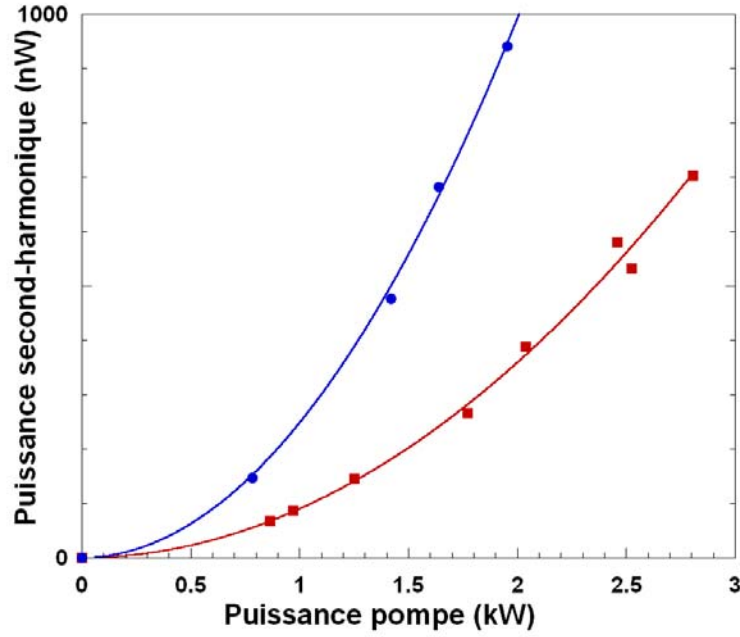


Fig. 2.9 : Evolution du signal de génération de second harmonique en fonction de la puissance incidente : les cercles bleus représentent les points expérimentaux mesurés sur l'échantillon de $3,5 \mu\text{m}$ d'épaisseur de GaN massif tandis que les carrés rouges représentent ceux mesurés sur l'échantillon à puits quantiques. Les lignes sont des ajustements quadratiques.

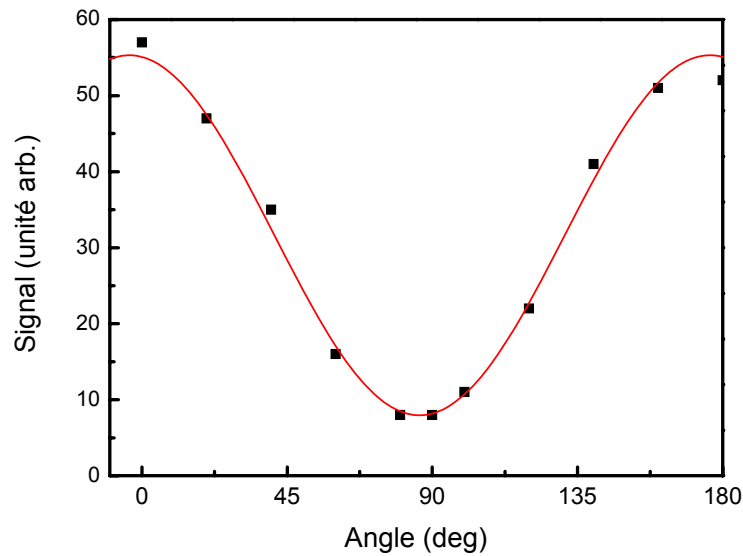


Fig. 2.9 : Evolution du signal de second harmonique en fonction de l'angle entre le faisceau pompe et l'échantillon (carrés noirs). La courbe rouge est un ajustement en $A\sin^2(Bx)$.

Sur la figure 2.10 est tracée la quantité de signal généré dans l'échantillon à puits quantiques (courbe rouge) et l'échantillon de référence GaN massif (courbe bleue), en fonction de la longueur d'onde pompe. Ce spectre est superposé à l'absorption intersousbande e_1e_2 mesurée à l'incidence de Brewster. Cette quantité, $P_{2\omega}/L^2P_\omega^2$, est proportionnelle au module carré de la susceptibilité non linéaire d'ordre deux de second harmonique. On remarque facilement sur cette figure, la présence d'une résonance intense en fonction de la longueur d'onde pompe. L'efficacité de conversion est maximum à 2 μm de longueur d'onde. La largeur de raie de ce pic résonant est de 18 meV ce qui correspond à une réduction d'un facteur 2,33 de la largeur de raie d'absorption intersousbande e_1e_2 du puits quantique de 10 monocouches (42 meV). Cette valeur est très voisine de la valeur théorique de 2,39 qui correspond au facteur d'élargissement du produit de deux Lorentziennes de même élargissement, à la double résonance exacte [Ros91]. En effet, si on prend deux Lorentziennes L_1 et L_2 , leur produit s'écrit comme suit :

$$L_1 = \frac{1}{(\omega - \Omega_{12})^2 + \Gamma^2}, \quad L_2 = \frac{1}{(2\omega - 2\Omega_{12})^2 + \Gamma^2}$$

$$L_1L_2 = \frac{1}{[(\omega - \Omega_{12})^2 + \Gamma^2][(2\omega - 2\Omega_{12})^2 + \Gamma^2]}$$

L'élargissement Δ de $L_1 \times L_2$ est par rapport à l'élargissement Γ de L_i :

$$\Delta = \sqrt{\frac{\sqrt{41} - 5}{8}} \times \Gamma \approx \frac{1}{2,3877944} \times \Gamma$$

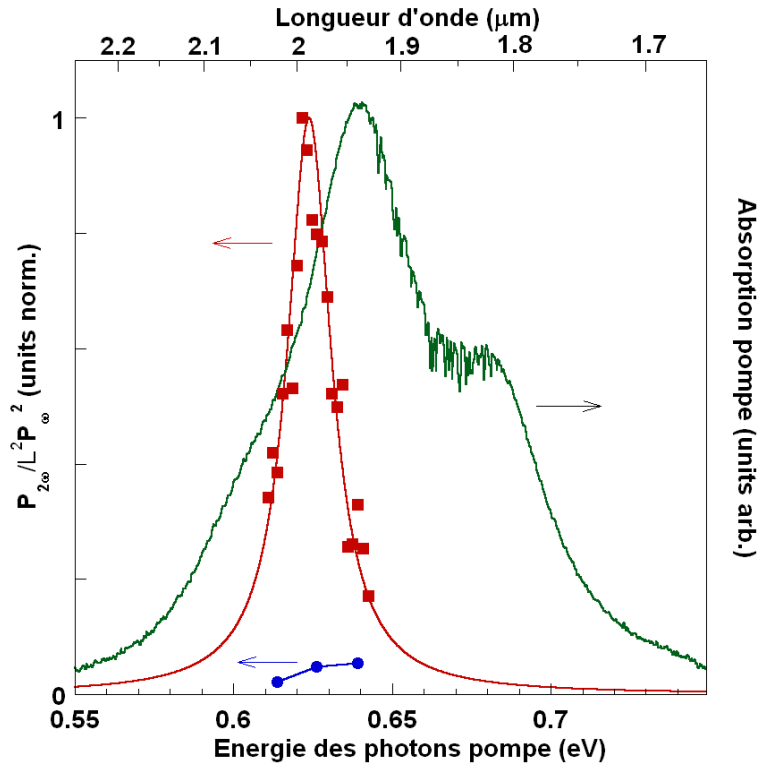


Fig. 2.10 : Evolution du signal de second harmonique en fonction de la longueur d'onde pompe superposé à l'absorption intersousbande e_1e_2 (courbe verte). La courbe rouge correspond à l'échantillon à puits quantiques tandis que la courbe bleue à l'échantillon de GaN de référence.

On observe également sur cette figure 2.10 un décalage de 17 meV entre le pic de résonance de génération de second harmonique et le pic d'absorption intersousbande e_1e_2 . Ce décalage est plus compréhensible sur la figure 2.11. Sur cette figure sont représentés les spectres de génération de second harmonique, d'absorption intersousbande e_1e_2 en fonction de l'énergie $\hbar\omega$, mais aussi d'absorption e_1e_3 en fonction de l'énergie $2\times\hbar\omega$. On remarque que la résonance de la génération de second harmonique se situe dans la largeur de raie homogène de l'absorption e_1e_2 des puits quantiques qui ont une épaisseur de 9 monocouches. Puisque le pic de génération de second harmonique est très étroit (18 meV), les conditions de double résonance sont satisfaites. Ainsi, on peut penser que l'absorption homogène e_1e_3 des puits de 9 monocouches d'épaisseur se situe dans l'ajustement Lorentzien à haute énergie (1,28 eV) possédant une grande largeur à mi-hauteur (170 meV).

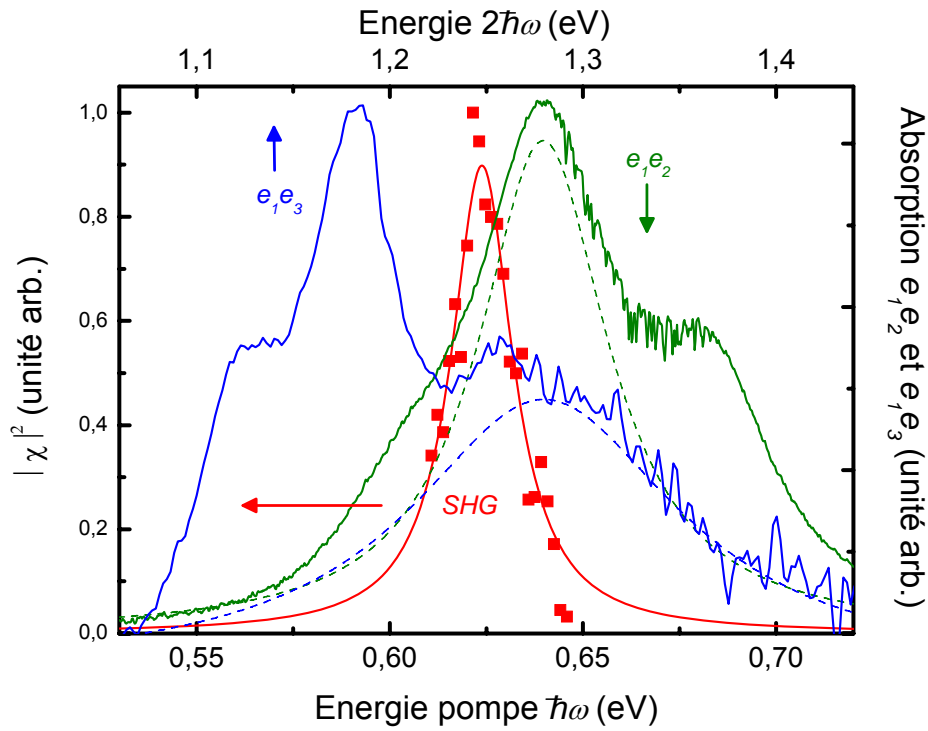


Fig. 2.11 : Spectre du signal de second harmonique (courbe rouge, échelle du haut) en fonction de la longueur d'onde pompe superposé à l'absorption intersousbande e_1e_2 (courbe verte, échelle du bas) et e_1e_3 (courbe bleue, échelle du haut). En traits pointillés est représentée la décomposition Lorentzienne des absorptions e_1e_2 et e_1e_3 correspondant aux puits de 9 monocouches.

En utilisant la formule suivante de propagation d'onde dans les puits quantiques [Ros91], [Sir91] :

$$P(2\omega) = 2\mu_0^{3/2}\epsilon_0^{1/2}\frac{\omega^2}{n^3S}|\chi_{2\omega}^{(2)}|^2L^2\sin^4(r)\tan^2(r)T(\omega)T(2\omega)^{1/2}P^2(\omega)$$

on déduit des mesures de puissance à l'incidence de Brewster en polarisation TM la susceptibilité non linéaire d'ordre deux : n est l'indice optique, S la surface de l'onde pompe sur l'échantillon, r est l'angle entre le faisceau et l'échantillon et $T(\omega)$ et $T(2\omega)$ sont les transmissions des ondes aux pulsations ω et 2ω à travers l'échantillon.

χ_{zzz} est estimé à 114 pm/V pour l'échantillon à puits quantiques. Cette valeur est 5 fois supérieure aux valeurs de χ_{zzz} publiées dans la littérature pour le doublage de fréquence d'un laser YAG à $\lambda=532$ nm dans du GaN massif [Lar06].

Avec les longueurs de dipôles calculées dans notre modèle (0,485 ; 0,673 et 0,011 nm pour les transitions e_1e_2 , e_2e_3 et e_1e_3 respectivement) la valeur de la susceptibilité non linéaire d'ordre deux attendue est 135 pm/V. Cette valeur est très proche de la mesure expérimentale : $\chi_{zzz}^{(2)}=114$ pm/V.

Pour l'échantillon de 3,5 μm de GaN de référence, la formule suivante [Kra00] nous permet de calculer le d effectif :

$$I_{2\omega}^{m-p}(2\omega) \propto CI_{\omega}^2 (2\pi L / \lambda)^2 (d_{\text{eff}}^{m-p})^2 \left(\frac{\sin(\Psi)}{\Psi} \right)^2.$$

Le χ_{eff} mesuré expérimentalement est de 28 pm/V. Cette dernière valeur comprend les trois coefficients d_{31} , d_{15} et d_{33} d'après la formule [Kra00] :

$$d_{\text{eff}}^{p-p} = d_{15} \cos \theta_{2\omega} \sin 2\theta_{\omega} + d_{31} \cos^2(\theta_{\omega}) \sin \theta_{2\omega} + d_{33} \sin^2(\theta_{\omega}) \sin \theta_{2\omega}.$$

Bien que ce ne soit pas l'objectif de notre étude, des mesures angulaires plus précises et en fonction des différentes polarisations auraient permis de déterminer ces trois coefficients.

Ramené à la même longueur d'interaction, l'efficacité de conversion est 16 fois supérieure dans l'échantillon à puits quantiques que dans l'échantillon de GaN massif de référence. Cependant, dans les études menées au début des années 90 dans les puits quantiques GaAs/AlGaAs, les conversions étaient nettement supérieures (la susceptibilité non-linéaire a été amplifiée par un facteur 1900 [Bou90]). Pourquoi dans notre cas l'exaltation de la génération de second harmonique n'est pas plus grande, et comment l'augmenter davantage ? Bien que le champ électrique interne brise naturellement la symétrie du profil de potentiel dans les puits quantiques GaN/AlN, la longueur du dipôle de la transition e_1e_3 reste très faible ($z_{13}=0,011$ nm tandis que $z_{12}=0,485$ nm) et réduit considérablement le produit des trois dipôles. De plus, pour atteindre les courtes longueurs d'onde, des puits quantiques étroits sont requis. De ce fait, les longueurs des dipôles restent petites : $|\mu_{12}| = e \times |z_{12}| \propto L_p$.

Si l'on examine la formule de la susceptibilité non-linéaire, on remarque que :

$$\chi_{zzz}^{(2\omega)} = \frac{e^3 n_{3D}}{\epsilon_0 \hbar^2} \frac{z_{12} z_{23} z_{31}}{(\omega - \Omega_{12} - i\Gamma_{12})(2\omega - \Omega_{31} - i\Gamma_{31})}$$

la susceptibilité non-linéaire d'ordre deux est proportionnelle à la concentration d'électrons par unité de volume (n_{3D}). On peut donc facilement augmenter l'efficacité de conversion d'un ordre de grandeur en dopant davantage la structure, à $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ par exemple. Cependant, il faut prendre garde à deux effets néfastes. La susceptibilité non-linéaire est inversement proportionnelle au produit des largeurs de raie des transitions mises en jeu. Ainsi, en dopant davantage les puits quantiques, les interactions entre les électrons et les impuretés augmentent, et la largeur spectrale des résonances est plus élevée. La largeur totale à mi-hauteur passe de 40 à plus de 60 meV pour les échantillons fortement dopés. On pourrait néanmoins utiliser un dopage modulé dans les barrières pour contrer cet effet. Le second effet est plus subtil. En incorporant davantage de dopants, les charges positives vont écranter de plus en plus le champ interne dans la structure. Par conséquent, la longueur du dipôle de la transition e_1e_3 va diminuer ce qui va réduire d'autant le $\chi^{(2)}$ et l'efficacité de conversion.

La structure idéale serait une structure à puits quantiques couplés où le produit des trois longueurs de dipôle serait maximisé comme l'a réalisé Sirtori *et al.* [Sir91] dans des puits quantiques InGaAs/AlInAs. Ce type de structure est beaucoup plus flexible car il possède davantage de degrés de liberté dans la conception. En insérant la structure active dans un

guide d'onde aux deux longueurs d'onde (fondamentale et SHG), nous pourrions bénéficier d'une grande longueur d'interaction comme l'a réalisé Vodopyanov *et al.* [Vodo98]. Finalement, en renversant la polarité du matériau il serait possible d'obtenir l'accord de phase [Cho03], ainsi, le rendement de conversion pourrait atteindre plusieurs pourcents.

En conclusion, j'ai mis en évidence dans ce chapitre l'amplification résonante de génération de second harmonique dans les puits quantiques GaN/AlN. Une valeur de la susceptibilité non-linéaire χ_{zzz} est mesurée à 114 pm/V, soit cinq fois plus grande que dans le GaN massif. L'efficacité de conversion pourrait être améliorée en utilisant les puits couplés comme milieu actif et la configuration guide d'onde pour augmenter la longueur d'interaction.

Néanmoins, le phénomène inverse serait aussi intéressant à étudier. Basée sur le même principe, la fluorescence paramétrique est utile pour un grand nombre d'applications. On peut imaginer par exemple une structure à puits quantiques couplés GaN/AlN absorbant à la longueur d'onde d'un laser YAG ($\lambda=1,064 \mu\text{m}$) et émettant par oscillation paramétrique un spectre accordable sur tout le domaine des longueurs d'onde des télécommunications.

Chapitre 3

Emission intersousbande dans les puits quantiques

GaN/AlN

L'émission intersousbande est un phénomène qui a été prédit dès le début des années soixante-dix, suite aux premiers travaux sur les superréseaux. Très vite après le travail pionnier de Esaki et Tsu [Esa70] sur la conductivité négative dans les superréseaux, Kazarinov et Suris [Kaz71] ont proposé l'utilisation des superréseaux semi-conducteurs sous champ électrique pour l'amplification d'une onde électromagnétique. Plusieurs auteurs ont ensuite proposé diverses structures afin d'atteindre l'inversion de population [Yuh87], [Liu88], [Bor89], [Loe91], [Kas91], [Hu91], [Kor94]. Il a fallu attendre la fin des années quatre-vingt pour une première confirmation expérimentale. Les premières expériences de Manfred Helm ont permis la mise en évidence de l'émission spontanée dans le lointain infrarouge à $\lambda \sim 60 \mu\text{m}$ ($\sim 20 \text{ meV}$) [Hel88], [Hel89]. En 1994 Jérôme Faist *et al.* [Fai94] obtiennent la première émission laser intersousbande sous pompage électrique dans une structure à puits quantiques InGaAs/AlInAs sur InP. C'est le début de l'ère des lasers à cascade quantique. En 1995, François Julien propose l'émission stimulée intersousbande dans des puits quantiques couplés sous pompage optique [Jul95], puis la même année, met en évidence expérimentalement l'émission spontanée dans ce système [Mou95], [Lav95]. En 1997, son équipe réalise l'inversion de population en obtenant l'effet laser à $\lambda \sim 15,5 \mu\text{m}$ sous pompage optique via un laser CO₂ à $\lambda \sim 10 \mu\text{m}$ [Ogl97], [Ogl99], [Ogl00]. Ce composant est appelé le laser à fontaine quantique.

Aujourd'hui, ces sources lasers intersousbandes, et principalement les lasers à cascade quantique, sont performants et couvrent plus de deux décades en longueur d'onde (3-300 μm), de l'infrarouge jusqu'au THz. Les recherches actuelles visent à élargir le domaine spectral de

fonctionnement au-delà des deux frontières actuelles qui sont le proche infrarouge et le lointain infrarouge (THz). Du côté lointain infrarouge, le record est détenu aujourd'hui par Scalari *et al.* [Sca07] à l'université de Neuchâtel. Un laser à cascade quantique GaAs/AlGaAs sur substrat GaAs à très faible concentration d'aluminium dans les barrières (10 %), émet sous champ magnétique intense (11 Teslas) et à basse température, une onde électromagnétique à 830 GHz, soit $\lambda \sim 360 \mu\text{m}$. Cet axe de recherche trouve de nombreuses applications comme l'imagerie (un grand nombre de milieux sont transparents à ces longueurs d'onde), la spectroscopie (rotation des molécules), l'astronomie, la sécurité... Les lasers à cascade quantique sont également en passe de supplanter les composants microélectroniques pour la génération d'ondes électromagnétiques dans le domaine 100 GHz-1 THz.

De l'autre côté du spectre, la motivation est de repousser la longueur d'onde d'émission vers les courtes longueurs d'onde pour couvrir la gamme 3-5 μm de transparence de l'atmosphère, mais aussi pour atteindre les longueurs d'onde des télécommunications (1,3-1,55 μm), correspondant au minimum des pertes et de dispersion des fibres optiques. A $\lambda > 2 \mu\text{m}$, les diodes lasers reposant sur la relaxation radiative interbande deviennent inefficaces à cause principalement des processus de recombinaison non-radiative de type Auger. Elles ne fonctionnent qu'à température cryogénique et le rendement d'émission se dégrade rapidement lorsque la longueur d'onde augmente. Les lasers unipolaires intersousbandes offrent de meilleures perspectives dans cette gamme de longueurs d'onde. En 1998, Faist *et al.* [Fai98] obtiennent l'émission laser à $\lambda \sim 3,4 \mu\text{m}$ avec une structure à cascade quantique InGaAs/AlInAs à contrainte compensée sur InP. Ce record longtemps inégalé, sera détrôné par les lasers à base d'antimoniure qui ont fait des progrès considérables en 2006 [Rev07], [Sem07], [Dev07]. Les lasers à cascade quantique InAs/AlSb sur substrat InAs présentent un alignement de bande de type II, et une masse effective très faible ($m^*_{\text{InAs}} = 0.023m_0$). L'équipe de Rolland Teissier à Montpellier a poussé l'émission des lasers à cascade quantique InAs/AlSb à $\lambda \sim 2.75 \mu\text{m}$ [Dev07b] et mis en évidence une émission intersousbande spontanée à $\lambda \sim 2,55 \mu\text{m}$ [Bar05]. Dans ces structures, la discontinuité de potentiel en bande de conduction est de 2,1 eV ce qui permet d'envisager des émissions laser à encore plus courte longueur d'onde. Néanmoins, l'obtention de plus courtes longueurs d'onde d'émission dans ces matériaux antimoniure est limitée par deux facteurs majeurs. A cause de l'alignement de bande de type II, l'émission intersousbande est réabsorbée par le gap interbande (hh_1e_1) de l'hétérostructure. La deuxième difficulté dans les antimoniures (et les arséniures), est la recombinaison non-radiative liée aux vallées latérales (X, L). Par exemple, dans le système

InAs/AlSb, la vallée L du puits InAs se situe seulement à $\sim 0,75$ eV au dessus du point Γ ce qui réduit la discontinuité de potentiel en bande de conduction effective de 2,1 eV à 0,75 eV.

Il est donc évident que pour diminuer encore plus la longueur d'onde d'émission intersousbande ($\lambda < 3 \mu\text{m}$), il faut utiliser des hétérostructures semiconductrices possédant une grande discontinuité de potentiel entre les puits et les barrières et des vallées latérales à haute énergie. Les hétérostructures GaN/AlN sont d'excellents candidats. Ces deux semi-conducteurs ont des gaps directs. Leur discontinuité de potentiel en bande de conduction est grande (1,75 eV). Enfin, les vallées latérales se situent à haute énergie (> 2 eV au dessus du point Γ pour le GaN).

Dans ce chapitre, je mets en évidence l'émission radiative entre niveaux confinés au sein d'une même bande (bande de conduction), dans une hétérostructure à puits quantiques simples GaN/AlN. Deux approches ont été poursuivies, la première utilise un pompage optique interbande et la seconde repose sur un pompage optique intersousbande résonant. Seule cette seconde approche s'avère efficace pour des raisons que j'explique par la suite. Elle conduit à l'observation d'une émission intersousbande à $\lambda \sim 2,13 \mu\text{m}$, ce qui est la plus courte longueur d'onde d'émission intersousbande jamais rapportée à ce jour. Néanmoins, la structure à puits quantiques simples ne permet pas de réaliser l'inversion de population, et donc, d'atteindre l'effet laser. Dans la troisième partie, je montre que les structures à puits quantiques couplés devraient permettre d'atteindre l'inversion de population et je présente les calculs de gain dans ces structures.

3.1) Première tentative d'observation de l'émission intersousbande sous pompage interbande

Les premières expériences ont porté sur l'observation d'une émission intersousbande sous pompage optique interbande. Le principe est d'exciter les électrons de la bande de valence vers le haut de la bande de conduction et d'observer la relaxation radiative entre les niveaux confinés de la bande de conduction dans un puits quantique GaN/AlN de 10 monocouches d'épaisseur.

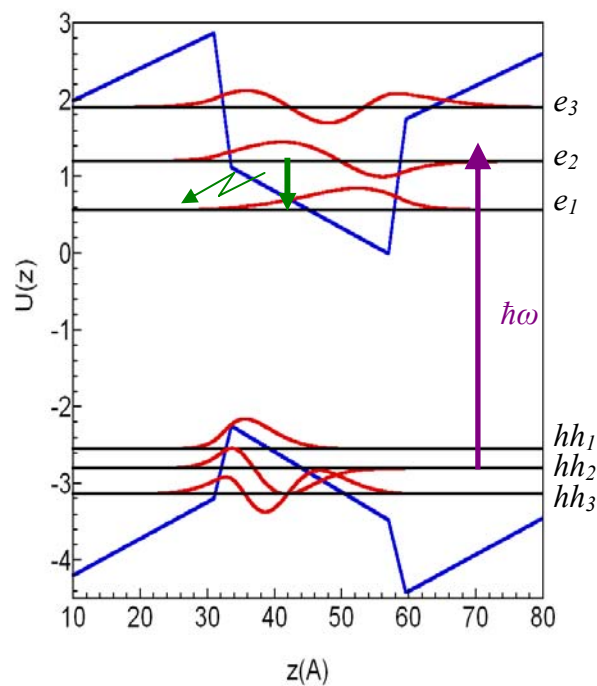


Fig. 3.1 : Profil de bande de conduction et de valence d'une structure à puits quantique GaN/AlN de 10 monocouches d'épaisseur.

Cette approche présente plusieurs avantages. Le premier avantage est que les transitions optiques interbandes (hh_m-e_n et lh_m-e_n) ont des règles de sélection pour la polarisation beaucoup moins contraignantes que celles des transitions intersousbandes. Ainsi, il est possible d'exciter les électrons confinés en bande de valence (hh_1, hh_2, \dots) vers les états confinés en bande de conduction (e_1, e_2, \dots) sous un pompage optique à incidence normale.

L'absorbance interbande entre le niveau m de la bande de valence et le niveau n de la bande de conduction est donnée par la formule suivante :

$$\alpha_{hh_m \rightarrow e_n}(\omega) = \frac{\pi e^2 E_p}{ncm_0 \omega L \hbar^2} \frac{m_n M_m}{m_n + M_m} |\langle \chi_m | \chi_n \rangle|^2 \times Y[E_G + e_n + \hbar h_m - \hbar \omega]$$

où m_n est la masse effective de l'électron dans la sous-bande de conduction n , M_m la masse effective des trous dans la sous-bande de valence m , e la charge élémentaire, n l'indice optique, c la vitesse de la lumière, m_0 la masse de l'électron, L la longueur d'interaction et $\hbar \omega$ l'énergie des photons. $Y(x)$ est la fonction de Heaviside ($Y(x)=0$ pour $x<0$ et 1 partout ailleurs). L'élément de matrice $|\langle \chi_m | \chi_n \rangle|$ représente le recouvrement des fonctions d'ondes des états confinés m et n . Dans les puits quantiques simples et symétriques, ce terme impose que seules les transitions faisant appel à des états de même parité sont possibles. Cependant, dans les puits quantiques GaN/AlN, la symétrie est brisée grâce au champ électrique interne. Ainsi, toutes les transitions optiques sont permises, mais avec des probabilités différentes. Le coefficient d'absorption $\alpha_{hh_m \rightarrow e_n}(\omega)$ a un profil en marche d'escalier comme représenté sur le graphe 3.2.

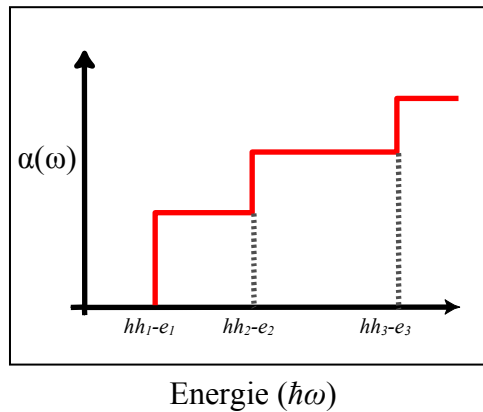


Fig. 3.2 : Evolution de l'absorbance interbande en fonction de l'énergie.

Ce profil montre que le pompage interbande ne nécessite pas d'être résonant. Il est possible d'exciter les électrons de la bande de valence vers la bande de conduction sous la condition que l'énergie $\hbar \omega$ du laser d'excitation soit supérieure à l'énergie de la transition à $k=0$.

L'utilisation d'une structure à puits quantique large pour observer l'émission intersousbande sous pompage optique interbande n'est pas anodine. L'idée est en fait de profiter de l'effet

Stark quantique confiné pour pomper préférentiellement la transition hh_2-e_2 plutôt que la transition hh_1-e_1 grâce au mauvais recouvrement des fonctions d'onde de cette dernière. De plus, en calculant le recouvrement des fonctions d'onde mises en jeu, on s'aperçoit que les transitions normalement interdites (hh_2-e_1) ont des probabilités non négligeables. Le recouvrement $|\langle \chi_m | \chi_n \rangle|^2$ de ces dernières dans un puits quantique GaN/AlN de 10 monocouches d'épaisseur est illustré dans le tableau suivant :

Transitions	Recouvrements $ \langle \chi_m \chi_n \rangle ^2$	Somme des facteurs de recouvrements
hh_1-e_1	0,0845	~ 0,36
hh_2-e_1	0,278	
hh_1-e_2	0,504	~ 0,63
hh_2-e_2	0,127	

Finalement, dans notre système à puits quantique large, on pompe deux fois plus efficacement la deuxième sousbande que la première.

3.1.1) Structure de l'échantillon E720

Les expériences visant à observer l'émission intersousbande sous pompage optique interbande ont été effectuées sur l'échantillon E720 dont la structure est illustrée ci-dessous :

AlN	10 nm	} ×20
GaN	2,6 nm	
AlN	3 nm	
GaN	100 nm	
AlN	1 μm	
Saphir		

La structure active de l'échantillon contient une série de 20 périodes de puits quantiques GaN de 10 monocouches (2,6 nm), séparé par des barrières d'AlN de 3 nm. Les puits quantiques sont non intentionnellement dopés. Une couche tampon de 100 nm de GaN est épitaxiée pour démarrer la croissance.

3.1.2) Spectroscopie

Dans un premier temps, j'ai caractérisé l'échantillon en spectroscopie de photoluminescence UV pour sonder la transition fondamentale interbande hh_1-e_1 .

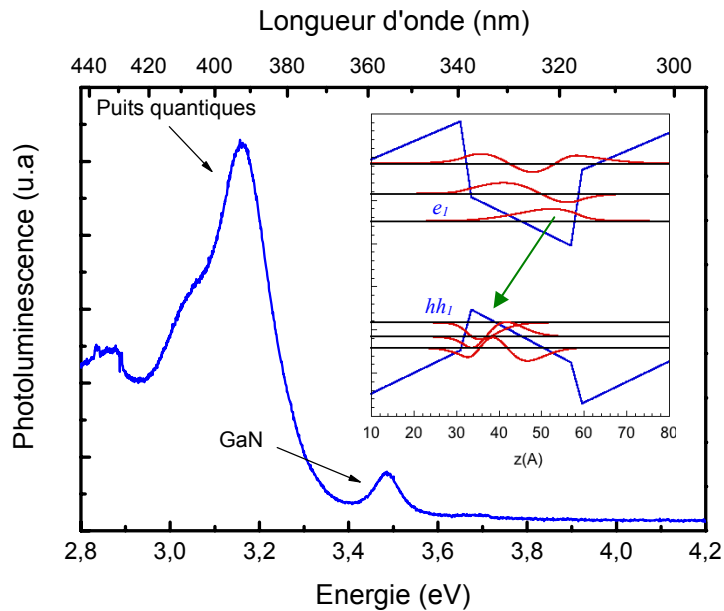


Fig. 3.3 : Spectre de photoluminescence de l'échantillon E720.

Le spectre de photoluminescence de l'échantillon E720 est représenté sur la figure 3.3. L'insert montre le profil de potentiel calculé de la structure. Le spectre présente deux pics à 3,48 eV et 3,16 eV. Le premier pic est attribué à la luminescence du GaN massif de 100 nm d'épaisseur dans l'échantillon. Le deuxième pic provient de la transition hh_1-e_1 des puits quantiques de 10 monocouches d'épaisseur. On remarque sur ce dernier pic un épaulement à

basse énergie, certainement lié à la fluctuation d'épaisseur des puits quantiques. On observe sur ce spectre la signature de l'effet Stark quantique confiné puisque l'émission des puits a lieu à plus basse énergie que le gap du GaN.

Puisque l'échantillon est non intentionnellement dopé et qu'il contient seulement vingt puits quantiques, l'absorption intersousbande e_1e_2 est délicate à mesurer directement. J'ai donc utilisé la technique différentielle de spectroscopie d'absorption photoinduite dont la sensibilité est très élevée. Cette technique consiste à exciter optiquement les électrons de la bande de valence vers la bande de conduction et mesurer la variation de transmission sous l'effet du photo-pompage interbande.

La figure 3.4 représente le spectre d'absorption photoinduite de l'échantillon E720. La très forte résonance piquée à 647 meV (1,92 μm) est attribuée à la transition e_1e_2 . La largeur totale à mi-hauteur est de 65 meV. Sur ce spectre, on ne distingue pas la transition e_1e_3 à haute énergie car l'absorption liée à cette transition est trop faible.

Pour estimer l'énergie du laser pompe requise pour exciter la transition hh_2-e_2 , il faudrait également connaître aussi l'énergie hh_1-hh_2 . La technique d'absorption photoinduite permet *a priori* de sonder les résonances intersousbandes des états confinés en bande de valence (hh_1-hh_2). Néanmoins, la masse effective des trous dans ces matériaux étant très lourde ($m_h \sim 1,1 m_0$) [Kal03], ces transitions sont repoussées à grandes longueurs d'onde. Ainsi dans les puits quantiques de 10 monocouches d'épaisseur, la transition hh_1-hh_2 est attendue vers 250 meV. Il est donc difficile de l'observer dans les puits quantiques GaN/AlN sur substrat saphir car ce dernier est fortement absorbant aux longueurs d'onde supérieure à 5 μm (~ 250 meV). De plus, cette masse effective très lourde diminue la force d'oscillateur des transitions intersousbandes en bande de valence. Nous avons donc utilisé une estimation théorique pour l'énergie hh_1-hh_2 (250 meV).

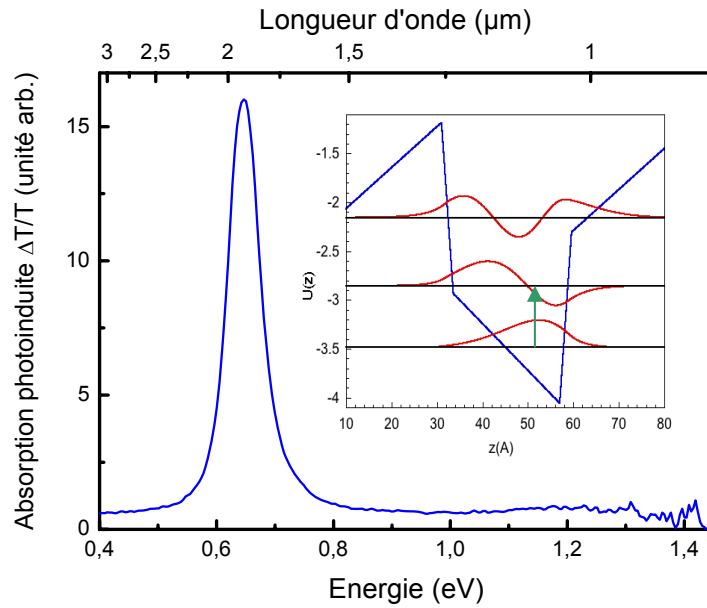


Fig. 3.4 : Spectre d'absorption intersousbande e_1e_2 photoinduite sous pompage optique UV interbande.

Les expériences donnent $hh_1-e_1=3,16$ eV et $e_1e_2=0,645$ eV. De ces résultats, nous estimons l'énergie de la transition hh_2-e_2 à 4,055 eV (306 nm). Ainsi, pour pomper optiquement cette transition, il faut utiliser un laser dont la longueur d'onde est inférieure ou égale à 306 nm.

3.1.3) Pompage optique interbande

L'expérience consiste à pomper optiquement l'échantillon à incidence normale avec un laser UV et à observer un signal optique infrarouge autour de 2 μm de longueur d'onde. Le laser utilisé est un laser Ar^+ doublé à 244 nm dont la puissance de sortie est de 1 Watt en continu. L'émission récoltée par la tranche de l'échantillon est dirigée vers le port d'entrée d'un spectromètre à transformée de Fourier fonctionnant en mode pas à pas. La détection s'effectue grâce à un détecteur InAs refroidi à la température de l'azote liquide (77 K) dont la longueur d'onde de coupure est de 3,1 μm . Pour augmenter la sensibilité de l'expérience, une détection synchrone est utilisée à la fréquence de modulation du laser haché mécaniquement.

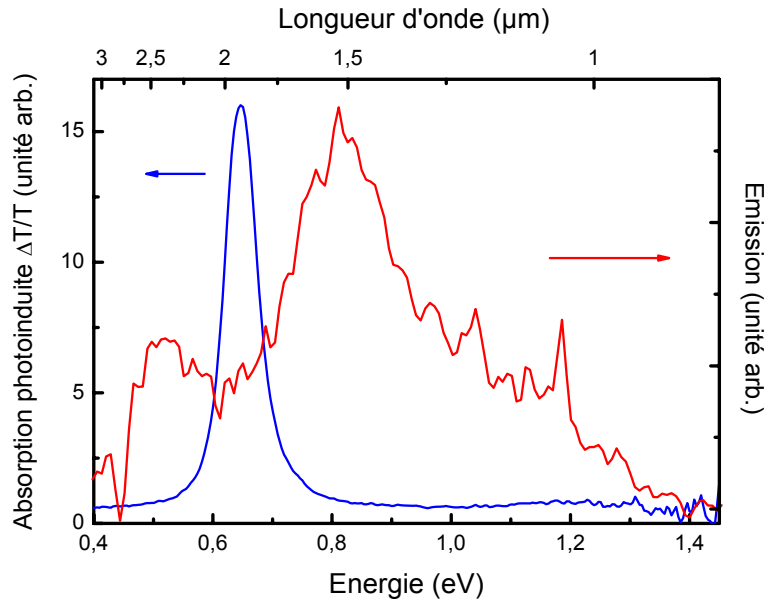


Fig. 3.5 : Spectre (courbe rouge) d'émission proche infrarouge sous pompage optique interbande UV superposé au spectre d'absorption photoinduite (courbe bleue).

La fig 3.5 montre l'émission proche infrarouge à température ambiante (300 K) de l'échantillon E720 (courbe rouge) récoltée par la tranche sous pompage optique UV à 244 nm. La figure montre aussi l'absorption photoinduite e_1e_2 des puits quantiques (courbe bleue). Le spectre d'émission piqué à 1,53 μm est extrêmement large et non polarisé (rappelons que les transitions intersousbandes sont toujours polarisées suivant l'axe de croissance (TM)). On voit également sur ce spectre que cette émission très large est réabsorbée dans le plan des couches puisqu'il y a un trou dans le spectre d'émission à l'endroit où se situe la résonance intersousbande. De toute évidence, cette émission non polarisée n'est pas l'émission intersousbande des puits quantiques. Elle est probablement liée à la recombinaison radiative des défauts profonds se situant dans le gap des semiconducteurs AlN et GaN, activés par le laser UV.

L'estimation théorique qui suit montre que les temps caractéristiques d'émission ISB e_2e_1 et d'émission des défauts profonds aussi bien que les puissances émises sont radicalement différents. Si le laser de pompe est complètement absorbé, le rendement de luminescence est donné par la formule suivante :

$$\eta = \frac{\lambda_p}{\lambda_e} \frac{\tau_{21}^{nr}}{\tau_{21}^{rad}}.$$

Le temps de relaxation non-radiative intersousbande a été mesuré par plusieurs auteurs [Heb02], [Iiz00], [Ham04], [Ham05], [Wan05], [Wan06] dans les puits quantiques GaN/AlN. Il est estimé entre 150 et 300 fs. Le temps de relaxation radiative dans les puits quantiques est donné par la formule [Ber94] :

$$\frac{1}{\tau_{21}^{rad}} = \frac{2\pi e^2 n_{opt} f_{21}}{3m_0 \epsilon_0 c \lambda_{21}^2} = \frac{1}{27 ns}$$

où f_{21} représente la force d'oscillateur de la transition $2 \rightarrow 1$. Ainsi, pour une puissance pompe de 1 Watt à $\lambda_p=244$ nm, la puissance interne émise à $\lambda_e \sim 2$ μ m des puits quantiques est estimée à 0,67 μ Watt/Watt de pompe. Ce rendement interne correspond à l'émission générée à l'intérieur de l'échantillon. D'après les mesures présentées section 3.2.4), l'efficacité de notre système optique pour récolter la lumière émise est de seulement $\sim 10^{-5}$. Le rendement externe est donc de quelques pWatt/Watt. Or, l'émission générée par les défauts observée durant l'expérience est de l'ordre de quelques nWatt, ce qui masque complètement l'émission intersousbande attendue des puits quantiques.

Comment s'affranchir de l'émission de ces défauts dont la puissance est supérieure à celle des puits quantiques ? Augmenter le nombre de puits quantiques n'apporte rien puisque le nombre de défauts est proportionnel à l'épaisseur de l'échantillon. Cependant, une mesure d'émission résolue temporellement pourrait apporter une solution. En effet, le temps de relaxation radiative intersousbande dans les puits quantiques GaN/AlN est estimé à ~ 27 ns. Le temps de recombinaison des défauts est plus long ($\sim \mu$ s). On peut donc espérer observer deux émissions séparées dans le temps. Pour cette expérience, il faudrait utiliser un laser YAG pulsé, quadruplé à $\lambda=266$ nm de longueur d'onde dont la durée d'impulsion serait de l'ordre de 10 ns avec une puissance crête de plusieurs kiloWatt.

Une autre alternative pour s'affranchir de l'émission des défauts profonds serait de pomper l'échantillon à beaucoup plus basse énergie. C'est pourquoi nous nous sommes orientés vers le pompage optique intersousbande résonant.

3.2) Mise en évidence d'émission sous pompage intersousbande résonant

L'idée est de concevoir une structure simple et robuste permettant d'observer l'émission ISB sous pompage optique ISB. Le choix s'est porté sur des puits quantiques GaN/AlN d'épaisseur suffisante pour présenter trois niveaux d'énergie en bande de conduction. L'asymétrie du potentiel induite par le champ interne dans le GaN rend possible l'excitation résonante des électrons du niveau fondamental e_1 vers le troisième niveau e_3 . L'objectif est d'observer la relaxation radiative du niveau e_3 vers le niveau e_2 sous pompage optique résonant avec l'absorption e_1e_3 .

L'épaisseur des puits quantiques GaN/AlN a été choisie égale à 7 monocouches. Cette épaisseur critique correspond d'après les calculs, à l'épaisseur minimale où le troisième niveau reste confiné dans le puits quantique. Le profil de potentiel calculé est représenté sur la figure suivante :

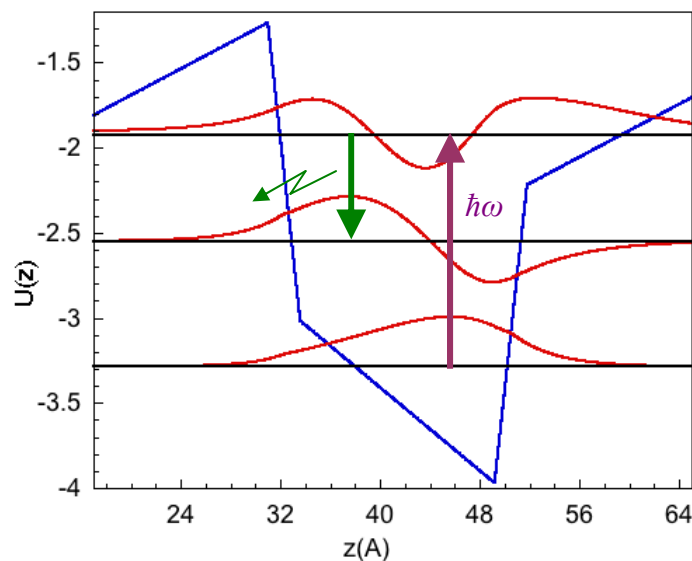
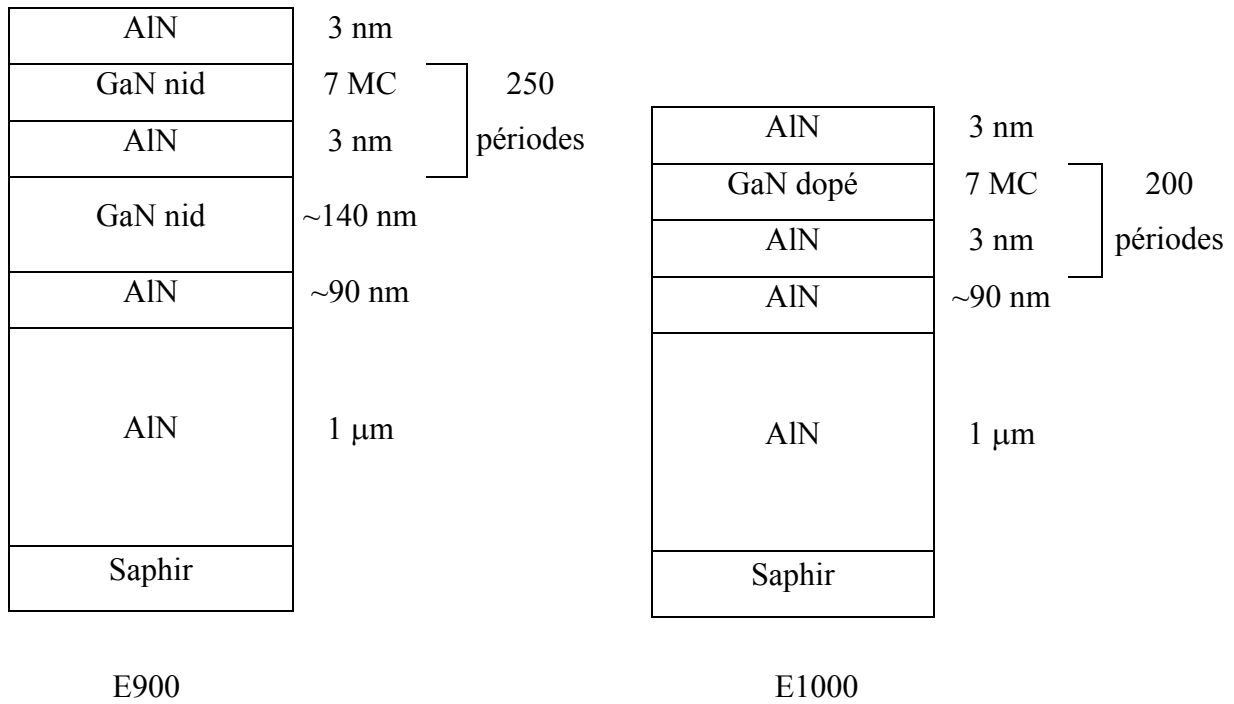


Fig. 3.6 : Profil de potentiel en bande de conduction d'un puits quantique GaN/AlN de 7 monocouches d'épaisseur.

Le calcul donne les longueurs de dipôles suivantes : $z_{12}=0,41$ nm, $z_{23}=0,53$ nm, $z_{13}=0,037$ nm. On remarque que la longueur du dipôle z_{13} est faible ce qui n'est pas étonnant puisque la transition e_1e_3 n'est permise que grâce à la dissymétrie du profil de potentiel.

3.2.1) Structure des échantillons E900 et E1000

Deux échantillons (E900 et E1000) destinés aux mesures d'émission ISB ont été fabriqués. Leur structure est illustrée ci-dessous :



Les échantillons ont été épitaxiés sur le quasi-substrat AlN-sur-saphir. La structure active de l'échantillon E900 (E1000) contient une série de 250 (200) périodes de puits quantiques GaN de 7 monocouches (1,82 nm), séparés par des barrières d'AlN de 3 nm. Les puits quantiques sont non intentionnellement dopés dans l'échantillon E900, et la concentration électronique provient du dopage résiduel. L'échantillon E1000 est quant à lui dopé en incorporant du Silicium à $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dans les puits quantiques. Les échantillons sont conçus pour présenter trois niveaux confinés au sein de la bande de conduction.

3.2.2) *Spectroscopie*

J'ai étudié dans un premier temps les échantillons par spectroscopie à transformée de Fourier.

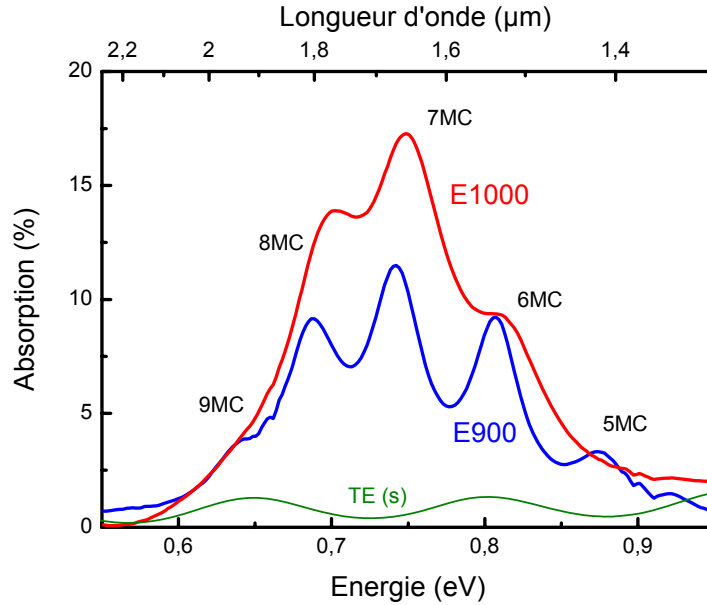


Fig. 3.7 : Spectres de l'absorption intersousbande e_1e_2 des échantillons E900 (courbe bleue) et E1000 (courbe rouge). La courbe verte correspond au spectre d'absorption de l'échantillon E1000 en polarisation TE.

La figure 3.7 montre les spectres d'absorptions intersousbandes des échantillons E900 (courbe bleue) et E1000 (courbe rouge), mesurés à l'incidence de Brewster en polarisation TM (p) à température ambiante. On observe sur ces spectres plusieurs pics qui correspondent à l'absorption intersousbande e_1e_2 de puits quantiques d'épaisseurs différentes. Le pic principal est à 742 et 750 meV pour les échantillons E900 et E1000, respectivement. Ces énergies correspondent à l'énergie d'absorption intersousbande e_1e_2 d'un puits de 7 monocouches d'épaisseur (le décalage est expliqué plus loin). On remarque que malgré un nombre inférieur de puits quantiques dans l'échantillon E1000 par rapport à l'échantillon E900 (200 et 250 périodes, respectivement), son intensité d'absorption est plus grande pour un seul passage à travers la couche active à l'incidence de Brewster : 17 % d'absorption pour le E1000 contre 12% pour le E900. Cette différence d'absorption est attendue puisque l'échantillon E1000 est dopé à $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ alors que le E900 est non intentionnellement dopé. A partir de ces amplitudes d'absorption mesurées et des longueurs de dipôle calculées, on estime la concentration électronique active dans les puits quantiques à $7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ($4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) pour

l'échantillon E1000 (E900). Comme illustré sur la figure 3.8, les spectres d'absorption ISB des deux échantillons peuvent être décomposés en somme de plusieurs Lorentziennes (voir section 1.4.1) chapitre I). Chaque Lorentzienne correspond à l'absorption ISB de puits quantiques dont l'épaisseur est égale à un nombre entier de monocouches (voir figure 3.8).

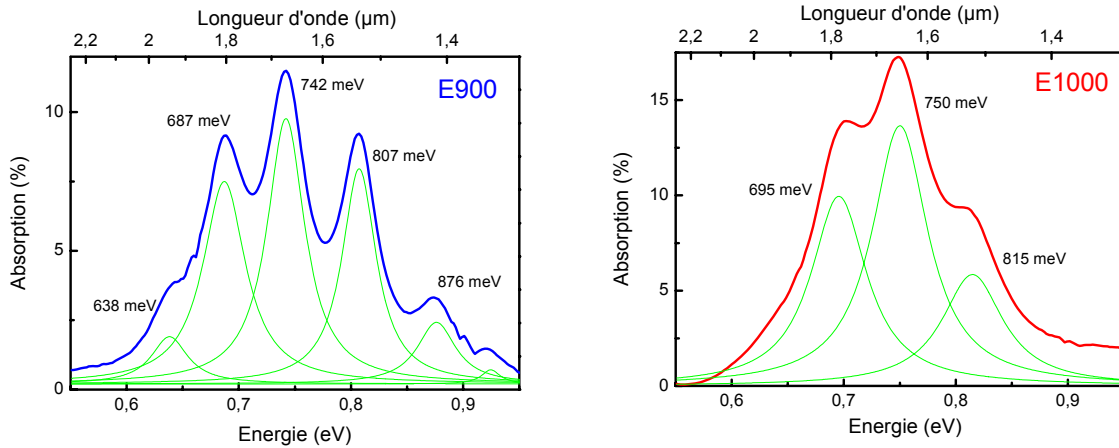


Fig. 3.8 : Décomposition Lorentzienne des pics d'absorption intersousbande e_1e_2 des deux échantillons E900 (courbe bleue) et E1000 (courbe rouge).

L'échantillon E1000 apparaît plus homogène que l'échantillon E900, en partie parce qu'il contient moins de périodes. En effet, la contribution des puits de 9 et 5 monocouches bien visible dans le spectre du E900 n'est pas présente dans celui du E1000. La largeur totale à mi-hauteur de chaque Lorentzienne est de 41 meV pour l'échantillon E900 ($\Delta E/E = 5,5\%$), et de 60 meV pour l'échantillon E1000 ($\Delta E/E = 8\%$). La largeur à mi-hauteur plus élevée pour l'échantillon E1000 est probablement due à la diffusion électron-impuretés dans cet échantillon fortement dopé. On peut aussi remarquer un léger décalage vers les hautes énergies (~ 8 meV) de chaque pic individuel d'absorption e_1e_2 dans l'échantillon E1000 par rapport à l'échantillon E900. Ceci peut s'expliquer par la plus grande densité de porteurs dans E1000 et la modification de l'énergie de la transition ISB due aux effets à n corps (essentiellement interaction d'échange), comme discuté dans [Tch06a].

Pour observer l'absorption de la transition e_1e_3 possédant une faible force d'oscillateur, j'ai utilisé la configuration en zigzag pour augmenter le nombre de passages dans la structure active. Sur la figure 3.9 est représenté le spectre d'absorption en guide multi-passage pour les deux échantillons (E900 et E1000). La lumière polarisée TM (p) subit 15 réflexions internes dans l'échantillon.

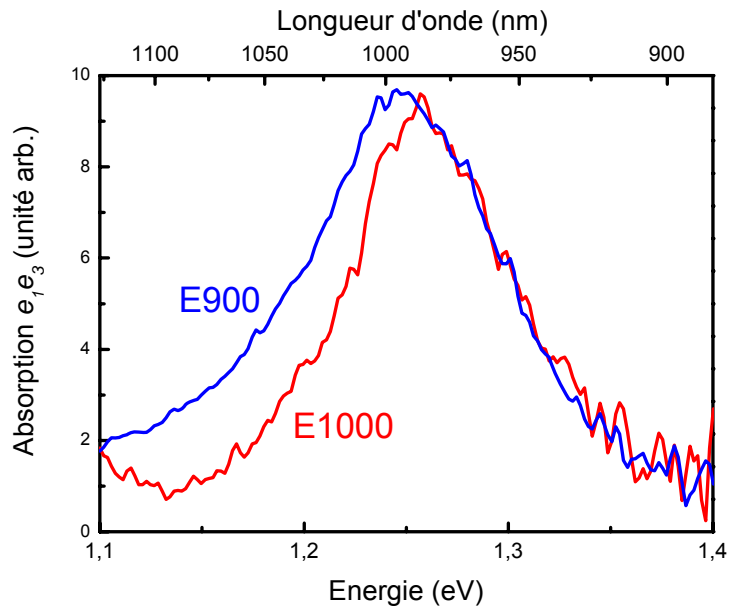


Fig. 3.9 : Spectre d'absorption intersousbande e_1e_3 des deux échantillons E900 (courbe bleue) et E1000 (courbe rouge).

L'absorption intersousbande e_1e_3 est uniquement observée en polarisation TM (p). Elle est piquée à 1,26 eV (0,98 μm) et présente un élargissement total à mi-hauteur de 95 meV pour l'échantillon E1000. Concernant l'échantillon E900, l'absorption e_1e_3 est piquée à 1,25 eV et montre une augmentation de l'élargissement à basse énergie, certainement liée à la contribution des puits quantiques de 9 monocouches d'épaisseur. Contrairement aux absorptions e_1e_2 , l'absorption e_1e_3 ne présente pas de structure avec plusieurs pics. Une explication possible est qu'en dessous d'une épaisseur critique du puits quantique, le troisième niveau se délocalise dans le continuum, ou plutôt, dans la partie triangulaire du potentiel de la barrière AlN (fig. 3.6). Si l'épaisseur du puits quantique GaN diminue d'une monocouche, le champ interne se répartit différemment. Il devient plus important dans le puits GaN et plus faible dans la barrière AlN. En conséquence, le décalage de l'absorption e_1e_3 avec l'épaisseur du puits quantique est beaucoup moins prononcé que celui de l'absorption e_1e_2 . Ainsi, dans ce système particulier, l'écart e_1e_3 peut même diminuer lorsque l'épaisseur du puits quantique diminue (contrairement aux systèmes classiques du type GaAs/AlGaAs).

3.2.3) *Emission*

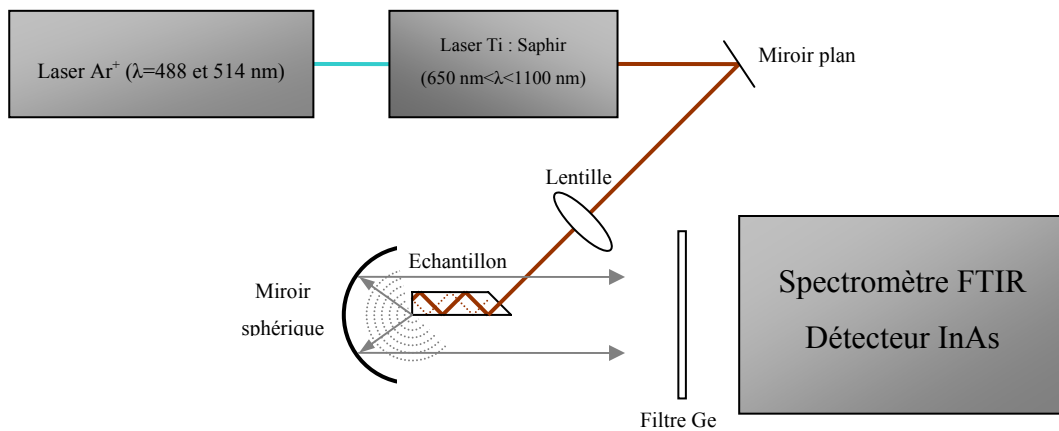


Fig. 3.10 : Schéma du montage expérimental.

Sur la figure 3.10 est représenté le schéma expérimental du système permettant de mesurer l'émission intersousbande. La facette de l'échantillon servant à l'injection du pompage optique est polie à 45° et la facette de sortie à 90° . L'excitation est fournie par un laser Titane-Saphir accordable de 850 à 1100 nm en utilisant deux jeux de miroir. Ce laser est lui-même pompé optiquement avec un laser Ar^+ multiraises visibles avec une puissance optique de 20 Watt. Dans la première expérience, la longueur d'onde d'excitation du laser Ti-Saphir est fixée à 980 nm en résonance avec l'absorption e_1e_3 . A cette longueur d'onde, la puissance du laser est de 1 Watt. Le faisceau pompe est focalisé à incidence normale sur la facette à 45° à l'aide d'une lentille en quartz de 5 cm de focale. Dans cette configuration, le laser pompe subit plus de dix passages à travers la structure active. L'émission est récoltée de l'autre côté de l'échantillon par la facette polie à 90° grâce à un miroir sphérique de 2 cm de focale et de 5 cm de diamètre. L'émission est dirigée vers le port d'entrée d'un spectromètre à transformée de Fourier Nicolet Nexus 870 fonctionnant en mode pas à pas. Un filtre en Germanium massif de 5 mm d'épaisseur est utilisé pour absorber le résidu du laser. Pour la détection, j'ai utilisé un détecteur InAs refroidi à la température de l'azote liquide (77 K) dont la longueur d'onde de coupure est de $3,1 \mu\text{m}$. Une détection synchrone à la fréquence de modulation du laser haché mécaniquement est utilisée pour augmenter la sensibilité de l'expérience.

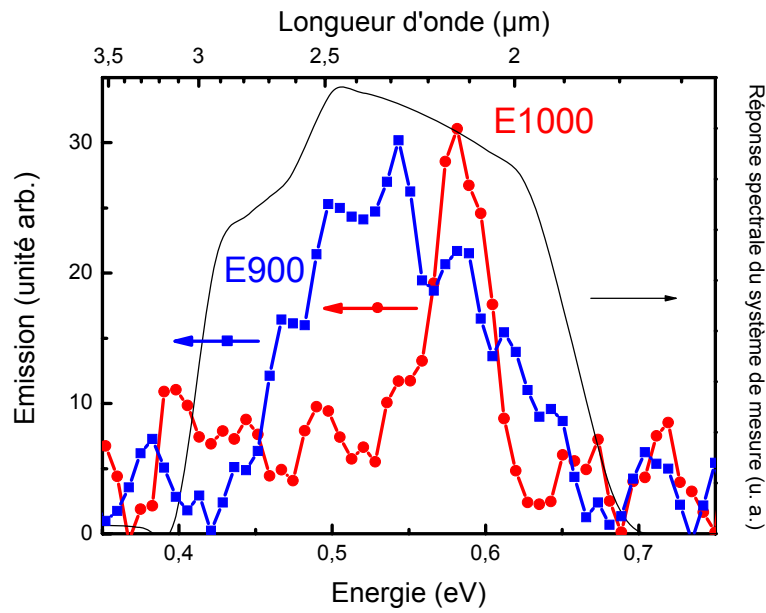


Fig. 3.11 : Spectres d'émission intersousbande des échantillons E900 (carrés bleus) et E1000 (cercles rouges). La courbe noire en trait plein représente la réponse spectrale du système de mesure.

Le spectre d'émission des échantillons E900 (carrés bleus) et E1000 (cercles rouges) est montré sur la figure 3.11 pour une excitation à $\lambda=980$ nm polarisée TM (p). La courbe noire en trait plein représente la réponse spectrale du système de mesure obtenu avec l'émission d'une lampe. L'émission est piquée à $\lambda=2,13$ μm avec une largeur à mi-hauteur de 60 meV pour l'échantillon E1000 et à $\lambda=2,3$ μm avec un élargissement de 160 meV pour l'échantillon E900. Le signal d'émission est principalement polarisé TM (p) : l'intensité dans cette polarisation est trois fois supérieure à celle en polarisation TE (s). Le signal polarisé TE est probablement dû à la dépolarisation de l'onde lors des multiples réflexions à l'intérieur de l'échantillon.

D'après les mesures d'absorption intersousbande e_1e_2 et e_1e_3 , l'émission e_3e_2 est attendue à 565 (510) meV pour les puits quantiques de 8 (7) monocouches. L'émission piquée à 580 meV pour l'échantillon dopé E1000 est seulement décalée de 15 meV de l'émission attendue pour des puits quantiques de 8 monocouches d'épaisseur. Le décalage spectral est inférieur à la demi largeur de raie de la transition. En ce qui concerne l'échantillon E900, l'élargissement plus élevé et le décalage du pic vers les basses énergies s'expliquent par la contribution des puits de 9 monocouches au signal d'émission.

Je présente maintenant les expériences de spectroscopie d'excitation de la luminescence intersousbande. Pour ce faire, j'ai mesuré la puissance du signal d'émission intégré spectralement ($\lambda=1,8-3,1 \mu\text{m}$) en fonction de la longueur d'onde et de la polarisation du laser Ti : Saphir. La figure suivante 3.12 montre le rendement d'émission en fonction de la longueur d'onde d'excitation en polarisation TM (carrés rouges) et TE (cercles verts) pour l'échantillon E1000. Chaque point de mesure est obtenu avec des longueurs d'onde pompe espacées de dix nanomètres et un temps d'intégration de plus de trois minutes pour améliorer le rapport signal à bruit.

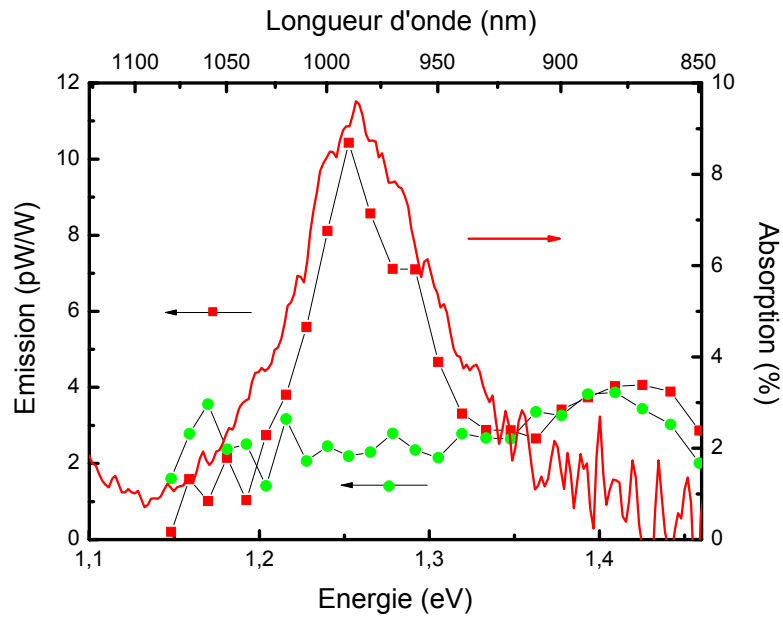


Fig. 3.12 : Spectre de photoluminescence d'excitation (PLE) en polarisation TM (carrés rouges) et TE (cercles verts). A titre de comparaison, la courbe rouge représente l'absorption e_1e_3 mesurée en guide d'onde multi passage.

Sur la figure est aussi représenté le spectre d'absorption intersousbande e_1e_3 . La figure 3.12 montre que le signal d'émission est maximum lorsque l'excitation est résonante avec l'absorption e_1e_3 et qu'il suit fidèlement la forme de raie d'absorption en polarisation TM. Ceci confirme que l'émission provient bien de la relaxation intersousbande radiative e_3e_2 des puits quantiques. Sous une excitation polarisée TE (s), on remarque la présence d'un signal résiduel large bande qui augmente de façon monotone avec l'énergie pompe. Ce signal est probablement lié à la recombinaison radiative des défauts profonds dans la structure.

3.2.4) Rendement de luminescence

La puissance émise par l'échantillon sous un pompage optique à $\lambda=980$ nm est seulement de 10 pWatt par Watt de laser injecté. Ceci est le résultat du faible rendement quantique de la relaxation radiative intersousbande mais surtout de la faible efficacité de collecte du montage expérimental.

Si l'on suppose que le faisceau pompe est totalement absorbé lors des multiples réflexions dans l'échantillon, le rendement de luminescence peut être estimé par la formule suivante :

$$\eta = \frac{\lambda_p}{\lambda_e} \frac{\tau_3^{nr}}{\tau_{32}^{rad}}$$

où λ_p est la longueur d'onde pompe et λ_e est la longueur d'onde d'émission. τ_3^{nr} est la durée de vie des électrons dans la troisième sousbande ~ 150 fs [Heb02], [Iiz00], [Ham04], [Ham05], [Wan05], [Wan06]. τ_{32}^{rad} est le temps de relaxation radiative des électrons de la troisième sousbande vers la deuxième. On peut estimer ce temps à partir de la formule suivante [Ber94] :

$$\frac{1}{\tau_{32}^{rad}} = \frac{2\pi e^2 n_{opt} f_{32}}{3m_0 \epsilon_0 c \lambda_{32}^2} = \frac{1}{27ns}$$

où $f_{32}=4,6$ représente la force d'oscillateur de la transition $3 \rightarrow 2$. Ainsi, pour une puissance pompe de 1 Watt à $\lambda \sim 1 \mu m$, le rendement d'émission interne des puits quantiques est estimé à 3 μ Watt par Watt de pompe. Ce rendement correspond à l'émission générée à l'intérieur de l'échantillon. On peut estimer que seulement une faible partie des photons ($\sim 3 \cdot 10^{-5}$) est collectée par la facette de sortie.

3.2.5) Emission Raman ?

Le processus spontané observé est clairement lié à l'émission résonante entre les sousbandes 3 et 2. On ne peut cependant pas exclure *a priori* que des processus non-linéaires du type Raman résonant puissent contribuer au signal. Khurgin *et al.* [Khu95] ont proposé d'utiliser l'effet Raman stimulé en proche résonance avec les transitions intersousbandes pour obtenir l'effet laser. L'effet Raman stimulé est considérablement amplifié si le niveau relais virtuel est en proche résonance avec les niveaux réels des puits quantiques.

L'une des signatures du processus Raman résonant stimulé est que l'énergie du photon émis suit l'énergie du photon pompe lorsque celle-ci est accordée. Cela a été clairement mis en évidence par H. C. Liu *et al.* [Liu00], [Liu01], [Liu03] dans une structure laser fontaine à puits quantiques GaAs/AlGaAs. Plus récemment, M. Schneirt *et al.* [Sch07] ont réalisé un laser fontaine Raman en profitant de la faible masse effective d'InGaAs dans une structure InGaAs/AlInAs sur InP émettant à $\lambda \sim 5 \mu\text{m}$.

Nous avons tenté de mesurer le spectre d'émission en accordant la longueur d'onde de pompage de part et d'autre de la résonance d'absorption e_1e_3 . Néanmoins, le rapport signal à bruit était insuffisant pour conclure à l'existence ou non d'un déplacement spectral du pic d'émission en fonction de la longueur d'onde pompe. La quantité de signal intégré spectralement par la détection synchrone était seulement de $2 \mu\text{V}$ avec un bruit de $1 \mu\text{V}$.

Indépendamment de l'existence ou non d'un processus Raman, il convient de noter que l'on peut s'attendre à un décalage du pic d'émission avec la longueur d'onde de pompage. En effet, dans notre système très inhomogène, à cause des fluctuations du nombre de monocouche, il est évident que si on décale la longueur d'onde pompe, on peuple le niveau d'énergie e_3 correspondant à des puits d'épaisseurs différentes. On décale ainsi l'énergie de l'émission de la transition e_3e_2 . Malheureusement, la quantité trop faible de signal dans mon expérience ne permettait pas de mettre en évidence ce phénomène. Il faudrait optimiser au maximum la configuration expérimentale pour obtenir un meilleur rendement de luminescence. Une possibilité serait d'insérer la structure dans un guide d'onde et de pomper optiquement la transition e_1e_3 directement dans le guide à l'aide d'un objectif de microscope. L'émission pourrait alors être récoltée à la sortie du guide, sur le côté ou bien encore en configuration rétro-diffusée.

Finalement, la structure à puits quantiques GaN/AlN simples ne permet pas *a priori* d'atteindre l'inversion de population. Pour ce faire, il faudrait que le temps de relaxation non radiatif entre les sousbandes e_3 et e_2 , c'est-à-dire τ_{32}^{nr} , soit plus long que la durée de vie des électrons dans le niveau e_2 , c'est-à-dire τ_2^{nr} . Or en première approximation, τ_{32} et $\tau_2 = \tau_{21}$ sont proportionnels aux énergies des transitions e_{32} et e_{21} , respectivement [Juju95], [Wan96]. Comme $e_{32} < e_{21}$, on s'attend à ce que $\tau_{32} < \tau_{21}$. L'effet laser par un processus d'émission à un photon est donc *a priori* impossible dans notre structure à puits quantiques.

3.3) Faisabilité d'un laser à Fontaine quantique dans les puits couplés GaN/AlN aux longueurs d'onde des télécommunications

3.3.1) Principe

En 1997, Olivier Gauthier-Lafaye *et al.* [Ogl97] mettent en évidence le premier laser à fontaine quantique dans des puits quantiques couplés GaAs/Al_{0,4}Ga_{0,6}As. La structure est conçue pour présenter trois niveaux d'énergie accessibles pour les électrons. La population du niveau fondamental e_1 est assurée par le dopage de la structure. L'énergie de la transition e_1e_3 est choisie pour être pompée efficacement via un laser CO₂ à $\lambda \sim 10 \mu\text{m}$. La transition laser a lieu entre le niveau 3 et 2 à $\lambda \sim 15,5 \mu\text{m}$. La séparation énergétique entre le niveau 2 et le niveau 1 est très proche de l'énergie des phonons optiques longitudinaux du matériau (36 meV), permettant ainsi un recyclage extrêmement rapide des électrons du niveau 2 vers le niveau fondamental.

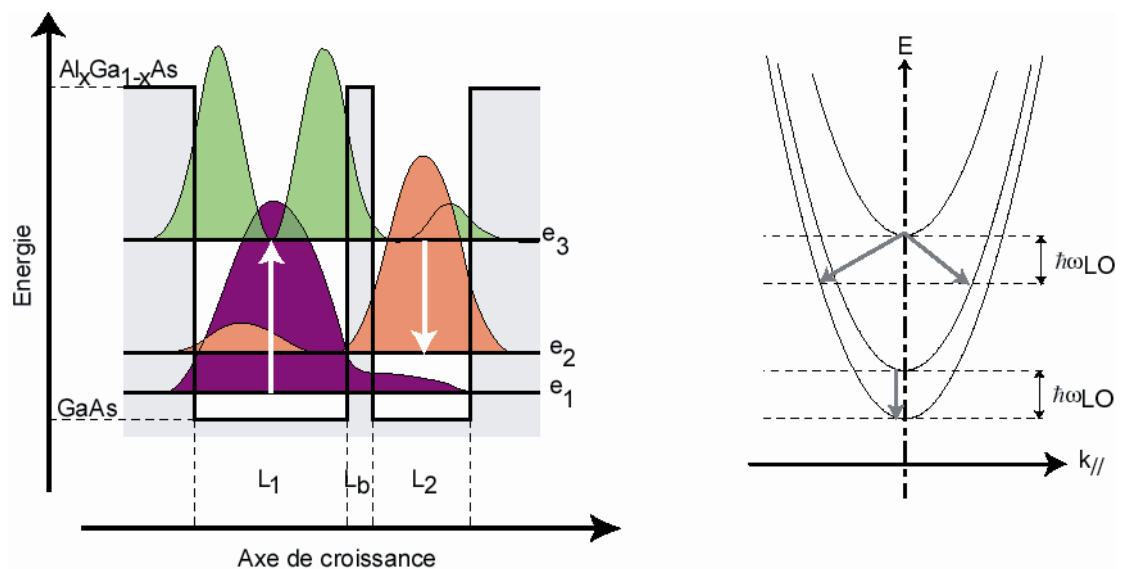


Fig. 3.13 : Gauche : profil de potentiel en bande de conduction ainsi que les fonctions enveloppes de la structure laser à fontaine quantique utilisée par Olivier Gauthier-Lafaye *et al.* [Ogl97]. Droite : le schéma des sousbandes illustrant les chemins de relaxation non-radiative.

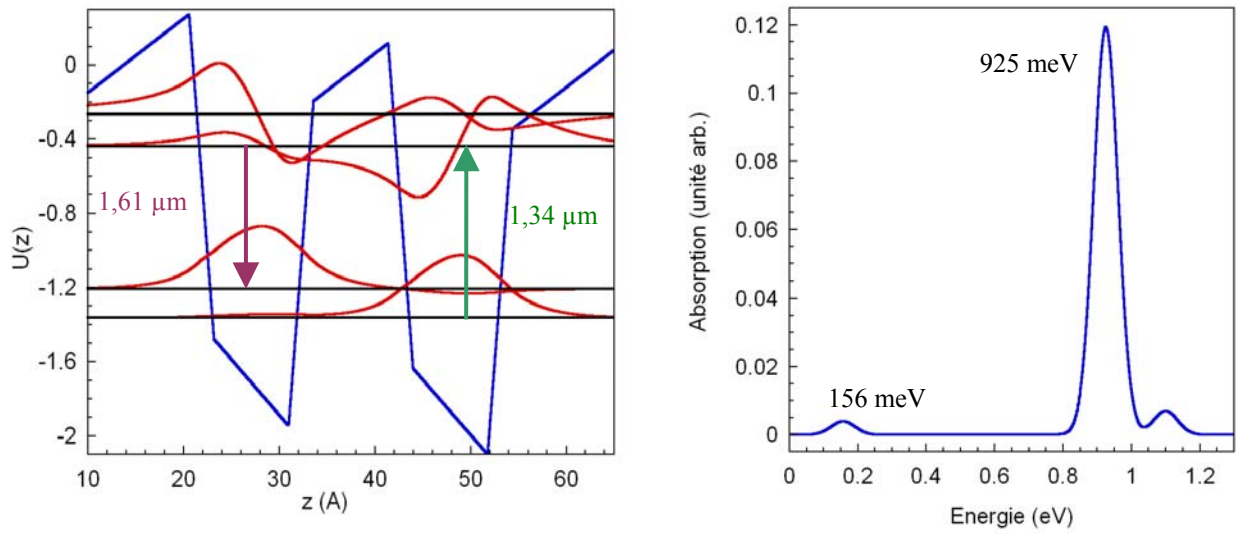
3.3.2) Laser à Fontaine quantique à puits couplés GaN/AlN

Pour réaliser un laser à Fontaine quantique émettant aux longueurs d'onde des télécommunications dans les puits quantiques GaN/AlN, plusieurs conditions sont indispensables. La première consiste à utiliser un système à trois niveaux, la seconde à avoir une relaxation très rapide e_2-e_1 . La relaxation par émission d'un phonon optique longitudinal est la plus efficace et la plus simple à mettre en oeuvre. En effet, il suffit de concevoir une structure dont la séparation énergétique entre les deux premiers niveaux est proche de l'énergie du phonon optique LO (~ 90 meV). Cette condition peut être facilement satisfaite en jouant sur le couplage des deux puits quantiques GaN par une barrière fine AlN car celui-ci permet une grande flexibilité sur le positionnement des niveaux quantiques. La troisième condition concerne l'épaisseur des couches. Dans les nitrures, la masse effective des électrons est élevée ($m_{GaN}^* = 0,22 m_0$). Pour obtenir une émission aux longueurs d'onde des télécommunications il faut utiliser des épaisseurs de puits quantiques GaN très minces. Pour atteindre un fort couplage entre les niveaux quantiques des deux puits, la barrière AlN entre ces deux derniers doit être suffisamment mince car la discontinuité de bande de conduction est élevée. On pourrait néanmoins utiliser une barrière de couplage moins haute, c'est-à-dire en AlGaN pour amplifier le couplage tunnel [Dri07].

Cependant, la croissance des couches ultra-minces est un défi pour l'épitaxie. Pour concevoir une structure active robuste et assez homogène, il ne faut pas que l'épaisseur des couches soit inférieure à quatre monocouches atomiques (1 monocouche = 0,26 nm) pour les puits quantiques GaN comme pour les barrières AlN.

Je propose donc les deux structures suivantes à puits couplés GaN/AlN :

a)



b)

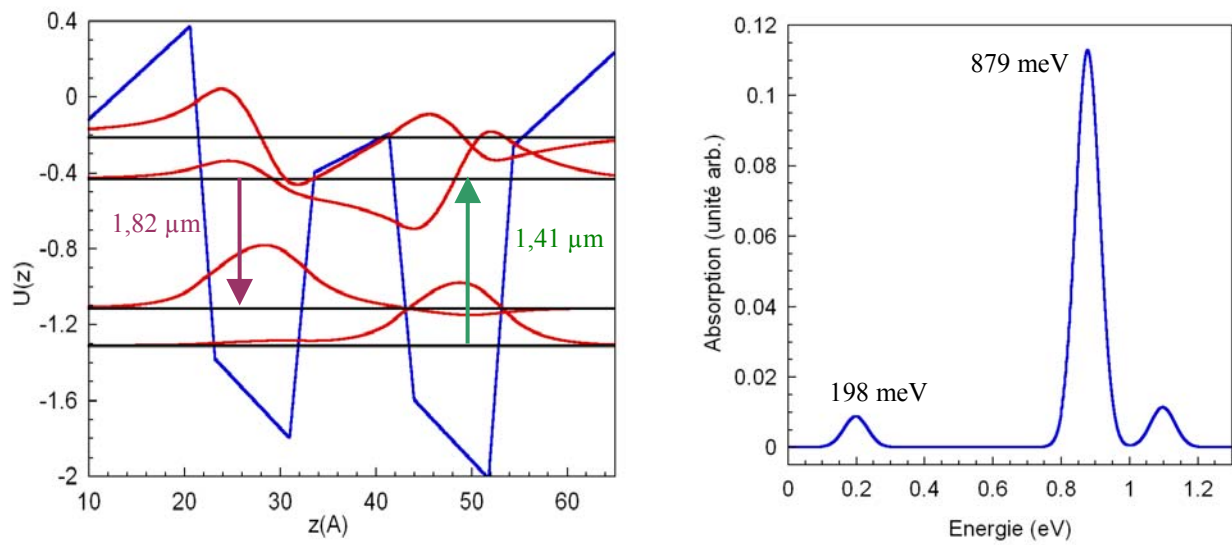


Fig. 3.14 : Profil de potentiel en bande de conduction (à gauche) de structure laser à fontaine quantique. Simulation du spectre d'absorption correspondant (à droite). a) barrière de couplage en AlN. b) barrière de couplage en $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{N}$.

La première structure (a) est constituée de deux puits quantiques GaN de 4 monocouches séparés par une barrière de couplage AlN de 4 monocouches. Des séparateurs en AlN de 7 monocouches atomiques sont insérés entre chaque période. L'épaisseur de ces séparateurs est réduite au maximum afin de minimiser le champ interne dans les puits quantiques. Cela permet d'avoir des transitions intersousbandes à un peu plus haute énergie dans ce système particulier. La longueur d'onde de pompage est $1,34 \mu\text{m}$ et la transition laser est attendue autour de $\sim 1,61 \mu\text{m}$. La séparation entre les deux premiers niveaux est de 156 meV , ce qui est proche de deux fois l'énergie des phonons optiques LO (90 meV).

La deuxième structure (b) est identique à la précédente mis à part le fait que la barrière séparant les deux puits quantiques GaN est cette fois en $\text{Al}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{N}$. Ceci permet d'amplifier le couplage entre les puits et donc d'augmenter les forces d'oscillateurs des transitions diagonales. En contre partie, les énergies des transitions optiques sont légèrement réduites car les niveaux situés proche du continuum ressentent le confinement d'un puits plus large. Ainsi, la longueur d'onde de pompage devient $1,41 \mu\text{m}$ et la transition laser est attendue autour de $\sim 1,82 \mu\text{m}$. La séparation entre les deux premiers niveaux est de 198 meV .

Dans les deux structures proposées, il existe un quatrième niveau situé à haute énergie. Cela pourrait permettre un pompage optique du niveau e_1 vers le niveau e_4 à plus haute énergie que précédemment ($1,13\mu\text{m}$) et d'obtenir la transition laser entre le niveau e_4 et le niveau e_2 à $1,31 \mu\text{m}$ dans la première structure (a). Dans la deuxième structure (b), le pompage serait toujours à $1,13 \mu\text{m}$, mais l'émission serait attendue autour de $1,38 \mu\text{m}$. Le défaut d'un tel système laser à quatre niveaux, c'est qu'il multiplie les chemins de relaxation non radiatifs. Ainsi, l'électron situé dans la quatrième sousbande peut relaxer vers la première, la deuxième et la troisième sousbande. Puisque le rendement quantique est directement proportionnel au rapport de la durée de vie sur la durée de relaxation radiative, l'ajout d'un niveau supplémentaire rend l'inversion de population plus difficile à obtenir. Dans la suite, je ne considère que le schéma à trois niveaux.

3.3.3) Calcul du gain stimulé

Dans un système laser à trois niveaux, on peut écrire les équations différentielles à taux de populations suivantes :

$$\frac{dn_3}{dt} = W_p(n_3 - n_1) - \frac{n_3 - n_3^{ther}}{\tau_3^{nr}} - W_e(n_3 - n_2) = 0$$

$$\frac{dn_2}{dt} = \frac{n_3 - n_3^{ther}}{\tau_{32}^{nr}} - \frac{n_2 - n_2^{ther}}{\tau_{21}^{nr}} + W_e(n_3 - n_2) = 0$$

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{n_3 - n_3^{ther}}{\tau_{31}^{nr}} + \frac{n_2 - n_2^{ther}}{\tau_{21}^{nr}} - W_p(n_3 - n_1) = 0$$

en supposant le régime stationnaire et avec la condition que la densité de population totale du système reste constante : $N = n_1 + n_2 + n_3$. Les n_i représentent les densités de population des niveaux i en cm^{-2} et les n_i^{ther} , les populations à l'équilibre thermique. τ_{ij}^{nr} est le temps caractéristique de relaxation non radiative entre les niveaux i et j . W_p et W_e représentent les probabilités d'absorption pour le pompage (W_p) et de l'émission spontanée (W_e) en s^{-1} . Dans l'hypothèse d'un régime permanent et en dessous du seuil laser, on peut négliger les termes de relaxation radiative. Enfin, puisque le niveau e_3 est très loin du niveau de Fermi, on peut négliger le terme n_3^{ther} . Avec ces dernières simplifications, le système se réécrit comme :

$$\Delta n = n_3 - n_2 = n_3 \left(1 - \frac{\tau_{21}}{\tau_{32}}\right) - n_2^{ther}$$

$$n_3 = \frac{N}{2 + \frac{\tau_{21}}{\tau_{32}} + \frac{1}{W_p \cdot \tau_3}} .$$

D'après ces deux dernières équations, deux paramètres majeurs sont à optimiser pour obtenir l'inversion de population :

- i) Le temps de relaxation τ_{21} doit être plus court que le temps de relaxation τ_{32} .
- ii) L'écart énergétique entre les deux premiers niveaux doit être grand devant kT . La population thermique du deuxième niveau détruit l'inversion de population. C'est l'augmentation exponentielle de cette population avec la température qui déterminera la température maximale de fonctionnement du laser $n_2^{ther} = N e^{-\Delta E_{12} / kT}$.

Le gain g g n r  par la structure est donn  par la formule : $g = \frac{\Delta n \sigma_{32}}{L_p}$

o  Δn est l'inversion de population, σ_{32} est la section efficace de la transition 3→2 d' mission, et L_p est l' paisseur de la structure active.

En substituant les valeurs de l'inversion de population, on obtient le gain stimul  en fonction de l'intensit  pompe I_p comme suit :

$$g = \frac{\sigma_{23} \sigma_{13} N I_p \tau_3}{L_p \hbar \omega_p} \left(1 - \frac{\tau_{21}}{\tau_{32}}\right) - \frac{m^* kT}{\pi \hbar^2} \ln\left(1 + \exp\left(\frac{E_f - E_2}{kT}\right)\right).$$

Il est  vident que pour maximiser le gain, il faut maximiser le produit des sections efficaces des transitions mises en jeu.

Dans le syst me utilis  par Gautier-Lafaye *et al.* [Ogl97] qui est constitu  de deux puits quantiques de GaAs de 8,2 et 5 nm s par s par une barri re Al_{0,4}Ga_{0,6}As de 1,4 nm d' paisseur, le gain stimul  $g=1,51.10^{-3} \times I_p \text{ cm}^{-1}$ par p riode. Cette valeur est calcul e en utilisant les param tres ci-dessous, et pour la temp rature 0 Kelvin.

$$\begin{array}{ll} \tau_{21}=0,5 \text{ ps} & \sigma_{13}=1,77 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \\ \tau_{32}=1,5 \text{ ps} & \sigma_{23}=2,50 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \\ \tau_{31}=1,2 \text{ ps} & N=3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \end{array}$$

En appliquant le m me calcul   la structure   puits quantiques coupl s GaN/AlN propos e dans la fig. 3.14a), on trouve un gain stimul   gal   $10^{-6} \times I_p \text{ cm}^{-1}$ par p riode. Les param tres utilis s sont les suivants et la temp rature est 0 K :

$$\begin{array}{ll} \tau_{21}=30 \text{ fs} & \sigma_{13}=2,2 \times 10^{-16} \text{ cm}^2 \\ \tau_{32}=300 \text{ fs} & \sigma_{23}=4,9 \times 10^{-17} \text{ cm}^2 \\ \tau_{31}=300 \text{ fs} & N=5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \end{array}$$

Le gain stimul  calcul  dans les puits quantiques coupl s GaN/AlN est trois ordres de grandeur inf rieur   celui de la structure utilis e dans [Ogl97]. La raison principale est li e aux param tres intrins ques du mat riau. En effet, la masse effective du GaN est trois fois

supérieure à celle du GaAs. Ainsi, le produit des sections efficaces de transition est réduit d'un facteur 10. N'oublions pas qu'intervient dans les sections efficaces la largeur de raie homogène des transitions qui est relativement grande dans les nitrures (FWHM ~ 40 meV).

Pour obtenir l'effet laser, il faut réaliser une cavité pour l'amplification. Pour cela il est nécessaire d'insérer la structure active dans un guide d'onde possédant de faibles pertes. Contrairement aux lasers à cascade quantique, les lasers à fontaine quantique ne nécessitent pas de couches de contacts, qui sont la principale source de pertes de propagation de la lumière par absorption par les porteurs libres.

La conception du guide d'onde vise à maximiser le recouvrement du mode guidé d'émission avec la zone active et de maximiser l'intensité du mode de l'onde pompe dans cette partie du guide. Je propose donc un guide d'onde très simple et très robuste composé de deux couches d'AlN de $1\ \mu\text{m}$ et de $0,65\ \mu\text{m}$ d'épaisseur autour de la partie active. La figure 3.15 illustre la distribution de l'intensité lumineuse à la longueur d'onde d'émission dans la direction perpendiculaire aux couches.

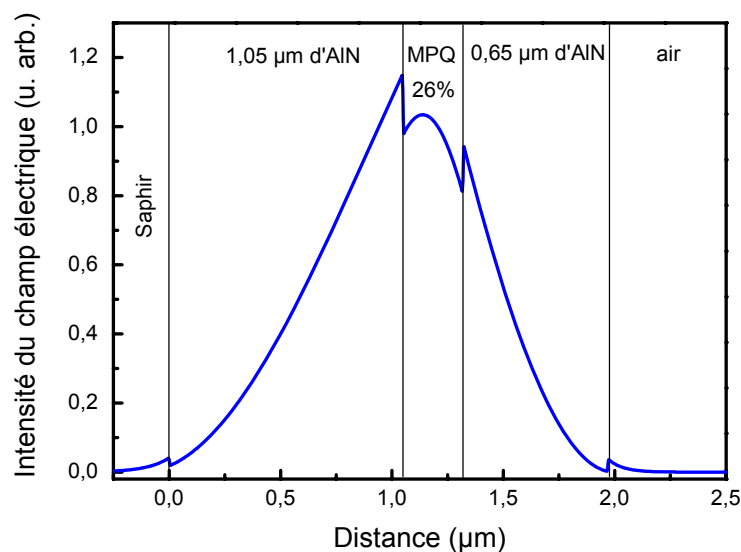


Fig. 3.15 : Répartition de l'intensité du champ électrique E_z dans le guide d'onde.

L'épaisseur de la couche AlN inférieure est fixée par le quasi substrat AlN sur saphir utilisé pour l'épitaxie de la structure. La couche tampon d'AlN préfabriquée mesure $1\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Il faut ajouter $50\ \text{nm}$ d'AlN épitaxié en MBE pour démarrer la croissance. La structure active est composée de 50 périodes de multi puits quantiques. Son épaisseur est de

247 nm. Le seul paramètre libre est l'épaisseur de la couche AlN supérieure. Les calculs montrent que pour maximiser le recouvrement de l'onde émise avec la structure active, il faut utiliser 650 nm d'AlN en surface. Ainsi, le recouvrement dans les multi puits quantiques est de ~26 %.

Dans notre laboratoire, Anatole Lupu a mesuré les pertes de propagation dans des guides d'onde AlInN à l'accord de maille sur GaN épitaxié en MOCVD. La figure 3.16 montre une photo d'une fibre optique lentillée approchée des guide GaN/AlInN.

En utilisant la méthode basée sur les oscillations Fabry-Perot, il a déduit des pertes égales à $\sim 4 \text{ cm}^{-1}$ en polarisation TE (s) et $\sim 10 \text{ cm}^{-1}$ en polarisation TM (p) [Lup08]. Cette méthode très puissante permet de s'affranchir des pertes induites par le couplage de la lumière sur les facettes d'entrée et de sortie. Ces valeurs sont comparables aux valeurs à l'état de l'art publiées dans la littérature [Iiz06]. La valeur de pertes en polarisation TM (p) est suffisamment faible pour qu'un effet laser avec le milieu actif décrit plus haut puisse être envisageable.

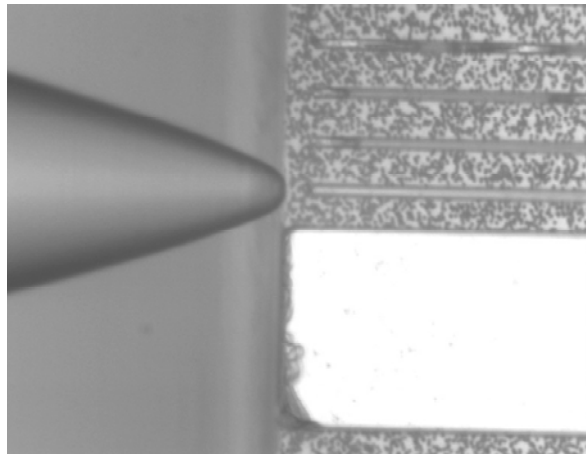


Fig. 3.16 : Photo prise au microscope optique d'une fibre lentillée approchée des guides d'onde pour injecter la lumière (échantillon A976).

Le dernier élément à ne pas négliger pour la réalisation d'un laser est la réalisation des facettes miroirs. Il faut avoir les miroirs les plus réfléchissants possibles pour obtenir un seuil laser le plus bas possible. Dans le GaAs, l'indice optique est assez élevé ($\sim 3,3$). Le contraste d'indice entre GaAs et l'air est suffisant pour que les miroirs formés par clivage aient une réflectivité de $\sim 30\%$. Dans le GaN l'indice optique est relativement faible ($\sim 2,3$) ce qui donne une réflectivité médiocre des miroirs GaN-air (seulement $\sim 15\%$). Pour augmenter cette valeur, il est possible de déposer une couche à haute réflexion sur les facettes. Cette technique est une solution couramment utilisée pour obtenir des réflectivités au delà de 99% .

Finalement, en utilisant la valeur de gain calculée pour 50 périodes, les pertes induites par le guide et le recouvrement modal, on estime la puissance de laser pompe nécessaire pour atteindre le seuil laser à $\sim 1 \text{ MW.cm}^{-2}$. Cette dernière valeur ne prend pas en compte la réflectivité des facettes.

Conclusion

Dans ce chapitre, deux approches ont été tentées pour observer la relaxation radiative entre deux sousbandes de conduction dans les puits quantiques GaN/AlN. La première utilisait un pompage optique interbande, et la deuxième reposait sur une excitation résonante des électrons sous un pompage optique intersousbande. Seule la seconde approche a conduit à l'observation d'une émission intersousbande à température ambiante à $\lambda = 2,13 \mu\text{m}$, ce qui est la plus courte longueur d'onde d'émission intersousbande jamais rapportée. Le rendement de luminescence est faible, seulement 10 pW par Watt de puissance pompe, mais ce rendement intrinsèquement petit pour les composants intersousbandes n'est pas un obstacle pour la réalisation de lasers intersousbandes performants. Dans la dernière partie de ce chapitre, j'ai montré qu'avec une ingénierie des couches, il est possible d'obtenir l'inversion de population dans les puits quantiques GaN couplés avec une très mince barrière en AlN. Avec un simple calcul d'équations à taux de population, je montre que l'on peut atteindre l'oscillation laser dans ces structures avec un seuil de $\sim 1 \text{ MW.cm}^{-2}$.

Chapitre 4

Etude du transfert tunnel entre puits couplés GaN/AlN : Application à la modulation électro-optique

Les composants intersousbandes les plus aboutis utilisent le transport vertical des électrons à travers l'hétérostructure et plus précisément le transport tunnel. C'est le cas des QWIP photodétecteurs [Lev87], [Hof03], où l'électron photoexcité passe par effet tunnel à travers une barrière de potentiel pour générer un photocourant. C'est aussi le cas de certains modulateurs électro-optiques [Vod91], [Liu91], [Dup93a], [Ber96], [Dub97a], [Bau06] et des lasers à cascade quantique [Fai94] où l'effet tunnel résonant est à la base du processus d'émission.

L'étude du transport tunnel et plus généralement du transport vertical dans les nitrures s'est heurtée jusqu'à présent à deux difficultés. La première tient à la qualité du matériau. En effet la présence de défauts profonds (lacunes, impuretés Oxygène,...) mais surtout de dislocations traversantes en densité très élevée (10^8 - 10^{10} cm⁻²) se traduit par des courants de fuite très importants mais aussi par des effets de piégeage/dépiégeage de charges. Ceci a été observé dans les QWIP photoconducteurs [Bau05b] mais aussi dans les premières diodes tunnels résonantes [Kik02], [Gol06], [Lec06], [Lec07]. La seconde difficulté tient à la forte discontinuité de bande de conduction entre le GaN et l'AlN. Celle-ci impose l'utilisation de couches ultra minces, quelques monocouches atomiques pour la barrière de potentiel afin de garantir un effet tunnel efficace.

La brique de base pour étudier le transport tunnel vertical est la structure présentant une barrière de potentiel entre deux puits quantiques GaN.

Dans ce chapitre, je poursuis l'étude menée par Maria Tchernycheva sur le couplage des puits quantiques nitrures développée dans le cadre de sa thèse [Tch06b]. Je mets en évidence pour la première fois le transfert tunnel des électrons entre deux puits quantiques GaN couplés par une très fine barrière AlN [Nev07b]. Le transfert des électrons entre les deux puits s'effectue sous l'application d'un champ électrique. Puisque l'absorption intersousbande est directement proportionnelle au nombre de porteurs dans la sousbande fondamentale, la lumière peut être modulée par un champ électrique.

Ce phénomène a été initialement démontré dans les puits quantiques d'arséniures. En 1991, Vodjdani *et al.* ont mis en évidence le transfert tunnel des électrons dans le moyen infrarouge (à $\lambda \sim 10 \mu\text{m}$) en utilisant des hétérostructures GaAs/AlGaAs [Vod91], [Ber92]. En 1997, Duboz *et al.* ont optimisé le dispositif grâce à un meilleur couplage de la lumière via un réseau de diffraction déposé à la surface [Dub97a], [Dub97b]. Des modulateurs de phase ont également été fabriqués [Dup93a], [Dup93b].

Basé sur ce principe, nous avons réalisé le premier modulateur électro-optique intersousbande fonctionnant aux longueurs d'onde des télécommunications et à température ambiante. En fabriquant des micro-dispositifs, la fréquence de coupure de notre modulateur atteint 1,4 GHz à -3 dB, avec une profondeur de modulation de 44 % [Kei08]. A la fin de ce chapitre, je présente brièvement un autre type de modulateur basé sur un principe différent. C'est un modulateur tout optique reposant sur l'absorption photoinduite.

4.1) Revue des études sur le couplage des puits quantiques GaN/AlN

Les premières études du couplage entre puits quantiques nitrures (GaN/Al_{0,65}Ga_{0,35}N) ont été réalisées par C. Gmachl *et al.* à Bell Laboratories en 2001 [Gma01]. Dans ces structures, ces auteurs ont montré la présence d'absorptions intersousbandes dans la gamme $\lambda=1,35\text{-}2,9\ \mu\text{m}$. Ces absorptions étaient structurées et présentaient un élargissement élevé (FWHM~300 meV) essentiellement dû à l'inhomogénéité des épaisseurs des couches quantiques. Les mesures optiques ne permettaient pas d'affirmer la présence du couplage. L'une des difficultés tient à la discontinuité de potentiel géante entre GaN et AlN (~1,75 eV). En effet, le couplage ne peut être obtenu que pour des barrières fines de quelques monocouches atomiques. Les progrès considérables de la croissance épitaxiale des nitrures ont permis en 2006 la réalisation de puits quantiques GaN/AlN avec des barrières aussi étroites que deux monocouches atomiques [Tch06b]. Le couplage électronique dans ces structures a été mis en évidence par des mesures spectroscopiques qui ont montré la présence de deux pics d'absorption ISB bien distincts. Ces deux pics d'absorption proviennent de la transition entre les deux états fondamentaux des deux puits quantiques couplés et entre l'état fondamental et l'état excité délocalisé entre les deux puits.

Comme expliqué dans le chapitre 1 section 1.4.2), la simulation du confinement électronique a révélé une subtilité sur le profil de potentiel dans la barrière ultra-mince. En effet, l'hypothèse d'une discontinuité de potentiel abrupte à l'interface n'est pas applicable aux hétérostructures GaN/AlN dont l'épaisseur est inférieure à 4-5 monocouches. Bernardini et Fiorentini ont montré en utilisant un calcul *ab initio* que la discontinuité de potentiel à l'hétérointerface GaN/AlN s'étale sur une monocouche atomique [Bern98]. Lorsque cet effet est pris en compte dans les simulations, Tchernycheva *et al.* ont obtenu un excellent accord entre les simulations des énergies de transitions intersousbandes et les mesures d'absorptions.

Récemment, l'équipe de Roberto Paiella [Dri07] a exploré une voie alternative pour obtenir un couplage efficace. Au lieu de diminuer l'épaisseur de la barrière de couplage, ils ont décidé de réduire sa hauteur en utilisant des barrières en Al_{0,39}Ga_{0,61}N. L'étude en fonction de différentes épaisseurs de puits quantiques GaN a montré que le couplage est efficace pour une épaisseur de la barrière égale à cinq monocouches atomiques et un bon accord avec les simulations est obtenu.

Le couplage efficace des multi-puits quantiques est un pré-requis pour étudier le transfert tunnel des électrons. Jusqu'à récemment, l'effet tunnel entre puits quantiques GaN/AlN sous l'application d'un champ électrique n'avait pas été démontré. Les premiers travaux sur le sujet menés par l'équipe de Daniel Hofstetter à Neuchâtel [Bau06] ont porté sur un super-réseau (SR) placé sous un contact Schottky. Ils ont montré que l'application d'un champ électrique aux bornes de leur structure active conduit à la déplétion du SR. Les électrons sont transférés du SR vers le gaz d'électrons bidimensionnel formé à l'interface entre le SR et la couche épaisse inférieure de GaN. L'effet est réversible en fonction du signe de la tension appliquée. Il peut être utilisé pour moduler l'absorption intersousbande des puits quantiques. Ce type de modulateur avait été déjà démontré à grande longueur d'onde ($\lambda \sim 10 \mu\text{m}$) dans les puits quantiques GaAs/AlGaAs par Vincent Berger *et al.* [Ber96].

4.2) Etude du transfert tunnel entre puits couplés GaN/AlN

4.2.1) Conception de la structure

Je présente ici les travaux visant à étudier le transfert tunnel des électrons entre deux puits quantiques GaN couplés par une barrière mince en AlN. Une des signatures de ce phénomène est le changement d'absorption intersousbande de chacun des deux puits quantiques sous l'application d'une tension. Pour chacun des puits, l'absorption intersousbande est en effet proportionnelle à la densité d'électrons dans l'état fondamental du puits quantique :

$$\alpha L = \sigma n_{2D}$$

où αL est l'absorbance, σ est la section efficace d'absorption et n_{2D} le nombre d'électrons par unité de surface.

Pour faciliter le transfert tunnel des électrons, les deux niveaux fondamentaux des deux puits quantiques doivent être proches en énergie. De plus, la barrière de couplage doit être suffisamment mince pour permettre ce transfert. Le principe est illustré sur la figure suivante :

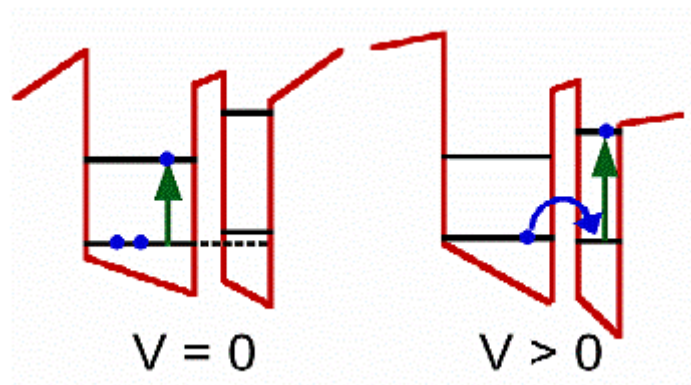


Fig. 4.1 : Schéma de principe du transfert de charges par effet tunnel à travers une barrière mince dans une hétérostructure GaN/AlN.

Les deux puits quantiques ont des épaisseurs différentes pour que leurs transitions soient séparées spectralement. Le puits large sert de réservoir pour les électrons. Son épaisseur est choisie pour qu'il absorbe en dehors de la bande spectrale 1,3-1,55 μm . Le puits quantique étroit est le puits actif, il est conçu pour absorber à 1,3 μm . A tension nulle, la sousbande fondamentale de ce puits est vide d'électrons. Sous l'application d'une tension électrique, les

électrons basculent du puits réservoir vers le puits actif. En mesurant l'absorption intersousbande du puits quantique étroit à $\lambda \sim 1,3 \mu\text{m}$, on peut estimer précisément la densité de porteurs transférés par effet tunnel. L'épaisseur de la barrière de couplage est choisie pour que les deux niveaux fondamentaux soient proches en énergie, facilitant ainsi le basculement des charges électroniques. Pour que la structure soit assez robuste, au regard des fluctuations d'épaisseur de ± 1 monocouche, toutes les épaisseurs sont choisies supérieures à quatre monocouches atomiques.

La figure 4.2 montre à gauche le profil de potentiel en bande de conduction de la structure que j'ai conçue, ainsi que son spectre d'absorption simulé à droite.

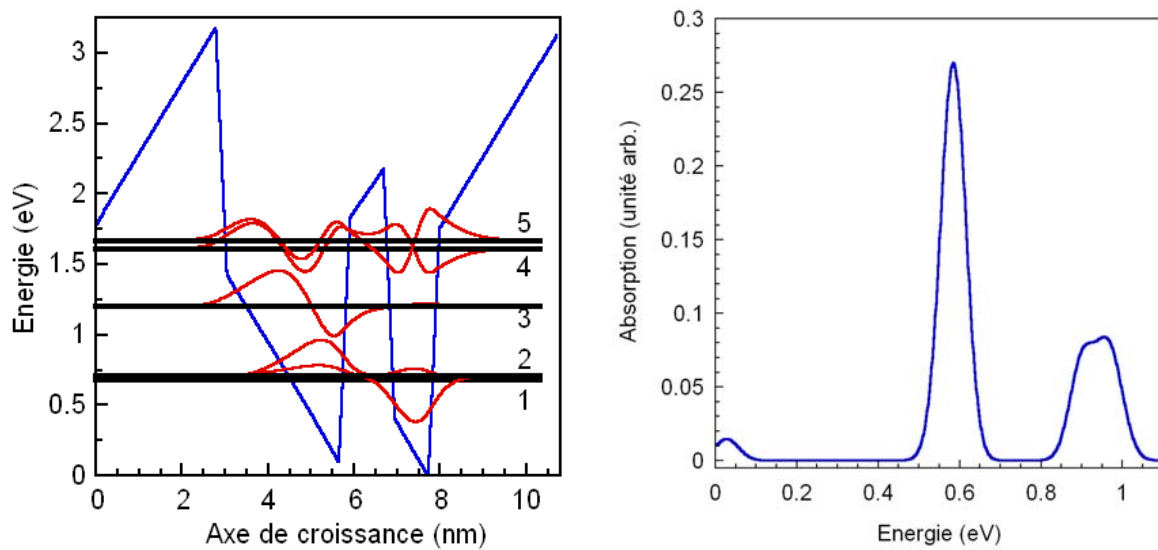


Fig. 4.2 : Calcul du profil de potentiel en bande de conduction (à gauche), et spectre d'absorption correspondant (à droite).

Dans la structure proposée, les épaisseurs du puits quantique GaN réservoir, de la barrière de couplage en AlN et du puits quantique actif en GaN mesurent respectivement 11, 4 et 4 monocouches atomiques (MC). Les différentes périodes sont séparées par des barrières en AlN de 11 MC. La discontinuité de polarisation entre GaN et AlN est prise égale à $\Delta P/\epsilon\epsilon_0=10$ MV/cm. Dans les simulations, j'ai tenu compte de la discontinuité de potentiel s'étalant sur une monocouche [Tch06b]. Cette dernière caractéristique a un effet majeur sur la position des niveaux quantiques d'énergie.

Dans les structures à puits quantiques couplés GaN/AlN, la répartition du champ électrique a une forte influence sur la position des niveaux d'énergie. Dans le calcul précédent, j'ai supposé les conditions périodiques suivantes : la chute de potentiel est nulle aux bornes de chaque période. Comme expliqué dans la partie 1.2.4), ceci n'est pas toujours vérifié dans les structures à multi-puits quantiques GaN/AlN. Si les conditions périodiques ne sont pas vérifiées (courbure de bande présente dans l'échantillon), le système devient très inhomogène ce qui pourrait entraîner un fort élargissement des absorptions ISB. Pour éviter la courbure de bande, j'ai utilisé des couches de contact en AlGa_{0,6}N_{0,4} dont la teneur en Aluminium est de 60 %, ce qui est proche de la concentration moyenne d'Aluminium dans la région active. La figure 4.3 illustre le profil de potentiel global calculé dans la région active. Grâce à ce choix de la concentration d'Aluminium dans les couches de contact, le profil de bande est plat et les conditions périodiques peuvent être appliquées. En outre, il n'y a pas formation d'un gaz d'électrons bidimensionnel à l'interface entre la région active et la couche de contact inférieur.

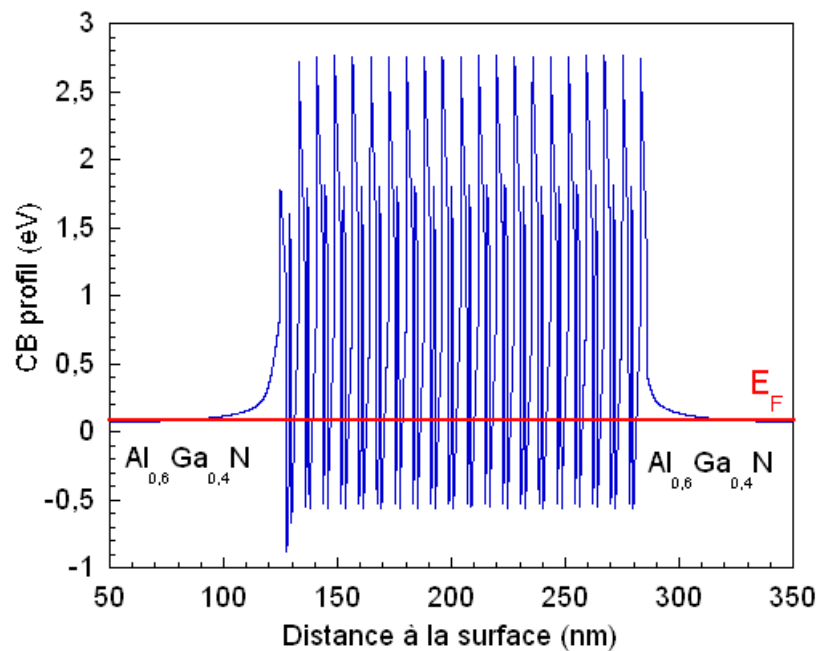


Fig. 4.3 : Profil de potentiel en bande de conduction calculé à l'aide du simulateur C-Band.

4.2.2) *Echantillon E1090*

L'échantillon correspondant au design proposé a été fabriqué par épitaxie par jets moléculaires avec un plasma d'azote comme source d'élément V. La croissance a été réalisée au CEA de Grenoble par Fabien Guillot et Eva Monroy. Le substrat utilisé pour démarrer la croissance consiste en une couche tampon d'un micron d'épaisseur d'AlN déposée par MOCVD sur un substrat saphir (0001). Vingt périodes de puits quantiques couplés GaN/AlN sont épitaxiés entre deux couches de contact en $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{N}$. Les couches $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{N}$ ainsi que les puits actifs sont dopés n^+ à $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ par l'incorporation d'atome de Silicium.

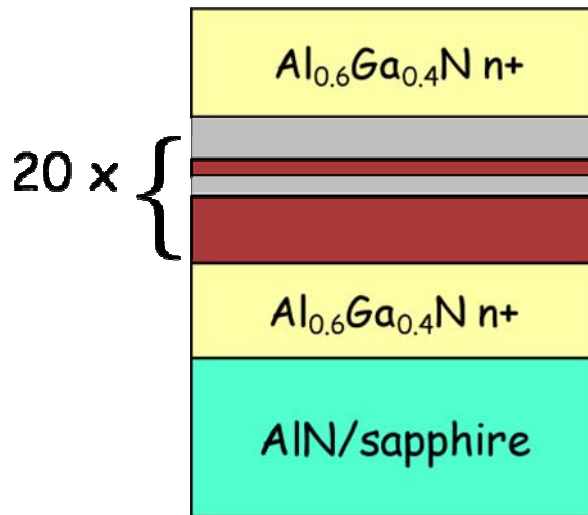


Fig. 4.4 : Structure de l'échantillon E1090.

La structure de l'échantillon a été étudiée par microscopie électronique en transmission (TEM) par Thilo Remmele et Martin Albrecht à l'institut de Cristallographie IKZ de Berlin. La figure suivante (4.5 gauche) montre l'image TEM haute résolution de la structure active de l'échantillon E1090. Les zones sombres correspondent aux couches de GaN, et celles plus claires, aux couches d'AlN. Le contraste est dû à la différence de propriétés de diffusion du faisceau électronique par les noyaux des matériaux constituants. L'axe de croissance est dirigé du bas vers le haut. Les lignes parallèles au plan des couches, présentes à l'intérieur de chaque matériau, correspondent aux plans cristallographiques (0002) : la distance entre deux lignes successives est égale à l'épaisseur d'une monocouche atomique suivant l'axe c (0,26 nm).

Les images TEM montrent que l'épaisseur des puits quantiques est homogène avec les fluctuations n'excédant pas ± 1 monocouche et que la périodicité des multi-puits quantiques est bien respectée. Il faut néanmoins noter que contrairement à la diffraction des rayons X, les mesures TEM sont très locales. Elles ne sondent qu'une région de quelques centaines de nanomètres. Ces analyses ne peuvent donc pas fournir d'informations sur une grande échelle.

Pour déterminer l'épaisseur moyenne des couches, nous faisons l'analyse suivante de l'image TEM : l'intensité est intégrée sur plusieurs nanomètres dans le plan des couches. L'analyse du profil d'intensité selon la direction de croissance donne les épaisseurs des couches. Ce profil d'intensité est illustré sur la figure 4.5 à droite. Pour l'échantillon E1090, ces épaisseurs sont 11 monocouches (MC) pour les séparateurs AlN, 4 MC pour la barrière de couplage, 11 et 4 MC pour les épaisseurs des deux puits quantiques GaN en bon accord avec les valeurs nominales.

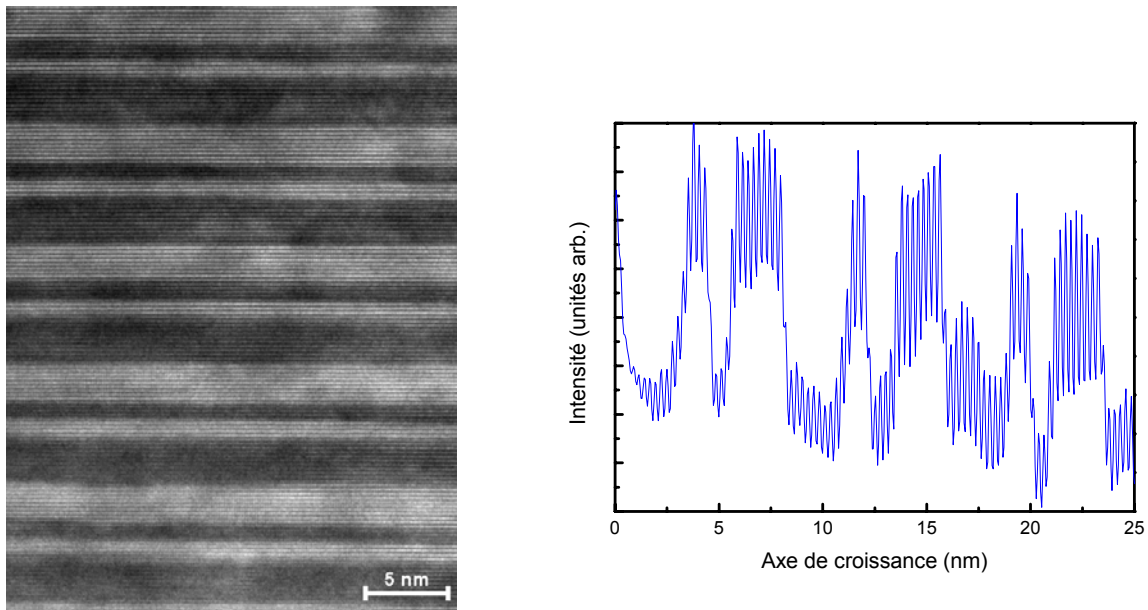


Fig. 4.5 : Image TEM haute résolution de l'échantillon E1090 (à gauche). A droite est représenté le profil des contrastes sur trois périodes permettant de déterminer l'épaisseur des couches (une oscillation correspond à une monocouche atomique selon l'axe c).

4.2.3) Caractérisations optiques

Spectroscopie de luminescence interbande

Dans un premier temps, j'ai caractérisé l'échantillon en spectroscopie de photoluminescence UV pour sonder l'énergie de la transition fondamentale interbande hh_1-e_1 .

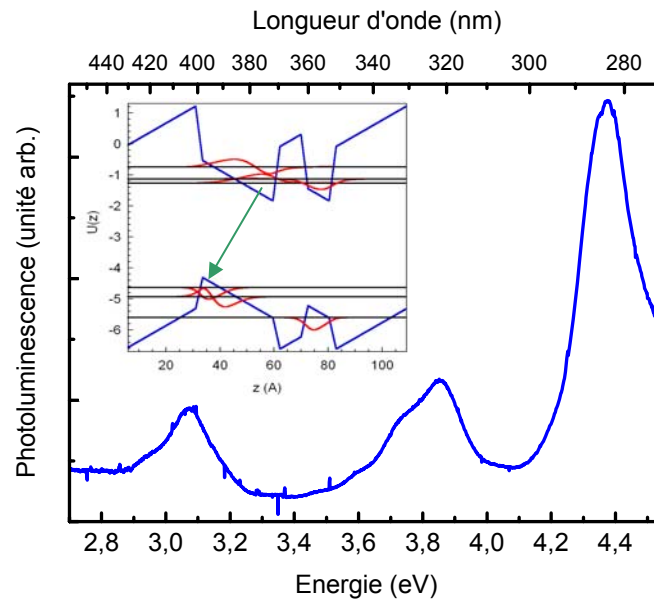


Fig. 4.6 : Spectre de photoluminescence de l'échantillon E1090. En insert est tracé le profil de potentiel en bande de conduction et en bande de valence.

La figure 4.6 montre le spectre de photoluminescence de l'échantillon E1090. L'insert de cette figure représente le profil de potentiel calculé en bande de valence et en bande de conduction. Sur ce spectre, on observe trois pics distincts. Le premier pic à basse énergie est à 3,07 eV (~404 nm). Il est attribué à la relaxation radiative interbande du niveau fondamental e_1 (localisé dans le puits réservoir) de la bande de conduction vers le niveau hh_1 (localisé également dans le puits réservoir) de la bande de valence. Le pic situé à très haute énergie (4,37 eV ~284 nm) est attribué à la luminescence des couches de contact en $Al_{0,6}Ga_{0,4}N$ massives. Le pic intermédiaire situé à 3,85 eV (322 nm) est plus difficile à interpréter. Comme le recouvrement des fonctions enveloppes des états hh_1 et e_1 est très faible, on pourrait penser que l'émission de ce pic intermédiaire provient de la relaxation radiative entre

niveaux excités comme e_3-hh_1 , e_3-hh_2 . Cependant, le calcul montre que l'énergie du pic (3,85 eV) ne correspond à aucune de ces transitions.

Une étude menée par Thilo Remmele et Martin Albrecht à Berlin via des mesures de micro-cathodoluminescence résolue spatialement nous donne des éléments de réponse. L'image suivante (fig 4.7) représente une cartographie de cathodoluminescence de l'échantillon E1090. Un faisceau d'électrons de haute énergie (plusieurs keV) excite très localement l'échantillon. L'émission générée est collectée et dirigée vers un spectromètre à réseau. Une caméra CCD permet de faire la cartographie d'émission de l'échantillon.

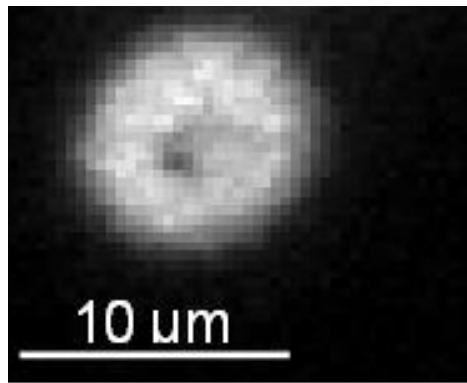


Fig. 4.7 : Image de micro-cathodoluminescence sur l'échantillon E1090.

En fixant la longueur d'onde de détection, on peut localiser les endroits qui luminescent dans une partie donnée du spectre. Il s'avère que l'émission piquée à 3,85 eV (322 nm) est très localisée et se situe à des endroits très précis sur l'échantillon centrés sur des dislocations. La figure 4.7 montre la cartographie de cathodoluminescence provenant d'un tel endroit. La densité des centres d'émission à haute énergie est de l'ordre de 10^7 par cm^2 ce qui est comparable au nombre typique de dislocations vis dans les échantillons nitrures (10^8 - 10^9 dislocations par cm^2). On peut donc supposer qu'autour de ces dislocations, le champ électrique interne se répartit de manière complètement différente dans l'hétérostructure à puits couplés. D'autre part, on ne peut exclure que l'épaisseur des couches soit localement différente de l'épaisseur nominale et localement, la barrière de couplage peut-être plus épaisse que 4 MC. D'ailleurs, l'énergie de luminescence autour de ces dislocations correspond à l'émission interbande d'un puits de quatre monocouches découplé du puits large [Tch06a]. En conséquence, le pic à 3,85 eV est attribué à la luminescence localisée du puits fin.

Spectroscopie d'absorption IR

Dans un deuxième temps, j'ai caractérisé l'échantillon E1090 par spectroscopie à transformée de Fourier pour sonder les transitions intersousbandes entre niveaux confinés en bande de conduction. Les mesures ont été réalisées à température ambiante. La figure suivante (4.8 à gauche) représente le spectre d'absorption intersousbande mesuré dans le proche infrarouge superposé au spectre simulé. La figure 4.8 à droite illustre le profil de potentiel calculé avec les niveaux d'énergie ainsi que les fonctions enveloppes correspondantes.

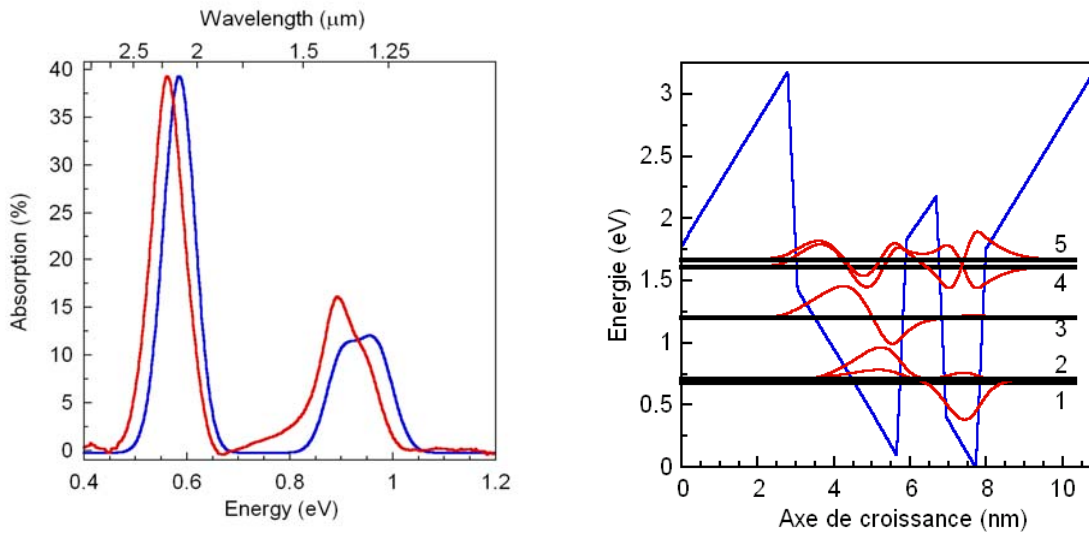


Fig. 4.8 : Spectre d'absorption intersousbande (courbe rouge) superposé à la simulation (courbe bleue) à gauche. Profil de potentiel calculé en bande de conduction ainsi que les fonctions enveloppes correspondantes (à droite).

Sur le spectre d'absorption infrarouge, on distingue deux pics polarisés TM (p). Le premier se situe à basse énergie, à 560 meV (2,2 μm) avec un élargissement total à mi-hauteur (FWHM) de 85 meV. Cette absorption est attribuée à la transition e_1e_3 localisée dans le puits large (puits réservoir). On observe un deuxième pic structuré à haute énergie, à 0,9 eV (1,38 μm) dont l'élargissement est plus important (FWHM=105 meV). Ce deuxième pic structuré est attribué aux transitions e_2e_4 et e_2e_5 localisées dans le puits étroit (puits actif). En se basant sur les simulations confrontées aux énergies des pics d'absorption, nous estimons la séparation

énergétique entre les deux premiers niveaux à $\Delta_{12}=28$ meV. Cette transition e_1e_2 est difficile à sonder puisqu'elle se situe dans l'infrarouge lointain ($\lambda\sim 45$ μm), région du spectre où le substrat (saphir) de l'échantillon est complètement opaque. En utilisant l'amplitude mesurée des absorptions e_1e_3 et e_2e_4 , e_2e_5 ainsi que leurs sections efficaces calculées respectives, on peut estimer la concentration de porteurs dans les deux premières sousbandes. Elle est égale à $3,4\times 10^{12}$ cm^{-2} et $1,7\times 10^{12}$ cm^{-2} dans la première et la seconde sousbande respectivement. Le niveau de Fermi est directement relié à la densité de porteurs par la relation :

$$n_i = \frac{m^*kT}{\pi\hbar^2} \ln\left(1 + \exp\left(\frac{e_{Fermi} - e_i}{kT}\right)\right)$$

Par le rapport des populations des deux premiers niveaux, on peut estimer la position du niveau de Fermi.

$$\frac{n_2}{n_1} = \frac{\ln\left(1 + \exp\left(\frac{(e_{Fermi} - e_1) - \Delta_{12}}{kT}\right)\right)}{\ln\left(1 + \exp\left(\frac{e_{Fermi} - e_1}{kT}\right)\right)} \approx \frac{1}{2}$$

Graphiquement, on trouve que le niveau de Fermi se situe 1,6 meV au dessus du deuxième niveau d'énergie.

Remarquons finalement que les simulations ne permettent pas d'interpréter l'épaule autour de 0.8 eV du pic à haute énergie qui ne peut être attribué à aucune transition. Il pourrait provenir de l'augmentation locale de l'épaisseur du puits étroit (puits actif) expliquant la position à plus basse énergie de l'absorption intersousbande e_2e_4 et e_2e_5 .

4.2.4) *Etude du transfert de charges*

Fabrication du dispositif

Pour basculer les charges du puits réservoir vers le puits actif, il faut pouvoir appliquer une tension aux bornes de la structure. Les étapes technologiques suivantes ont été réalisées à l'Université Technique de Vienne par Gianmauro Pozzovivo, Sébastien Golka et Gottfried Strasser. L'échantillon a été gravé en utilisant une gravure sèche ICP-RIE chlorée jusqu'à la couche AlGaN inférieure pour former des mesas. Des mesas carrées de 500×500 (petit), 700×700 (moyen) et 1000×1000 (grand) μm^2 ont été réalisés. Des contacts électriques Ti/Al/Ti/Au ont été déposés sur les couches supérieure et inférieure d'AlGaN dopées. Pour que ces contacts soient de type ohmique, un recuit de l'échantillon est effectué pendant 30 secondes à 750°C. La Fig. 4.9 montre le schéma et une photo du dispositif réalisé.

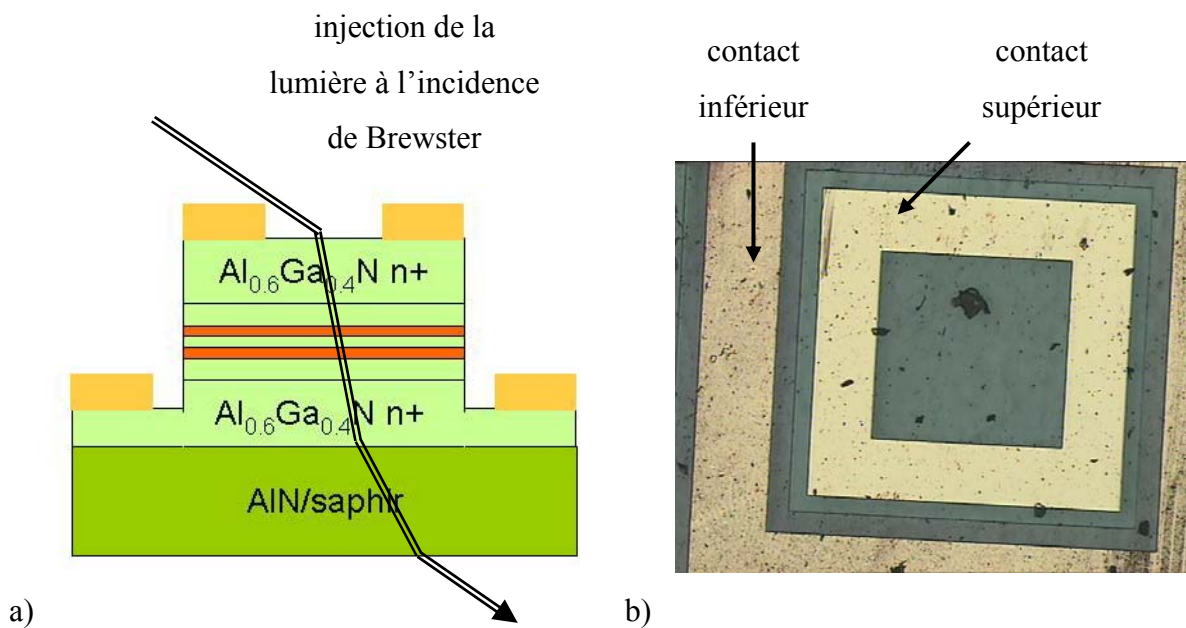


Fig. 4 9 : Structure de l'échantillon à puits couplés GaN/AlN, b) photographie du dispositif avec son contact supérieur électrique ouvert.

Dans les hétérostructures de nitrure, la métallisation de la surface provoque une courbure de la bande de conduction qui peut induire un dépeuplement de la région active. Pour contourner ce phénomène, Laetitia Doyennette a conçu un masque de métallisation particulier. Le centre des contacts métalliques supérieurs n'est pas métallisé comme le montre la photo du dispositif (Fig 4.9.b). Les contacts ouverts permettent également les mesures de spectroscopie avec une illumination à l'incidence de Brewster.

Les caractéristiques I-V du dispositif présentées sur la Fig. 4.10 montrent un comportement dissymétrique du type diode dû à la nature Schottky du contact supérieur. La résistance du composant aux tensions positives est de 174 ; 207 et 241 Ω pour les grands, moyens et petits mesas, respectivement.

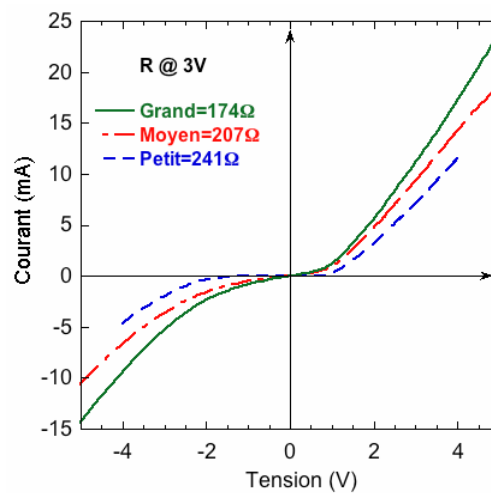


Fig. 4 10 : Caractéristiques I-V pour trois contacts de tailles différentes.

Mise en évidence du transfert tunnel

Pour mesurer le transfert tunnel des électrons du puits réservoir vers le puits actif nous allons sonder l'absorption intersousbande de ces deux derniers simultanément. En appliquant une tension périodique aux bornes d'un mesa, on varie alternativement la densité de porteurs de l'état e_1 vers l'état e_2 , et donc l'absorption intersousbande de chacun des deux puits. Pour mesurer le spectre de transmission différentielle, nous utilisons un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) fonctionnant en mode pas à pas. La lumière blanche du FTIR traversant le mesa est détectée par une photodiode InGaAs dont la coupure spectrale se situe à 2,6 μm . Le composant est polarisé à l'aide d'un générateur de signaux arbitraires dont la tension alternative positive ou négative peut aller de 0 à 5V (10 V, 20 V et 30 V) à une fréquence de 90 kHz.

Le signal de transmission détecté par la photodiode InGaAs est démodulé à l'aide d'une détection synchrone Stanford (dont la fréquence de coupure à -3 dB est de 100 kHz) pour extraire la composante qui varie à la même fréquence que la tension appliquée (90 kHz).

Sur la figure 4.11 à gauche, sont représentés les spectres de transmission différentielle de l'échantillon réalisés à température ambiante sous une tension crête à crête 0/+10 V et 0/-5 V ainsi que la simulation du spectre de modulation. A droite sont représentés les spectres de transmission différentielle de l'échantillon sous une tension crête à crête 0/+10 V, 0/+20 V et 0/+30 V. La simulation du spectre de modulation est obtenue par la soustraction de la simulation du spectre d'absorption sans tension par la simulation du spectre d'absorption lorsque l'on applique un champ électrique linéaire de 20,7 kV/cm sur toute la structure active. Ce champ électrique correspond à une tension de 0,33 Volt appliquée aux bornes de la région active en accord avec les conditions expérimentales utilisées. Nous verrons par la suite que la résistance des couches de contact en AlGaIn (220 Ω) induit une chute de potentiel aux bornes de la structure active par rapport à la tension appliquée : ainsi, pour une tension de 10 Volts appliquée aux bornes de l'échantillon, seulement 0,33 Volt sont appliqués aux bornes de la région active.

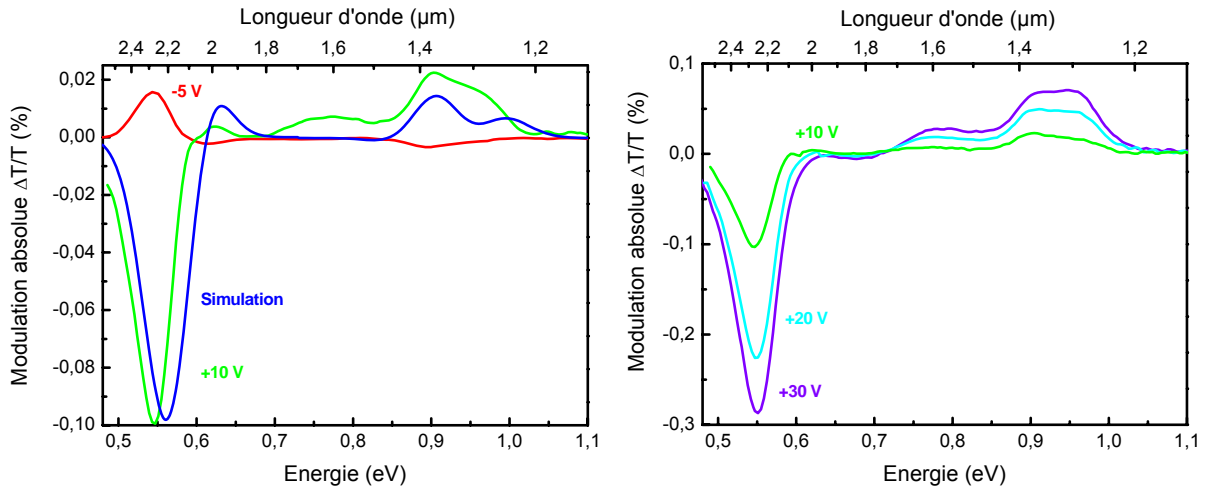


Fig. 4.11 : Spectres de transmission différentielle de l'échantillon E1090.

La variation de transmission $\Delta T/T$ sous l'application de la tension externe montre deux résonances : l'une piquée à $\lambda=2,3 \mu\text{m}$ et l'autre dans une bande spectrale allant de $1,2$ à $1,67 \mu\text{m}$. Pour une tension positive, le pic négatif à $2,3 \mu\text{m}$ correspond à une diminution de l'absorption e_1e_3 due au dépeuplement du puits réservoir, alors que le signal positif à $\lambda\sim 1,2-1,67 \mu\text{m}$ correspond à une augmentation de l'absorption liée aux transitions e_2e_4 et e_2e_5 dans le puits actif. Pour s'assurer que les deux pics soient de signe opposé, j'ai isolé spectralement les deux signaux. En utilisant un filtre Germanium, j'ai mesuré la quantité de signal modulé ainsi que la phase du pic situé à basse énergie. La phase du signal étant fixée, j'ai éteint la source lumineuse large bande et retiré le filtre en Germanium puis utilisé une source laser à $\lambda=1,34 \mu\text{m}$. Cette fois ci, la phase du signal de transmission différentielle correspondant au pic situé à haute énergie a tourné de 180° .

Le fait que les deux résonances aient un signe contraire et évoluent de manière opposée en appliquant une tension électrique démontre qu'il y a un transfert de charges local entre les deux puits. De plus, lorsque l'on inverse le signe de la tension appliquée, les signes des deux pics de transmission différentielle changent également.

On remarque sur la simulation du spectre de transmission différentielle un décalage Stark de la transition e_1e_3 . L'effet Stark quantique sur les transitions intersousbandes correspond à un décalage de la résonance intersousbande lorsque l'on applique un champ électrique. Sur le

spectre de transmission différentielle, cet effet se manifeste de deux manières : tout d'abord, par un décalage spectral du pic de modulation par rapport au pic d'absorption initial, mais aussi par l'apparition au pied du pic de modulation d'une zone où le signal est de signe opposé. Cet effet est relativement fort sur le spectre de transmission différentielle simulé mais peu prononcé dans le spectre expérimental. La tension appliquée aux bornes de la structure est certainement encore trop faible pour voir apparaître cet effet.

4.2.5) Application à la modulation électro-optique

Ce composant original peut être appliqué à la modulation électro-optique pour les télécommunications par fibres optiques. L'état 'ON' correspond à la situation où le modulateur est transparent à $\lambda \sim 1,3 \mu\text{m}$, et l'état 'OFF' à la situation où il absorbe.

La modulation absolue $\Delta T/T$ du dispositif a été calibrée pour différentes tensions en utilisant un laser continu Nd : YVO₄ émettant à $1,34 \mu\text{m}$ et un détecteur InGaAs. L'expérience a été réalisée dans une configuration où la lumière traverse l'échantillon à l'incidence de Brewster. Dans ce cas, l'épaisseur optique de la région active est seulement de $0,16 \mu\text{m}$ ce qui résulte en une faible valeur de l'absorption (à $\lambda = 2,3 \mu\text{m}$ elle n'est que de 0,68 %). Les mesures de modulation à $\lambda = 2,3 \mu\text{m}$ avec une polarisation de 30 V donnent une valeur de $\Delta T/T \sim 0,3 \%$. Ceci correspond à une profondeur de modulation de 44 % (2.4 dB) de l'absorption disponible, ce qui signifie que presque la moitié des charges (44 %) se situant dans le puits réservoir a basculé vers le puits actif.

Mesures de modulation en guide d'onde

Pour exalter la modulation $\Delta T/T$, il est nécessaire d'augmenter la longueur d'interaction de la lumière avec le milieu actif. Pour ce faire, j'ai fabriqué un guide d'onde planaire en polissant les deux facettes d'un mesa à 90° . La lumière issue d'une diode laser à $\lambda = 1,34 \mu\text{m}$ est injectée directement dans la structure active grâce à une fibre optique lentillée. Les mesures de modulations ont été réalisées sur le banc de mesure d'optique guidée d'Anatole Lupu dans notre laboratoire.

Dans cette première série d'expériences, le guide d'onde n'a pas été optimisé. La lumière est seulement guidée suivant la direction de croissance z mais se propage en divergeant dans le plan xy . De plus, les épaisseurs des couches guidantes n'ont pas été optimisées pour maximiser le recouvrement du mode optique avec la région active. Malgré ces défauts de conception, nous avons pu mesurer une modulation $\Delta T/T \sim 3\%$ pour une longueur d'interaction de $500\ \mu\text{m}$ et une tension de 10 Volts, soit 10 fois supérieure à celle mesurée à l'incidence de Brewster. Ainsi on peut s'attendre à une forte exaltation de la modulation pour un dispositif avec un guide d'onde optimisé.

Il faut également souligner que le modulateur que j'ai présenté est absorbant à $\lambda \sim 1,3\ \mu\text{m}$ sans tension appliquée car la deuxième sousbande est déjà peuplée. Ainsi, en propagation guidée, les pertes de propagation sont très grandes. Pour en faire un composant utilisable pour le traitement des signaux optiques, la structure active demande à être optimisée de façon à ce que la deuxième sousbande, c'est-à-dire le niveau fondamental se situant dans le puits étroit, soit vide d'électrons. De cette manière, à tension nulle, le modulateur en propagation guidée serait transparent aux longueurs d'onde des télécommunications.

Réponse en fréquence

Finalement, nous avons étudié la vitesse de fonctionnement du modulateur. Les mesures de réponse en fréquence, c'est-à-dire l'évolution de la profondeur de modulation en fonction de la fréquence du champ électrique alternatif appliqué ont été faites sur le mesa de taille $700 \times 700\ \mu\text{m}^2$. Pour cela, nous avons utilisé un laser continu Nd :YVO₄ à la longueur d'onde de $\lambda = 1,34\ \mu\text{m}$, une photodiode InGaAs rapide ($f_c = 200\ \text{MHz}$), une détection synchrone Stanford rapide ($f_c = 200\ \text{MHz}$), et un générateur Agilent de signaux arbitraires ($f_c = 80\ \text{MHz}$). Sur la figure suivante (4.12) est représentée la courbe de modulation en fonction de la fréquence pour une tension appliquée de 10 V.

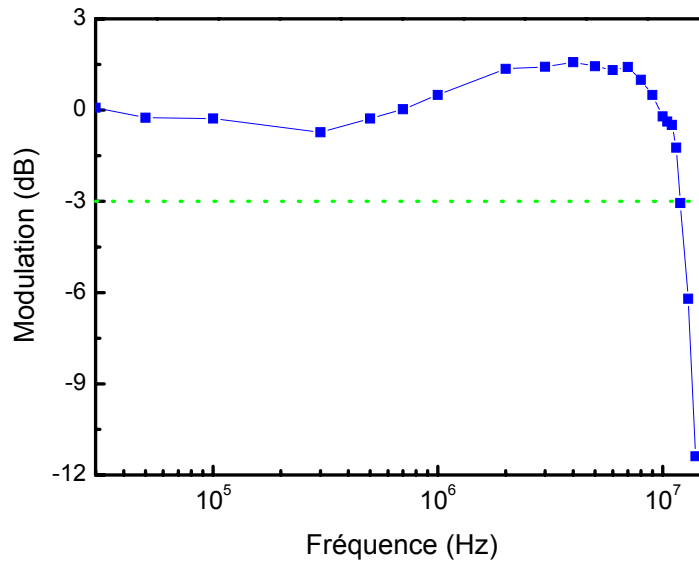


Fig. 4.12 : Réponse en fréquence sous une tension de 10 V de la modulation d'un laser à $\lambda=1,34 \mu\text{m}$ pour un mesa de taille $700 \times 700 \mu\text{m}^2$.

La fréquence de coupure à -3 dB est 11,5 MHz. Cette fréquence est essentiellement limitée par la constante RC (Résistance×Capacité) du dispositif. Pour augmenter la fréquence de coupure, il est nécessaire de réduire cette constante RC . En ce qui concerne la résistance R , elle est essentiellement liée à la résistance des couches de contact $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{N}$. Pour diminuer leur résistance, on pourrait augmenter le dopage de celle-ci. Cependant, le dopage du matériau AlGaN est d'autant plus difficile que la concentration d'Al est grande, puisque le niveau du dopant est de plus en plus enterré dans la bande interdite. Une meilleure solution consiste à réduire la concentration en aluminium dans les couches de contact pour diminuer leur résistance (un compromis avec la courbure de bande doit être trouvé). La capacité du dispositif est proportionnelle à sa surface et inversement proportionnelle à son épaisseur. Pour la diminuer, deux approches sont envisageables. La première serait de réduire la surface du dispositif, donc la taille de ce dernier (l'approche que nous avons retenue). La seconde serait d'augmenter l'épaisseur de la structure active (en augmentant, par exemple, le nombre de périodes dans la région active).

Deuxième génération de modulateurs

Pour augmenter les performances du modulateur, nous avons fabriqué des mesas beaucoup plus petits tout en gardant la même structure active (E1090). Le nouveau dessin du masque de gravure ainsi que les étapes technologiques ont été réalisés par l'équipe de l'université de Vienne. Pour étudier les performances des nouveaux dispositifs en fonction de la surface active, quatre tailles de mesa ont été choisies (90×90 , 50×50 , 30×30 et $15 \times 15 \mu\text{m}^2$). Comme pour les grands mesas décrits précédemment, la partie centrale du contact supérieur n'est pas métallisée. Pour faciliter la connexion électrique, un contact déporté est utilisé. Une couche de Si_3N_4 est insérée entre le contact métallique supérieur et le plan de masse inférieur pour limiter la capacité parasite. La deuxième génération de modulateurs est illustrée sur les photos (4.13) ci-dessous :

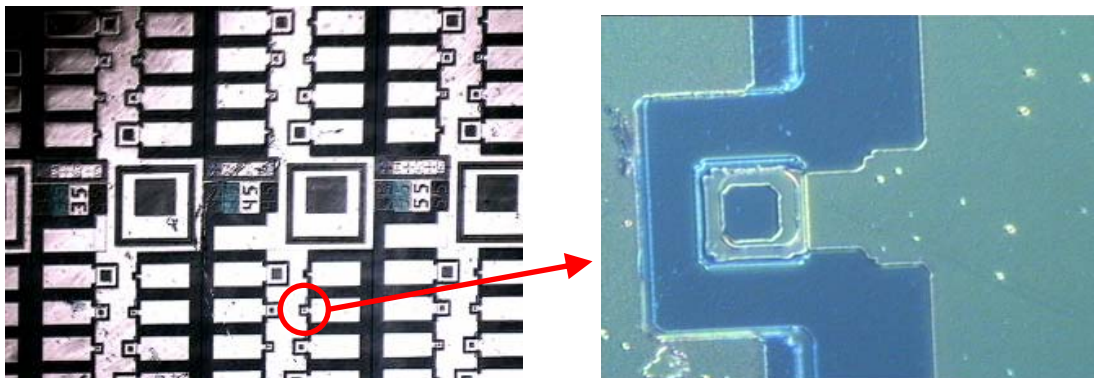


Fig. 4.13 : Photographie de l'échantillon après les étapes technologiques ainsi qu'un zoom sur le mesa $30 \times 30 \mu\text{m}^2$.

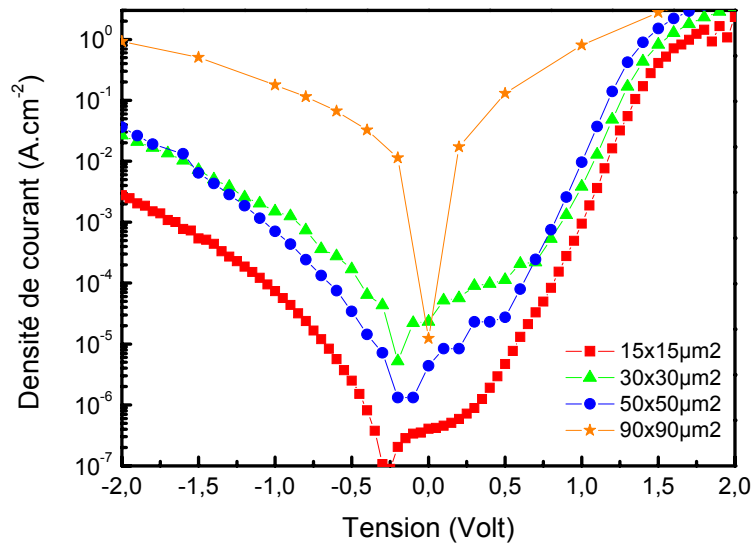


Fig. 4.14 : Caractéristiques I-V pour toutes les tailles de mesas.

Sur le graphe 4.14 sont représentées les caractéristiques I-V pour toutes les tailles de dispositif. Elles montrent une caractéristique dissymétrique comme pour les grands mesas, et le courant de fuite est de plus en plus petit lorsque la taille des mesas diminue.

Nous avons testé la réponse en fréquence pour les différentes tailles de mesas. Pour cela, nous avons utilisé le montage schématisé sur la figure 4.15 constitué d'un laser continu Nd : YVO₄ de longueur d'onde $\lambda=1,34 \mu m$, et d'un banc de mesure hyperfréquence. Le banc hyperfréquence est constitué d'un synthétiseur HP 20 GHz permettant d'appliquer des signaux sinusoïdaux avec une puissance de 13 dBm, d'un détecteur InGaAs 32 GHz et d'un analyseur de spectre Agilent 50 GHz. La lumière laser est injectée dans les micro-mesas grâce à une fibre optique lentillée comme le montre la figure 4.16.

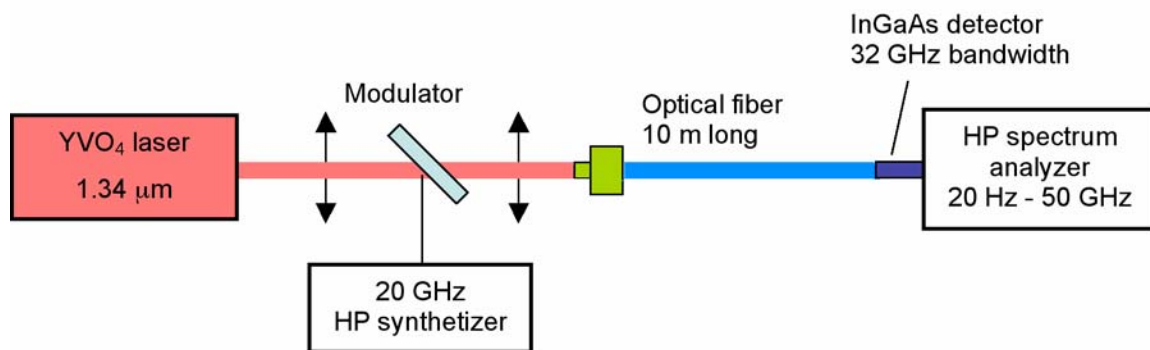


Fig. 4.15 : Schéma du banc de mesure hyper fréquence.



Fig. 4 16 : Photographie du montage utilisé pour injecter la lumière dans les micro-mesas.

Sur la figure suivante (fig 4.17) sont représentées les courbes de réponse en fréquence pour les différentes tailles de mesas. Lorsque la taille des mesas diminue, la réponse en fréquence augmente. Pour le mesa ayant la plus petite taille ($15 \times 15 \mu\text{m}^2$), la coupure en fréquence à -3 dB est 1,4 GHz. L'étude menée au laboratoire par Nasrin Keirodin dans le cadre de sa thèse a montré que la vitesse du plus petit dispositif n'est pas limitée par sa constante RC intrinsèque mais par la capacité parasite induite par les contacts métalliques et les micros-fils de soudure [Kei08]. A partir des simulations, nous estimons qu'en diminuant la capacité parasite, le modulateur atteindrait plusieurs GHz. Pour cela, il est nécessaire de connecter électriquement les mesas avec des lignes d'accès radio fréquence (RF) adaptées en impédance à 50Ω .

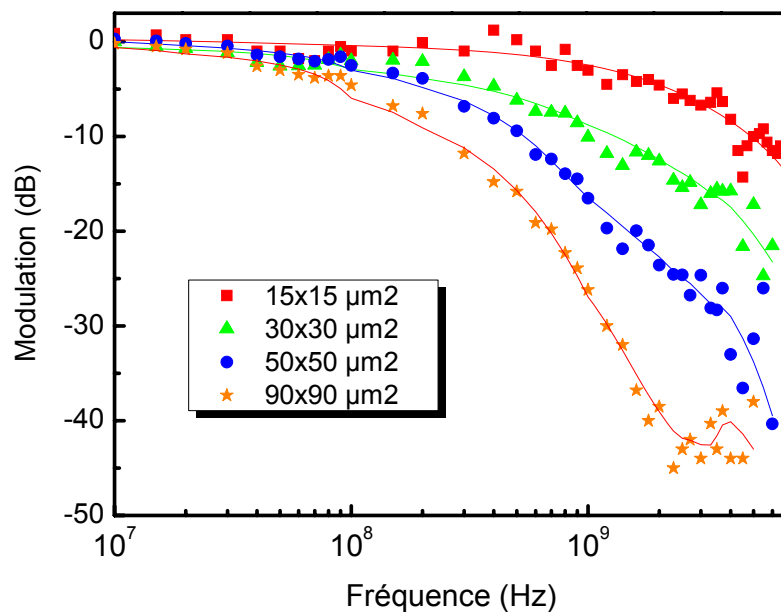


Fig. 4.17 : Courbes de réponse en fréquence des différentes tailles de mesa.

Conclusion

Dans cette partie, j'ai mis en évidence le transfert tunnel des électrons entre deux puits quantiques GaN couplés par une barrière AlN de quatre monocouches. Les électrons basculent d'un puits à l'autre sous l'application d'une tension électrique aux bornes de la structure. Sous une tension de 30 Volts (1 Volt appliqué aux bornes de la région active), 44 % des charges présentes dans le puits réservoir traversent la barrière AlN pour se rendre dans le puits actif absorbant aux longueurs d'onde des télécommunications. Basé sur ce principe, nous avons fabriqué un modulateur électro-optique fonctionnant à température ambiante et à $\lambda \sim 1,3 \mu\text{m}$ de longueur d'onde. En utilisant des mesas de taille micrométrique, nous avons obtenu une fréquence de coupure à -3 dB aussi élevée que 1,4 GHz. Cependant, la faible longueur d'interaction de la lumière avec le composant limite la modulation absolue $\Delta T/T$ à 0,3 %.

Pour améliorer les performances du modulateur, il est nécessaire d'insérer la structure active dans un guide d'onde pour augmenter la longueur d'interaction de la lumière avec les puits quantiques. Cela augmentera la modulation absolue ($\Delta T/T$).

Intrinsèquement, le transfert tunnel des électrons à travers une barrière de quatre monocouches est très rapide. Le temps de transfert dépend exponentiellement de l'épaisseur de la barrière ainsi que de sa hauteur [Deva90]. Nous estimons ce temps à quelques picosecondes signifiant qu'une fréquence de modulation supérieure à plusieurs dizaines de GHz pourrait être atteinte. Ainsi, la limitation en fréquence du composant est essentiellement extrinsèque, liée à la constante RC et non pas intrinsèque.

Finalement, pour réduire la capacité et donc augmenter la fréquence de coupure, nous avons besoin de connecter le dispositif avec des pointes radio fréquence (RF) sur des lignes d'accès adaptées en impédance 50Ω . Les simulations prédisent que dans cette configuration, le modulateur pourrait atteindre une fréquence de coupure supérieure à 10 GHz.

4.3) Modulateur tout optique

Je présente ici l'étude d'un modulateur tout-optique reposant sur l'absorption intersousbande photoinduite de puits quantiques GaN/AlN. Des modulateurs reposant sur le même principe ont fait preuve de leur efficacité à grande longueur d'onde infrarouge (10 μm) dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs [Ols89], [Yan90], [Juju91]. En insérant la couche active dans un guide d'onde, le taux d'extinction mesuré à l'aide d'un laser CO₂ atteint 25 dB (>99 %) sous l'irradiation d'une diode laser à 827 nm avec seulement 45 mW de puissance. La bande passante (40 MHz à -3 dB) de ce modulateur tout-optique GaAs est limitée par le temps de recombinaison interbande et peut être augmentée à 200 MHz en générant des centres de recombinaison dans la bande interdite par implantation ionique [Bou92].

L'objectif de mon étude est de moduler la lumière d'un laser télécom en résonance avec la transition e_1e_2 . Pour ce faire, j'utilise un laser UV pour générer des paires électron-trou qui vont s'accumuler dans l'état fondamental de conduction et de valence du puits quantique GaN/AlN. L'absorption intersousbande étant proportionnelle à la densité de porteurs, on peut moduler la transmission de l'échantillon en modulant l'intensité du laser UV.

4.3.1) Echantillon E935

Pour l'expérience de modulation tout-optique, j'ai choisi d'utiliser l'échantillon E935 car celui-ci présente une largeur de raie intersousbande remarquablement faible pour des puits quantiques GaN/AlN (~40 meV).

AlN	3 nm	20 périodes
GaN	5 MC	
AlN	3 nm	
GaN nid	~560 nm	
AlN	~90 nm	
AlN	1 μm	
Saphir		

Fig. 4.18 : Structure de l'échantillon E935.

L'échantillon est constitué de vingt périodes de puits quantiques de 5 monocouches d'épaisseur (1 monocouche=0,26 nm) séparé par des barrières d'AlN de 3 nm d'épaisseur. La structure est épitaxiée sur un quasi substrat d'un micron d'AlN sur saphir. Entre la couche d'un micron d'AlN et les puits quantiques est insérée une couche tampon de 560 nm de GaN non dopée.

4.3.2) Spectroscopie

Le spectre de photoluminescence de l'échantillon E935 est représenté sur la figure 4.19 à gauche. On observe deux pics d'émission, le premier à 3,46 eV (~358 nm) et le deuxième à 3,75 eV (~331 nm). Le premier pic à basse énergie est attribué à l'émission des 560 nm de GaN massif de la couche tampon tandis que le deuxième pic est attribué à l'émission des puits quantiques GaN de 5 monocouches d'épaisseur [Tch06a].

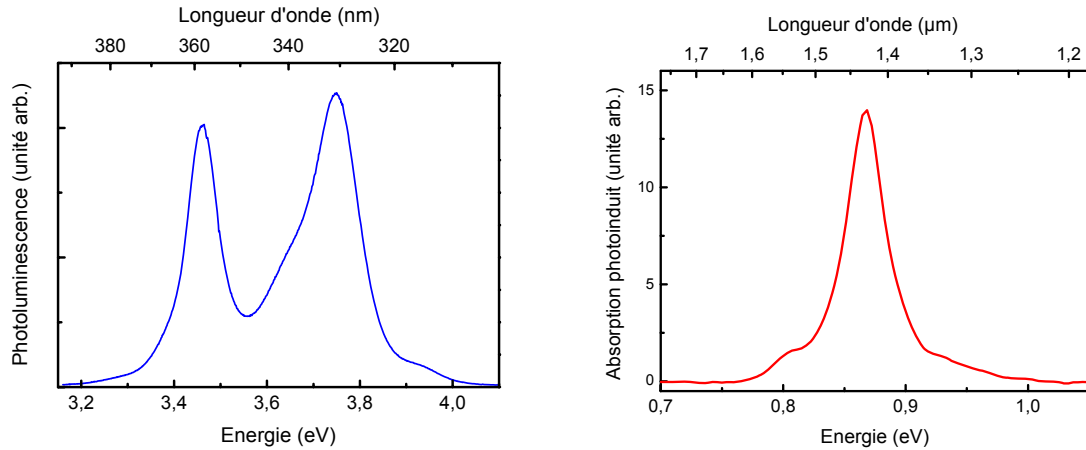


Fig. 4.19 : Spectre de photoluminescence (à gauche) et d'absorption photoinduite (à droite) de l'échantillon E935.

La figure 4.19 de droite présente le spectre d'absorption intersousbande photoinduite de l'échantillon E935 en polarisation TM (p). La longueur d'onde d'excitation UV est 244 nm. La mesure a été effectuée en configuration zigzag, la lumière passant 8 fois à travers la structure active. Dans cette configuration, la modulation absolue est seulement $\Delta T/T=5 \times 10^{-5}$ pour une puissance du laser pompe UV de 200 mW focalisée sur une surface de 1 mm^2 . Le pic d'absorption intersousbande photoinduit de l'échantillon E935 est observé à 0,868 eV ($\sim 1,43 \text{ } \mu\text{m}$) avec un élargissement total à mi-hauteur record pour les nitrures de 40 meV ($\Delta E/E \sim 4,6 \%$).

4.3.3) Modulateur tout-optique

Pour augmenter la profondeur de modulation, j'ai utilisé une propagation guidée de la lumière infrarouge dans le plan des couches avec une polarisation TM (p), ceci afin de bénéficier de la meilleure interaction possible de la lumière avec les transitions intersousbandes. Une difficulté est que l'échantillon n'a pas été conçu au départ pour cette expérience. Ainsi, le recouvrement du mode optique dans la couche à puits quantiques est faible, seulement 1 %. La répartition du mode optique dans l'échantillon est représentée sur la figure 4.20:

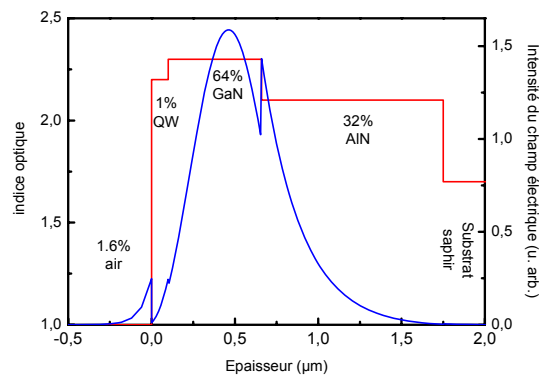


Fig. 4.20 : Répartition du mode optique dans la structure de l'échantillon E935.

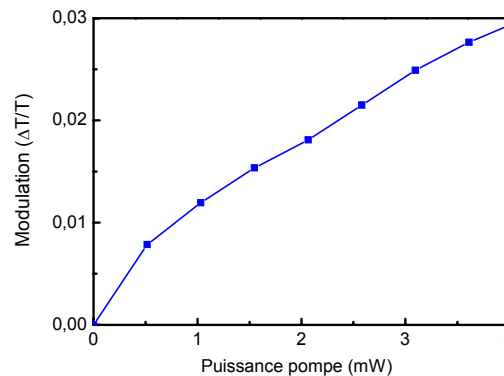


Fig. 4.21 : Evolution du signal de modulation en fonction de la puissance du laser UV.

Sur la figure 4.21 est représentée la modulation absolue en fonction de la puissance du laser pompe UV. On observe une évolution à peu près linéaire entre la puissance du laser pompe et la modulation. Pour seulement 4 mW de laser pompe UV, la modulation est de 3 %. Pour les puissances plus élevées (au-delà de 300 mW), j'obtiens un régime de saturation où la modulation maximale est de 5 %. En fait, l'expérience est délicate car lorsque la puissance augmente, l'échantillon chauffe, se dilate et bouge (et le support d'échantillon également) et la lumière infrarouge n'est plus correctement injectée dans le guide d'onde. De ce fait, la modulation est largement sous-estimée à forte puissance. De plus, une grande partie du mode optique se propage dans la couche d'AlN d'un micron d'épaisseur ce qui limite fortement la modulation. En optimisant ces paramètres, la profondeur de modulation serait nettement supérieure à 5 % [Juju91].

Je me suis ensuite focalisé sur l'étude de la réponse en fréquence du modulateur tout-optique. *A priori*, la vitesse du modulateur est limitée par le temps de recombinaison interbande (radiatif et non-radiatif). Dans les puits quantiques GaN/AlN, le temps de recombinaison radiatif des porteurs dépend du recouvrement des fonctions enveloppes e_l et hh_l qui varie en fonction de l'épaisseur du puits quantique. Dans des puits quantiques GaN de 8 monocouches d'épaisseur et des barrières Al_{0,1}Ga_{0,9}N, des valeurs comprises entre 0,1 et 3 ns ont été mesurées [Gal01], [Tal01], [Gil02]. Dans des puits quantiques GaN de 10 monocouches avec des barrières AlN de 11 monocouches, un temps de recombinaison radiatif de ~270 ps a été rapporté [Nam01].

En prenant ces valeurs pour faire une estimation grossière, le modulateur tout-optique GaN devrait présenter une réponse en fréquence entre 300 MHz et 3 GHz.

Pour tester expérimentalement la réponse fréquentielle, j'ai réalisé une expérience de modulation photoinduite résolue temporellement. J'ai utilisé un laser impulsif Nd : YAG quadruplé à 266 nm de longueur d'onde. La durée d'impulsion est de 2 ns pour une cadence de 33 kHz. La résolution temporelle de mon expérience est donc seulement de 2 ns. La puissance moyenne est de 3 mW ce qui donne des puissances crête de 30 Watt. La mesure s'effectue grâce à un oscilloscope rapide permettant de moyenner les acquisitions.

Sur les figures suivantes (4.22) est représentée l'évolution du signal de modulation en fonction du temps (courbe rouge). L'acquisition a été moyennée 10000 fois. De manière très surprenante, on observe un temps de retour à l'équilibre de 11 μ s tandis que l'on attendait un temps autour de la nanoseconde.

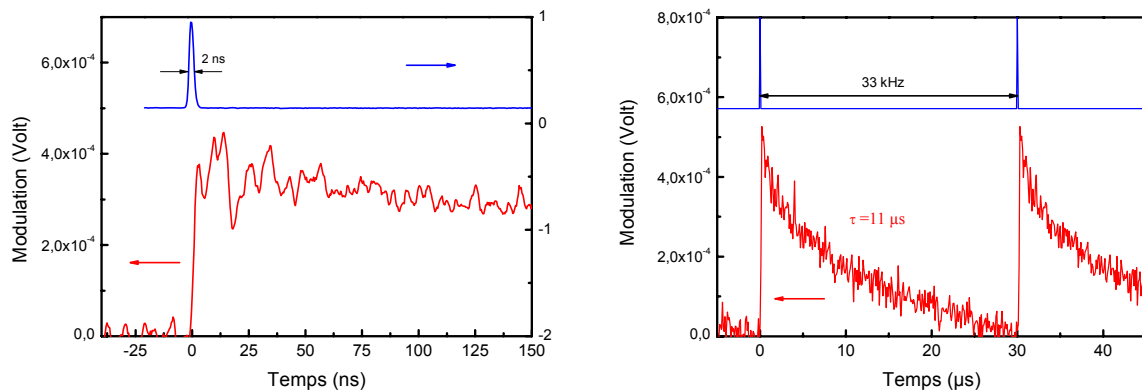


Fig. 4.22 : Evolution du signal de modulation tout-optique en fonction du temps.

Pourquoi le temps de retour à l'équilibre est-il si long ? On peut penser que lorsque l'on pompe la structure à très haute énergie (266 nm=4,66 eV), on excite également les défauts et les impuretés présents dans la bande interdite des matériaux constituant l'hétérostructure. Les électrons excités sont piégés dans les puits quantiques et mettent beaucoup plus de temps à relaxer que le temps de recombinaison des paires électrons-trous. Ce temps est d'autant plus long que l'électron est délocalisé spatialement par rapport « au lieu de départ ».

Le temps de retour à l'équilibre très long limite l'utilité pratique du modulateur tout-optique dans les nitrures. Cependant, l'étude mérite d'être poursuivie pour mieux comprendre les différents mécanismes de relaxation des porteurs, ce qui est indispensable pour la réalisation de composants rapides. Le taux d'extinction du modulateur tout-optique pourrait être fortement amélioré en concevant une structure guide d'onde mieux adaptée.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai poursuivi l'étude menée par Maria Tchernycheva sur le couplage des puits quantiques nitrures développée dans le cadre de sa thèse [Tch06b]. J'ai mis en évidence pour la première fois, le transfert tunnel des électrons entre deux puits quantiques GaN couplés par une très fine barrière AlN [Nev07b]. Le transfert des électrons entre les deux puits s'effectue sous l'application d'un champ électrique. Puisque l'absorption intersousbande est directement proportionnelle au nombre de porteurs dans la sousbande fondamentale, ce phénomène pourrait être utilisé pour la modulation optique.

Basé sur ce principe, nous avons fabriqué le premier modulateur électro-optique intersousbande fonctionnant aux longueurs d'onde des télécommunications et à température ambiante. En utilisant des micro-dispositifs, notre modulateur atteint la vitesse de 1,4 GHz à -3 dB, avec une profondeur de modulation de 44 % [Kei08]. L'optimisation du composant en terme de profondeur de modulation et de réponse en fréquence est poursuivie par Nasrin Keirodin dans le cadre de sa thèse.

A la fin de ce chapitre, j'ai présenté brièvement un autre type de modulateur basé sur la modulation induite par un photopompage interbande. De manière surprenante, ce modulateur a une réponse en fréquence relativement lente (~100 kHz), mais l'étude mérite d'être poursuivie pour mieux comprendre les mécanismes de relaxation dans les hétérostructures GaN/AlN.

Chapitre 5

Emission des boîtes quantiques GaN/AlN

Les boîtes quantiques de semiconducteurs sont des nanostructures contenant plusieurs dizaines de milliers d'atomes, dans lesquelles le confinement tridimensionnel des porteurs conduit à un spectre énergétique discret, comparable à celui d'un atome unique. C'est pour cette raison qu'on les appelle des « atomes artificiels ». La densité d'états discrète de ces nano-objets à zéro dimension a stimulé de nombreuses études allant de la fabrication de lasers sans seuil [Ara82], [Str06] à la génération de photons uniques dans des états intriqués en polarisation [San02], [Ste06], [Yua02], en passant par la manipulation cohérente de q-bit en information quantique [Ima99], [Li03]. Le développement de ces thématiques originales en physique du solide s'est accompagné de nombreuses études fondamentales des propriétés opto-électroniques des boîtes quantiques. Il y a une dizaine d'années, la mise en oeuvre de techniques de micro-spectroscopie optique a permis d'analyser les transitions optiques interbandes à l'échelle d'une boîte unique [Marz94], [Hes94], [Gam96], [Kak04], [Rol06], [Bar06]. Ces travaux ont apporté des informations nouvelles très importantes pour la compréhension des mécanismes de relaxation des états de paire électron-trou (exciton, bi-exciton) dans les boîtes quantiques.

En ce qui concerne les composants optoélectroniques intrabandes, une des propriétés liées au confinement dans les trois directions de l'espace est la possibilité d'observer les transitions intrabandes à incidence normale car le dipôle de transition peut être orienté dans le plan des couches, contrairement au cas des puits quantiques [Bast96]. Les premiers dispositifs intrabandes à boîtes développés sont les détecteurs infrarouges. En principe, ils présentent l'avantage d'un courant d'obscurité et d'un bruit inférieur aux structures basées sur des puits quantiques [Liu03]. Les photodétecteurs à boîtes quantiques ont été démontrés dans le moyen infrarouge dans les systèmes : InAs/GaAs [Shi01], [Sau01b], [Hofe01], [Schr05],

InGaAs/GaAs [Pal03], [Lin03], InGaAs/InGaP [Jia04], InAs/InP [Pet04], InAs/AlInAs sur InP [Fink01]. Pour étendre les longueurs d'onde vers le proche infrarouge, les boîtes quantiques auto-organisées GaN/AlN sont de bons candidats grâce à la grande discontinuité de potentiel en bande de conduction ($\sim 1,75$ eV). Les premiers travaux sur la spectroscopie intrabande des boîtes quantiques GaN/AlN ont été menés au laboratoire [Mou03], [Tch05]. Nous avons également développé le premier photodétecteur à boîtes quantiques GaN/AlN fonctionnant aux longueurs d'onde des télécommunications, à $\lambda = 1,38$ μm [Doy05], [Var06]. La simulation des états électroniques de boîtes quantiques GaN/AlN a fait l'objet de plusieurs travaux [And00], [And01], [And03], [Ran03]. Néanmoins, de nombreuses propriétés fondamentales comme les mécanismes de relaxation propres aux transitions intrabandes restent mal connues dans les boîtes quantiques GaN/AlN.

Dans ce chapitre, je présente dans une première partie les caractéristiques structurales originales des boîtes quantiques GaN/AlN. Dans une deuxième partie, je mets en évidence l'émission intrabande des électrons entre les sous-niveaux ($p_z \rightarrow s$) assistée par la diffusion Raman résonante. L'émission se situe à $\lambda \sim 1,48$ μm de longueur d'onde. La largeur de raie de l'émission nous permet d'estimer le temps de cohérence des électrons $T_2 > 320$ fs.

5.1) Généralités

5.1.1) Croissance des boîtes quantiques GaN/AlN

Il existe deux méthodes pour fabriquer les boîtes quantiques GaN/AlN auto-organisées en épitaxie par jets moléculaires assistée par plasma PAMBE (*plasma assisted molecular beam epitaxy*) : le mode de croissance de Stranski-Krastanow [Stra38] et le mode de croissance de Stranski-Krastanow modifié [Gogn03], [Gogn04]. Il est également possible de faire croître les boîtes quantiques GaN/AlN auto-organisées en épitaxie par jets moléculaires, mais cette fois, par craquage de molécules d'ammoniac [Dami99]. La technique utilisée pour cette étude par l'équipe d'Eva Monroy au CEA/DRFMC est la PAMBE en mode Stranski-Krastanow.

La méthode Stranski-Krastanow consiste à faire croître du GaN sur une couche en AlN relaxée dans des conditions riches en azote. Dans ces conditions, la croissance démarre couche par couche. Lorsque l'épaisseur de GaN atteint la valeur critique $h_c = 2,2$ monocouches, une relaxation élastique des contraintes se produit par la formation d'îlots tridimensionnels [Dau97], [Wid98], [Ade02], [Bro04]. L'introduction d'un arrêt de croissance après la déposition de GaN permet d'agir sur la taille et la densité des îlots. La procédure de croissance Stranski-Krastanow modifiée utilise l'effet surfactant du gallium : du GaN déposé dans des conditions riches en Ga est recouvert d'une couche de Ga et reste bidimensionnel. La formation des îlots est initiée par un arrêt de croissance sous vide après l'évaporation de l'excès de gallium [Gogn03]. L'effet surfactant de Ga augmente la mobilité des espèces en surface de l'échantillon pendant la croissance, ce qui conduit à la formation de boîtes assez grosses et de faible densité. Dans le but de réduire au maximum la taille des boîtes, la première méthode a été choisie pour la fabrication des échantillons étudiés durant ma thèse. Dans les deux méthodes, les dimensions (hauteur et diamètre) et la densité des boîtes dépendent des facteurs suivants [Gui06] :

- i) la quantité de GaN déposée,
- ii) la température du substrat,
- iii) la durée de l'arrêt de croissance (les effets de mûrissement (*Ostwald ripening*)),
- iv) le pourcentage d'AlN dans la couche tampon.

Le dopage silicium est introduit pendant la croissance des couches de GaN. Le niveau du dopage est préalablement calibré en fonction de la température de la cellule Si par des mesures Hall sur des couches GaN micrométriques.

5.1.2) La forme des boîtes

Les boîtes quantiques de GaN ont une forme de pyramide hexagonale tronquée où les facettes $\{10-13\}$ sont inclinées de $\sim 30^\circ$ par rapport au plan des couches [Cha04]. Les boîtes reposent sur une couche de mouillage de 2 monocouches atomiques d'épaisseur. La figure 5.1 illustre la géométrie des boîtes quantiques. Elle représente une image TEM haute résolution (reproduite de la référence [Gogn04]) ainsi qu'une représentation schématique d'une boîte quantique GaN.

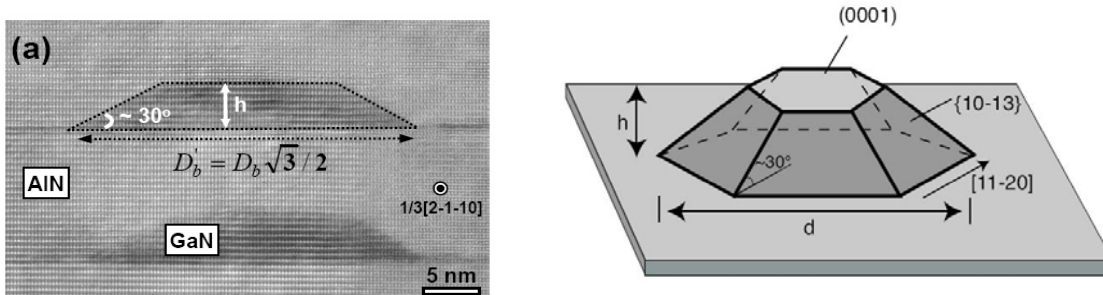


Fig. 5.1 : A gauche : image TEM haute résolution des boîtes quantiques GaN/AlN (d'après [Gogn04]), à droite : représentation schématique d'une boîte quantique GaN/AlN.

5.1.3) Le confinement quantique dans les boîtes GaN/AlN

Le calcul de la structure électronique dans les boîtes quantiques GaN/AlN tenant compte des contraintes et du champ électrique interne a été étudié par Andreev *et al.* [And00], [And01], [And03] en utilisant le formalisme $k.p$. Ranjan *et al.* [Ran03] ont complété les résultats d'Andreev en utilisant la méthode des liaisons fortes et le traitement auto-cohérent pour tenir compte de l'écrantage du champ interne par les porteurs. Nous allons rappeler brièvement les

principaux résultats de ces calculs. Les électrons et les trous dans une boîte sont spatialement séparés par le champ interne (surtout pour les boîtes quantiques de hauteur importante), de sorte que les électrons sont confinés près du sommet de la pyramide tandis que les trous sont localisés en bas de la pyramide et partiellement dans la couche de mouillage. La figure 5.2 à gauche, issue de la référence [And03], illustre la distribution de la densité de probabilité $|\Psi(r)|^2$ pour l'état fondamental des électrons et des trous lourds dans une boîte quantique GaN de 1,8 nm de hauteur (au-dessus de la couche de mouillage) et de 6,9 nm de diamètre. Le confinement latéral des trous est renforcé par la distribution du champ piézoélectrique autour des facettes. La même figure à droite présente les niveaux d'énergie ainsi que le profil de potentiel suivant une ligne parallèle à l'axe de croissance c , passant par le centre de la boîte. Elle montre que pour une boîte de 1,8 nm de hauteur, le niveau fondamental électronique est encore confiné dans la partie du potentiel en V , mais il sera confiné par les interfaces supérieure et inférieure pour des boîtes plus petites.

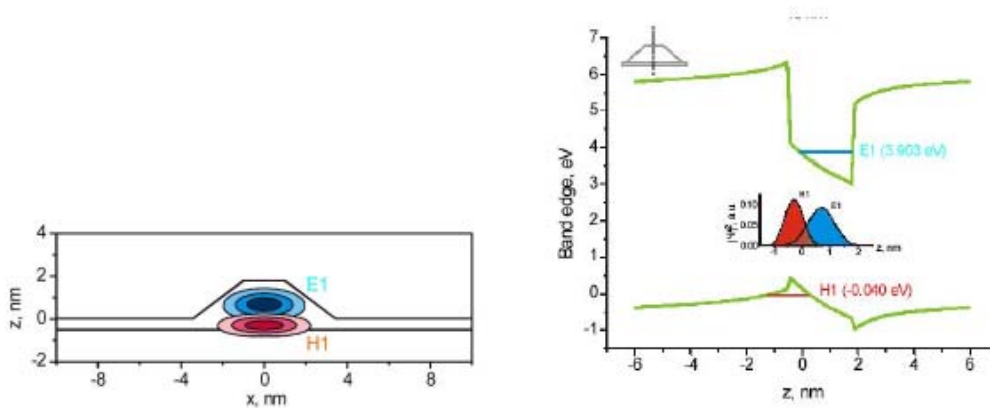


Fig. 5.2 : A gauche : la distribution de la densité de probabilité $|\Psi(r)|^2$ pour l'état fondamental des électrons (en bleu) et des trous lourds (en rouge) dans une boîte quantique GaN de 1,8 nm de hauteur (au-dessus de la couche de mouillage) et de 6,9 nm de diamètre. A droite : le profil de potentiel et les niveaux d'énergie pour la même boîte. Les figures sont reproduites à partir de la référence [And03].

Dans les articles cités ci-dessus, Andreev *et al.* appellent les états électroniques dans la boîte par leur numéro, ce qui manque de transparence. Nous allons utiliser les notations atomiques, qui évoquent l'analogie avec les orbitales atomiques. La correspondance est la suivante : l'état fondamental e_1 est appelé s , l'état excité dans le plan des couches e_2 avec un nœud de la fonction enveloppe suivant la ligne connectant les milieux des côtés opposés de l'hexagone est appelé p_x , l'état e_3 avec un nœud suivant la ligne connectant les sommets opposés de l'hexagone est appelé p_y et l'état excité selon l'axe c , e_9 est appelé p_z . La projection des fonctions enveloppes $|\Psi(r)|^2$ sur le plan des couches est représentée sur la figure 5.3 et leur forme en trois dimensions est présentée sur la figure 5.4 à gauche.

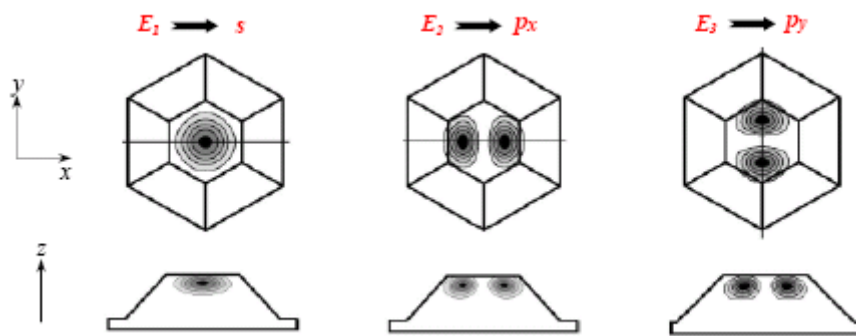


Fig. 5.3 : Les fonctions d'onde $|\Psi(r)|^2$ pour les états s (e_1), p_x (e_2) et p_y (e_3). Les figures sont issues de la référence [And00].

La structure électronique calculée est présentée sur la figure 5.4 à droite. L'énergie de la transition entre l'état fondamental s et l'un des états excités dans le plan des couches (p_x ou p_y) est de l'ordre de 0,2 eV. Les flèches marquent les transitions avec la force d'oscillateur la plus importante. Les fonctions enveloppes $|\Psi(r)|^2$ pour les états correspondants sont présentées sur la figure 5.4 à gauche. Les transitions $e_2 \rightarrow e_{15}$ et $e_3 \rightarrow e_{14}$ correspondent à l'excitation de l'électron entre un état excité dans le plan des couches (p_x ou p_y) et un état excité à la fois dans le plan des couches et suivant l'axe c ($p_x p_z$ ou $p_y p_z$). Ces transitions ainsi que $e_1 \rightarrow e_9$ ($s \rightarrow p_z$) sont couplées avec la polarisation TM (p) de la lumière, tandis que les transitions $e_1 \rightarrow e_2$ ($s \rightarrow p_x$) et $e_1 \rightarrow e_3$ ($s \rightarrow p_y$) sont couplées avec la polarisation TE (s).

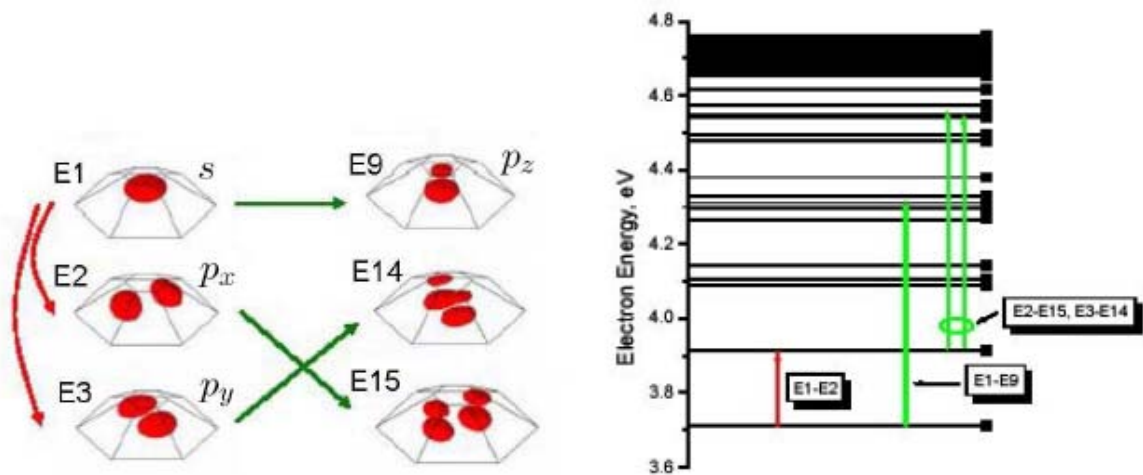


Fig. 5.4 : Probabilité de présence $|\Psi(r)|^2$ pour les états impliqués dans les transitions intrabandes présentant les forces d'oscillateurs les plus importantes (à gauche) et les niveaux électroniques (à droite). Les figures sont reproduites de la référence [And03].

La géométrie des boîtes quantiques que j'étudie dans ce travail est légèrement différente de celle étudiée par Andreev *et al.* dans ses calculs : la hauteur est inférieure d'une à deux monocouches et le diamètre est sensiblement le même (ainsi $h < d$). L'énergie de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ calculée par Andreev *et al.* est alors sous-estimée pour mon système.

5.1.4) Etats de contrainte

Pour déterminer les états de contrainte des boîtes quantiques, la diffraction des rayons X est la technique la mieux adaptée. Cependant, la diffusion Raman peut également être utilisée pour extraire les états de contrainte. Plusieurs études ont été menées dans ce sens dans les boîtes quantiques GaN/AlN.

Une première étude compare la diffusion Raman sur des boîtes quantiques GaN dont la croissance a été réalisée par épitaxie par jets moléculaires assistée par plasma d'azote et par

craquage de l'ammoniac (NH_3) [Gle00]. Un décalage vers le rouge respectivement de 38 cm^{-1} ($\sim 4,7 \text{ meV}$) et 35 cm^{-1} ($\sim 4,3 \text{ meV}$) du mode de phonon E_2 (*high*) par rapport au GaN relaxé est observé pour les deux techniques de croissance. Ces décalages en fréquence traduisent une contrainte biaxiale de -2,6 et -2,4 % respectivement.

A Valence [Cro06], [Gar06], [Cro07] des études de diffusion Raman résonante avec une transition interbande ont été menées sur des structures similaires. Dans ces études, les boîtes quantiques GaN (épitaxiées sur substrat saphir et SiC) sont de taille plus grande que dans mon étude ($\sim 3,8$ à $4,3 \text{ nm}$ de hauteur et 20 à 50 nm de diamètre). Ces auteurs observent une corrélation verticale des boîtes quantiques de plan à plan. Cette corrélation verticale a des répercussions immédiates sur l'homogénéité des boîtes de plan à plan, et sur les états de contrainte suivant l'axe de croissance [Cro06]. La densité surfacique de boîtes quantiques varie de 5×10^{10} à $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. En calculant les états de contraintes dans les boîtes quantiques GaN, ces auteurs trouvent un bon accord entre le décalage des pics d'émission Raman mesurés expérimentalement et leurs prédictions théoriques. Pour le mode de phonon $A_1(LO)$, ils trouvent un décalage $\Delta\omega = 30 \pm 6 \text{ cm}^{-1}$ ($\sim 3,7 \text{ meV}$) avec les coefficients $a = -685 \pm 40 \text{ cm}^{-1}$ et $b = -997 \pm 70 \text{ cm}^{-1}$, et des contraintes de -1% suivant l'axe z et -1,3 % suivant les axes x et y .

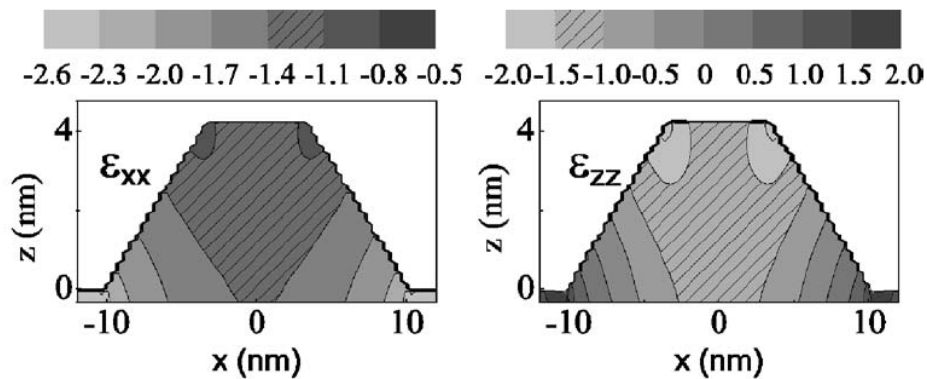


Fig. 5.5 : Distribution des états de contrainte ε_{xx} et ε_{zz} en % dans les boîtes quantiques GaN [Gar06].

Dans la section 5.3.6, je mesure la diffusion Raman non-résonante pour déterminer l'état de contrainte dans l'échantillon de cette étude.

5.2) Echantillon et Spectroscopie optique

5.2.1) Echantillon E1150

L'échantillon E1150 a été élaboré par épitaxie par jets moléculaires assistée par plasma (PAMBE) sur des quasi-substrats d'un micron d'AlN sur saphir (0001) fabriqués en MOCVD par la société NGK. La structure contient 200 plans de boîtes quantiques de GaN séparés par des barrières en AlN de 3 nm d'épaisseur. Les boîtes quantiques de GaN sont intentionnellement dopées n par l'incorporation d'atomes de Silicium à 10^{20} cm^{-3} .

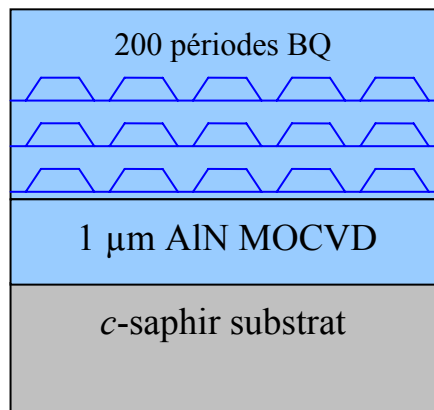


Fig. 5.6 : Structure de l'échantillon E1150.

La structure de l'échantillon E1150 a été étudiée par microscopie électronique en transmission (TEM) par Eirini Sarigiannidou à l'Université Joseph Fourier de Grenoble. Les figures suivantes (5.7) montrent des images TEM haute résolution de la structure active de l'échantillon E1150. Les zones sombres correspondent aux boîtes quantiques de GaN et celles plus claires, aux barrières d'AlN. Les images TEM montrent que la hauteur des boîtes quantiques est relativement homogène (~ 1 à $1,5 \text{ nm}$) avec des fluctuations n'excédant pas ± 1 monocouche et la périodicité est bien respectée. Quant au diamètre des boîtes quantiques, il est égal à $6 \pm 1 \text{ nm}$. En se basant sur les mesures AFM effectuées sur des échantillons fabriqués dans les mêmes conditions, la densité de boîtes quantiques est attendue autour de $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. La croissance de 200 plans de boîtes quantiques est un défi important puisque l'on pourrait s'attendre à la génération de dislocations mais aussi à une fluctuation de la taille des boîtes de plan à plan suivant la direction de croissance. En effet, la contrainte dans le plan induite par la

présence sous-jacente des boîtes quantiques peut donner lieu à un alignement vertical des îlots dont la taille augmente de plan à plan. C'est le cas si l'espaceur en AlN est trop fin.

Les images HRTEM confirment qu'il n'y a pas de corrélation verticale et la taille des boîtes apparaît homogène le long des 200 périodes de la structure. Cela suggère une relaxation négligeable le long de l'axe de croissance.

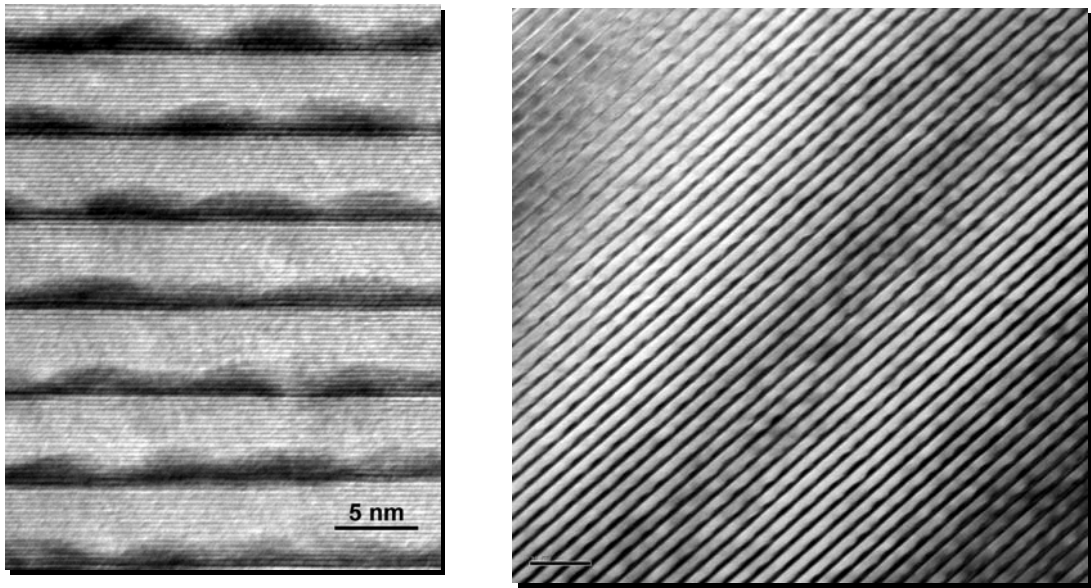


Fig. 5.7 : Images TEM de l'échantillon E1150.

5.2.2) *Spectroscopie UV*

Dans un premier temps, je présente les mesures de spectroscopie de photoluminescence UV des boîtes GaN/AlN. Cette expérience permet de sonder l'énergie de la transition fondamentale interbande hh_1-e_1 des boîtes quantiques.

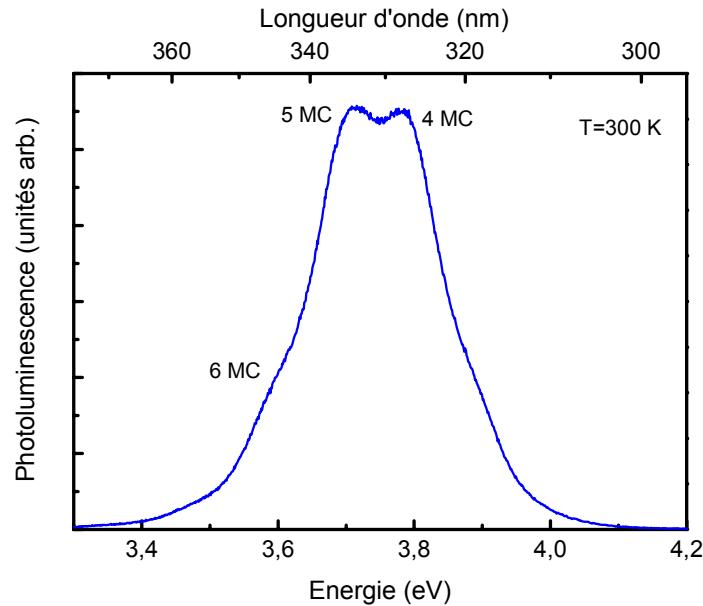


Fig. 5.8 : Spectre de photoluminescence de l'échantillon E1150 à température ambiante.

La figure 5.8 montre le spectre de photoluminescence de l'échantillon E1150 réalisé à température ambiante (300 K) sous une excitation UV à $\lambda=244$ nm. La puissance du laser d'excitation est de seulement 1 mW focalisé sur une tache de 100 μm de diamètre. L'émission radiative interbande des boîtes quantiques est structurée. Cette structuration reflète la fluctuation de hauteur des boîtes quantiques. Les pics principaux sont à 3,78 eV (~ 328 nm) et 3,71 eV (~ 334 nm) ce qui est typique pour des boîtes quantiques GaN de 4-5 monocouches (1-1,3 nm) de hauteur respectivement [Tch05b]. A plus basse énergie, on observe un épaulement sur le pic d'émission attribué aux boîtes de 6 monocouches de hauteur. L'élargissement total à mi-hauteur (FWHM) est de 227 meV ce qui est remarquablement faible pour un empilement de 200 périodes.

5.2.3) *Spectroscopie Infrarouge*

Dans un deuxième temps, j'ai caractérisé l'échantillon E1150 par spectroscopie à transformée de Fourier pour sonder les transitions intrabandes entre niveaux confinés en bande de conduction. Les mesures ont été réalisées à température ambiante. La figure 5.9 représente le spectre d'absorption de l'échantillon E1150 mesuré dans le proche infrarouge pour un seul passage à travers l'échantillon à l'incidence de Brewster (courbe bleue) mais aussi dans la configuration « zigzag » pour amplifier l'absorption (courbe rouge). Cette dernière configuration est utilisée pour sonder les transitions dont les forces d'oscillateur sont faibles.

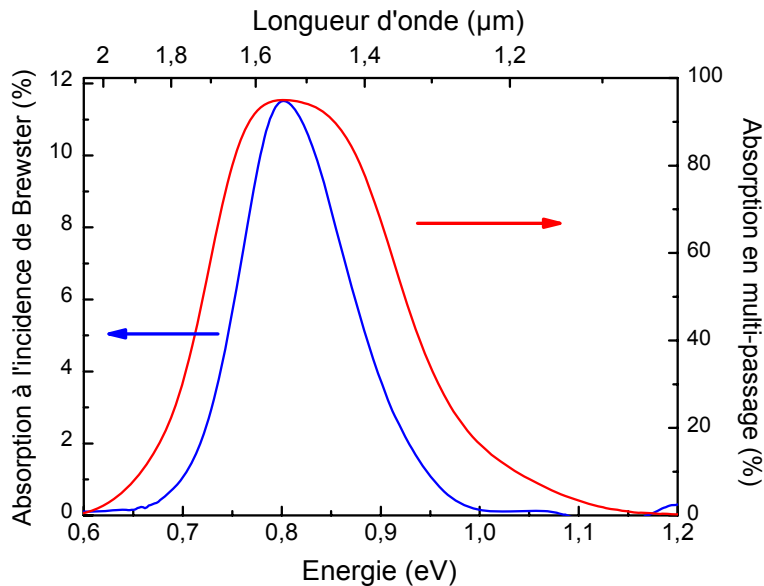


Fig. 5.9 : Spectre d'absorption intrabande de l'échantillon E1150.

Sur ce spectre, on observe une très forte résonance piquée à 0,8 eV (1,55 μm) uniquement polarisée TM (p), attribuée à la transition $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN. A l'incidence de Brewster, l'amplitude de l'absorption est de 11,5 % pour seulement un passage à travers la couche active.

Dans la configuration « zigzag », l'amplitude de la transition $s \rightarrow p_z$ a très fortement augmenté pour atteindre 95 % avec 8 passages à travers la région active. En fait, dans cette configuration, l'absorption devrait atteindre 100 % mais une partie du faisceau est réfléchi à

l'interface saphir/AlN dont les indices optiques sont respectivement $\sim 1,7$ et $\sim 2,1$. De ce fait, une partie de la lumière incidente (5 %) ne passe pas par la région active.

Dans la configuration zigzag, aucune autre transition n'a pu être observée dans la gamme de longueur d'onde 0,7-5 μm (1,75-0,25 eV), ceci dans la limite de sensibilité expérimentale. D'après les calculs d'Andreev [And00], [And01], [And03], les transitions $s \rightarrow p_x$ et $s \rightarrow p_y$ provenant du confinement latéral des boîtes quantiques, sont situées à des énergies inférieures à 0,2 eV, c'est-à-dire dans une région du spectre où le substrat saphir est opaque. On ne peut donc pas les observer.

L'élargissement total à mi-hauteur de la résonance (FWHM) mesuré à l'incidence de Brewster est seulement de 125 meV, ce qui confirme la bonne homogénéité de la taille des boîtes quantiques. Cependant, contrairement au cas des puits quantiques GaN, l'élargissement de la transition $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN est essentiellement de type inhomogène et le spectre peut-être ajusté par plusieurs Gaussiennes. La fluctuation de la hauteur des boîtes d'une monocouche atomique décale l'énergie d'absorption intrabande de 50 à 70 meV. De plus, la fluctuation du diamètre des boîtes quantiques fait varier légèrement la position des niveaux d'énergie s et p_z , et donc contribue à l'élargissement inhomogène de la transition lors de la mesure sur un ensemble de boîtes quantiques. Il n'est pas exclu que dans l'absorption observée réside la contribution de niveaux excités.

5.2.4) Spectroscopie d'absorption photoinduite résonante

Je présente maintenant une expérience malheureusement peu concluante visant à mesurer l'élargissement homogène des boîtes quantiques. Elle repose sur la mesure d'absorption photoinduite sous une excitation interbande résonante. En effet, contrairement au cas des puits quantiques, la densité d'état des boîtes quantiques est discrète. Cela se traduit sur les ensembles de boîtes, par un spectre d'absorption interbande inhomogène sous la forme d'une somme de plusieurs fonctions de Dirac. Cette inhomogénéité est due à la fluctuation de taille des boîtes quantiques. Ainsi, avec un photo-pompage accordé en longueur d'onde dans le pic de photoluminescence, on peut espérer exciter une seule taille de boîtes quantiques. Il est simplement nécessaire que la largeur spectrale de la raie du laser d'excitation soit plus étroite que la séparation entre deux pics d'absorption homogène interbande des boîtes quantiques de deux tailles différentes. J'ai donc réalisé cette expérience d'absorption intrabande

photoinduite en utilisant trois raies de transition atomique UV d'un laser Argon : $\lambda=363,8$; 351,1 et 334,5 nm. Sur la figure 5.10 est représenté le spectre de photoluminescence à 300 K ainsi que la position des raies UV du laser d'excitation.

Sur la figure 5.11 est représenté le spectre d'absorption intrabande photoinduite (à 300 K) par les trois raies laser UV citées précédemment. La quantité de signal modulé dans l'expérience est extrêmement faible ($\Delta T/T \sim 10^{-6}$). A titre de comparaison, la modulation photoinduite atteint facilement $\Delta T/T > 10^{-4}$ dans les puits quantiques GaN/AlN dans des conditions similaires. Cela confirme que le pompage doit être très sélectif. En outre, ce n'est pas la couche de mouillage mais bien les boîtes quantiques qui absorbent les photons d'excitation.

Les résultats de cette expérience sont néanmoins mitigés. En effet, la largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de la transition $s \rightarrow p_z$ a seulement diminué de 125 à 107 meV. Pour les trois longueurs d'ondes d'excitation, le pic d'absorption s'est décalé de 13 meV vers les hautes énergies.

Ce décalage spectral vers les hautes énergies de l'absorption intrabande est paradoxal. En effet, on s'attendrait à ce que la capture des électrons soit plus efficace pour les boîtes quantiques plus grosses, c'est-à-dire, dont l'état fondamental est situé plus bas en énergie. L'absorption intrabande devrait donc se décaler vers les grandes longueurs d'onde.

Comment expliquer que sous une excitation interbande sélective des boîtes quantiques, l'élargissement de la transition n'est que très peu affecté et donc, l'absorption intrabande reflète presque toute la distribution de taille de boîtes ?

On pourrait émettre l'hypothèse suivante : l'absorption photoinduite sonde les transitions partant non pas du niveau fondamental s (puisque qu'il est déjà occupé) mais des états excités p_x , p_y vers les niveaux $p_z p_x$, $p_z p_y$. L'énergie de ces transitions est supérieure à celle de la transition $s \rightarrow p_z$.

Une autre explication qui est récurrente est que sous un pompage UV de haute énergie, on excite des impuretés situées profondément dans la bande d'énergie interdite du GaN et de l'AlN. Les électrons photo-excités sont piégés dans les boîtes quantiques et participent efficacement à l'absorption intrabande qui est mesurée. De plus, la modulation $\Delta T/T$ lors de l'expérience augmente considérablement lorsque la longueur d'onde du laser de pompage augmente. C'est-à-dire, la quantité de signal modulé est plus importante sous un pompage à 363,8 nm ($\sim 3,41$ eV) que pour un pompage à 334,5 nm ($\sim 3,70$ eV). Ce résultat est surprenant car à 363,8 nm ($\sim 3,41$ eV), on se situe dans le pied du pic de luminescence interbande, ce qui signifie qu'il y a très peu de boîtes quantiques qui peuvent être excitées de manière résonante. Cela démontre que les électrons participant à la modulation intrabande photoinduite ont pour

origine des bandes de défauts profondément enterrés dans les bandes interdites des deux semi-conducteurs GaN ou AlN.

En effectuant un spectre d'excitation de l'absorption intrabande, c'est-à-dire, en accordant continûment la longueur d'onde de la source d'excitation, nous pourrions estimer précisément la position des bandes de défauts et peut-être leur origine.

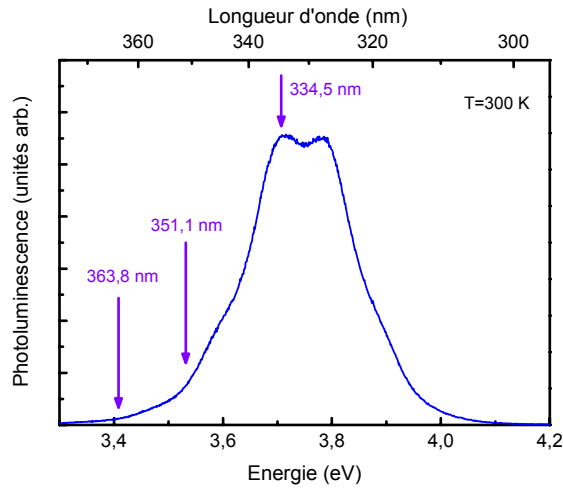


Fig. 5.10 : Spectre de photoluminescence interbande de l'échantillon E1150 ainsi que la position des trois raies d'excitation utilisées pour l'expérience d'absorption photoinduite.

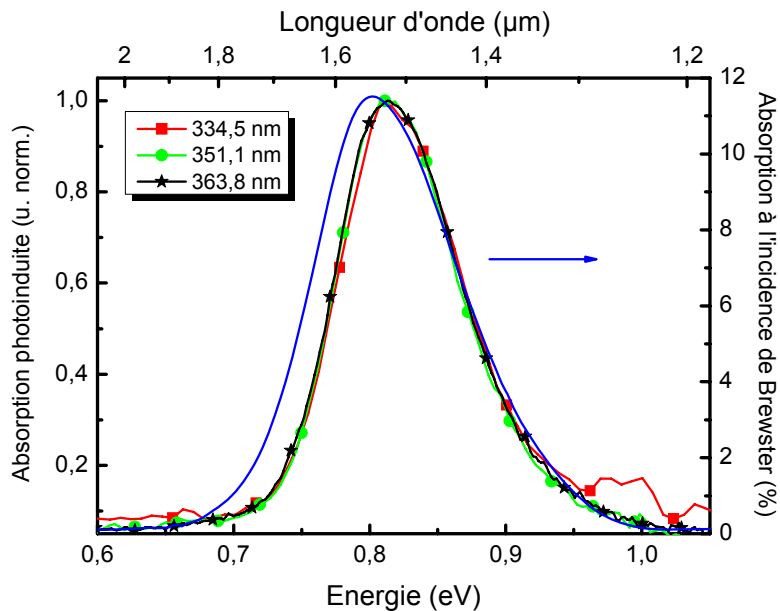


Fig. 5.11 : Spectres d'absorption intrabande photoinduite de l'échantillon E1150 sous trois excitations lasers différentes. En bleu est tracée l'absorption mesurée sans photopompage à l'incidence de Brewster.

5.3) Emission intrabande des boîtes quantiques assistée par processus Raman résonant

5.3.3) Mise en évidence de l'émission intrabande des boîtes quantiques GaN

Dans cette partie, je présente l'expérience visant à mesurer l'émission intrabande des boîtes quantiques GaN/AlN.

Pour réaliser l'expérience, j'ai utilisé un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) dont la résolution spectrale peut-être au maximum de $0,125 \text{ cm}^{-1}$. Le détecteur est une photodiode InGaAs basse fréquence. L'excitation est fournie par un laser YVO_4 multi-mode continu de longueur d'onde fixe $\lambda \sim 1,3435 \text{ }\mu\text{m}$ ($\sim 0,923 \text{ eV}$). La puissance lumineuse à la sortie du laser est de 1 Watt. Le laser est polarisé linéairement avec un ratio 100 :1. Ce type de laser présente une largeur spectrale importante $\sim 1,1 \text{ meV}$ ($\sim 9 \text{ cm}^{-1}$) (fig. 5.12). A l'aide d'un objectif de microscope ($\times 60$) (O. N. =0,85), le faisceau laser est focalisé directement dans le plan des couches sur la tranche de l'échantillon (voir fig. 5.12). La taille de la tache du laser sur l'échantillon est $\sim 2 \text{ }\mu\text{m}^2$ ce qui donne une densité de puissance très élevée de $\sim 50 \text{ MWatt/cm}^2$. Un cube séparateur est placé entre l'échantillon et le laser, sur le trajet du faisceau laser ce qui permet de collecter l'émission rétro-diffusée. L'émission passe par un analyseur à grille permettant de contrôler la polarisation (avec un taux de réjection de 100 :1) puis est dirigée vers le port d'entrée du spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) fonctionnant en mode pas à pas. Pour bénéficier d'une grande sensibilité, le faisceau laser est haché mécaniquement à 3 kHz et le signal est démodulé à la même fréquence par une détection synchrone. Une batterie de filtres interférentiels passe-haut ($\lambda_c = 1400 \text{ nm}$) est utilisée pour s'affranchir du résidu de faisceau laser à l'entrée du spectromètre.

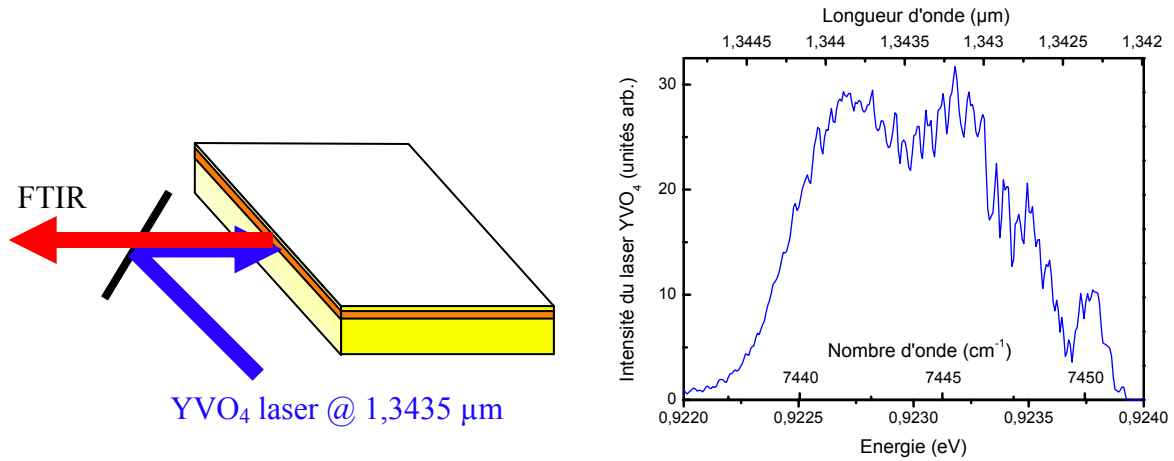


Fig. 5.12 : Schéma expérimental de l'excitation de l'échantillon à boîtes quantiques (gauche) ainsi que le spectre du laser YVO_4 (droite).

Sur la figure 5.13 sont représentés les spectres d'émission de l'échantillon contenant les 200 plans de boîtes quantiques GaN pour différentes polarisations d'excitation (TM (p) et TE (s)) mais aussi de détection (TM (p) et TE (s)). Sur cette figure est superposé le spectre d'absorption intrabande $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN (courbe noire). La figure montre la coupure du spectre par le détecteur InGaAs et les filtres interférentiels passe-haut. Le pic situé à 0,923 eV correspond au résidu du laser. On observe sur ces différents spectres, un fond d'émission continu large bande avec quelques faibles pics. Ce fond d'émission continu est attribué à la diffusion des optiques (objectif de microscope, cube séparateur, ...) car il est toujours présent lorsque le faisceau de pompage est focalisé en dehors de l'échantillon.

A 0,8331 meV (1,488 μm) un pic est observé uniquement sous excitation polarisée TM (p) par rapport au plan des couches et une détection également polarisée TM (p), c'est-à-dire dans la configuration $x(zz)\bar{x}$ en notation de Porto.

Le fait que l'émission piquée à 0,833 eV soit située dans l'élargissement inhomogène de la courbe d'absorption intrabande $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques et qu'elle obéisse aux règles de polarisation des transitions intrabandes, est une démonstration que l'émission provient de la relaxation radiative des électrons du niveau p_z vers le niveau s .

Pour extraire le pic d'émission intrabande par rapport au fond continu, la figure 5.14 représente le ratio du spectre en configuration $x(zz)\bar{x}$ par celui mesuré en configuration

$x(z\bar{y})\bar{x}$. Le pic est fortement asymétrique et sa largeur totale à mi-hauteur (FWHM) est de 9 meV. Par rapport à l'émission du laser, le pic à 0,833 eV est décalé de 90,4 meV ($\sim 729 \text{ cm}^{-1}$). Cette valeur est proche des valeurs publiées dans la littérature (735 cm^{-1}) pour le mode de phonon optique longitudinal $A_1(LO)$ du GaN massif relaxé [Dav98].

L'émission intrabande implique un processus de diffusion Raman résonant de l'excitation optique par le mode de phonon $A_1(LO)$ des boîtes quantiques GaN/AlN. Le processus est illustré en insert de la figure 5.14. Le peuplement de l'état p_z est assuré par l'émission d'un phonon $A_1(LO)$ sous pompage optique. Afin de conserver le moment (l'impulsion), seuls les phonons optiques LO de moment nul sont impliqués dans le processus de diffusion. Le processus est sélectif en terme de taille de boîtes quantiques. Il impose l'énergie d'émission de la transition $p_z \rightarrow s$ égale à $h\nu_p - h\nu_{A_1(LO)}$. Ceci implique que la nature de l'élargissement de la courbe d'émission est de type homogène.

L'efficacité du processus de diffusion Raman est fortement amplifiée grâce à la présence de la transition électronique $p_z \rightarrow s$. Nous ne pouvons cependant pas exclure que le niveau virtuel soit couplé avec un des niveaux excités des boîtes quantiques ou du continuum de la couche de mouillage.

Notons que dans la configuration $x(z\bar{z})\bar{x}$, la diffusion Raman du mode de phonon $A_1(TO)$ du GaN ($533 \text{ cm}^{-1}/66,1 \text{ meV}$) devrait être beaucoup plus efficace que celle du mode de phonon $A_1(LO)$ [Arg69], [Sie95]. Pourtant, elle n'est pas observée dans l'expérience.

Les électrons peuvent être couplés aux phonons optiques de deux manières :

- i) Les vibrations du réseau déforment le potentiel des électrons. C'est l'interaction par le potentiel de déformation qui est faible.
- ii) Puisque le GaN est un matériau fortement polaire, les vibrations créent un champ dipolaire agissant sur les électrons. C'est l'interaction de Fröhlich. Cette interaction est le mécanisme dominant. En conséquent, les électrons interagissent principalement avec les phonons optiques longitudinaux (LO) [Rid93], [Rid94].

Il faut noter que seul le mode de phonon optique longitudinal $A_1(LO)$ est polarisé suivant la direction de croissance. Le mode $E_1(LO)$ est quant à lui polarisé dans le plan xy et donc ne peut se coupler avec les transitions intrabandes.

Finalement, il est clair que pour confirmer le fait que le processus est résonant, il faudrait faire varier la longueur d'onde de pompage et montrer que l'amplitude du pic d'émission suit la courbe d'absorption intrabande $s \rightarrow p_z$. Malheureusement, le laser que j'ai utilisé est à longueur d'onde fixe et donc ne permet pas de réaliser cette expérience.

Les mesures de spectroscopie de diffusion Raman non résonante présentées dans la partie 5.3.4) montrent que les boîtes GaN/AlN sont contraintes dans l'échantillon. On peut se demander pourquoi nous n'observons pas un décalage ($\sim 3,7$ meV, ~ 30 cm^{-1}) de la raie d'émission Raman vers les hautes énergies dû à la contrainte. Une explication possible est la température locale. Davydov *et al.* [Dav98] ont montré que le pic d'émission Raman du mode $A_1(LO)$ du GaN se décale de $2,6$ cm^{-1} vers les basses énergies entre des mesures réalisées à 6 K et 300 K. Puisque dans mon expérience, la densité de puissance du laser d'excitation est très forte (50 MWatt/ cm^2 en continu), on peut émettre l'hypothèse suivante : localement, l'échantillon chauffe énormément (puisque le laser est complètement absorbé), ce qui décale le pic d'émission Raman vers les basses énergies et compense le décalage vers le bleu dû à l'état de contrainte.

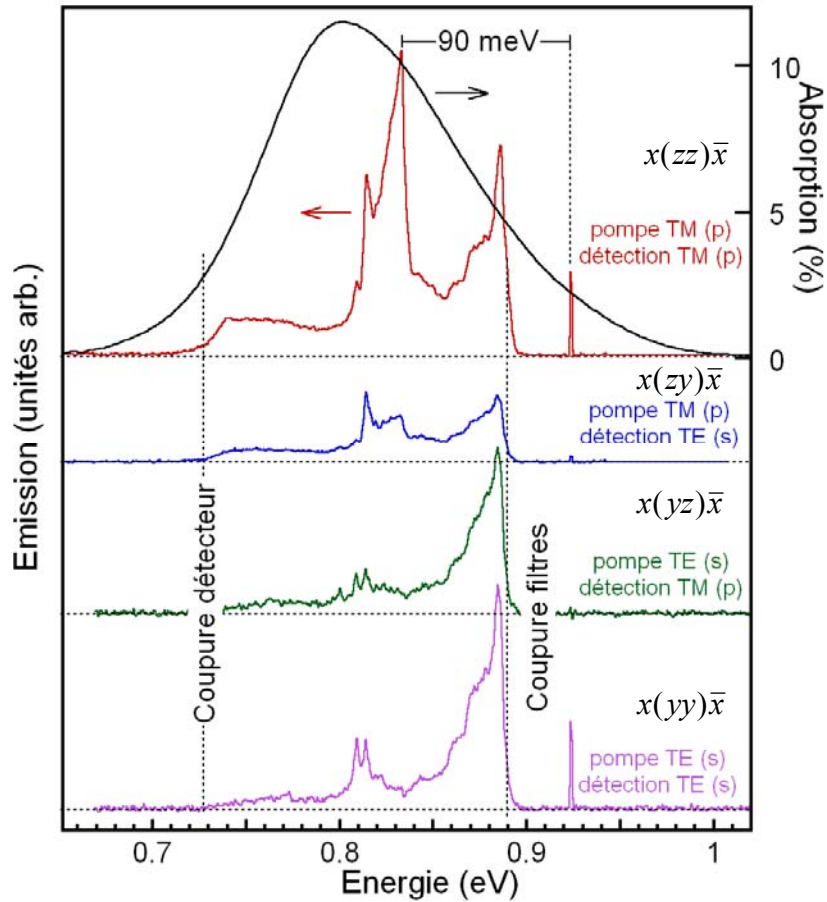


Fig. 5.13 : Spectres d'émission mesurés pour différentes polarisations (laser et détection). La courbe noire représente le spectre d'absorption $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN.

5.3.4) Élargissement homogène de la transition intrabande et temps de cohérence

Sur la figure 5.14, est représenté un zoom du signal d'émission des boîtes quantiques GaN (courbe rouge). Ce zoom correspond en fait au ratio du spectre d'émission des boîtes dans la configuration $x(zz)\bar{x}$ par le spectre en configuration $x(zy)\bar{x}$. Sur cette courbe, on remarque un élargissement asymétrique de la raie d'émission avec des oscillations vers les basses énergies (*i. e.* vers les décalages Raman plus élevés). Cet élargissement n'est pas très bien compris. Il peut-être lié à des modes de phonons mixtes d'alliage entre les boîtes quantiques GaN et les barrières AlN [Iba06], à des modes de phonons d'interface ou encore, il peut refléter la distribution des contraintes. Cependant, puisque les boîtes sont fortement dopées n

(10^{20} cm^{-3}), il est possible qu'il y ait un couplage entre les modes de phonon optique polaire (longitudinal) et une excitation collective des porteurs libres (plasmons) [Har02], [Cro07]. Sur ce même graphe est tracé l'ajustement Lorentzien du pic d'émission intrabande des boîtes quantiques GaN assistée par la diffusion Raman. L'ajustement est effectué sur le flanc à haute énergie de l'émission (basses énergies du décalage Raman). La largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de cette Lorentzienne est de 4 meV. Cet élargissement donne une valeur supérieure de l'élargissement homogène de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ pour une taille de boîtes quantiques GaN. Un élargissement $\Delta E = 4 \text{ meV}$ correspond à un temps de déphasage des électrons de $T_2 = 330 \text{ fs}$ ($T_2 = 2\hbar/\Delta E$).

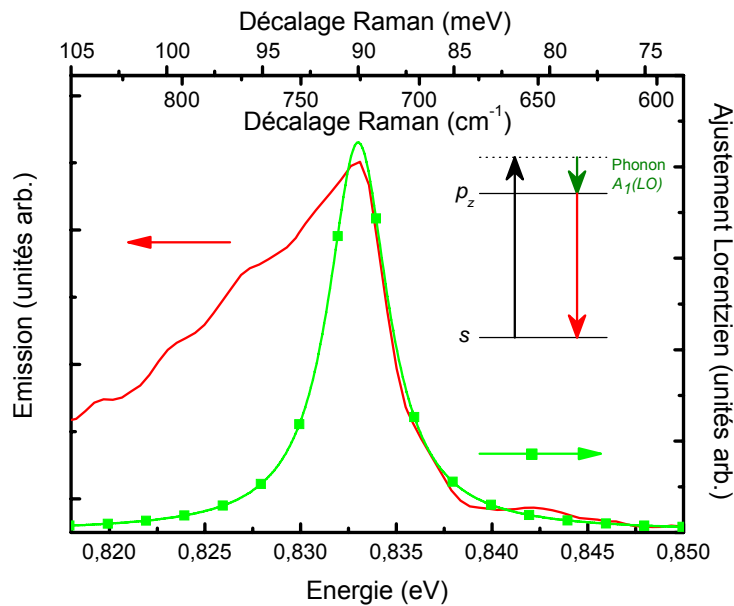


Fig. 5.14 : Ratio du spectre d'émission des boîtes quantiques en configuration $x(zz)\bar{x}$ par le spectre en configuration $x(zy)\bar{x}$ (courbe rouge). La courbe verte représente un ajustement Lorentzien. L'insert illustre le mécanisme d'émission.

5.3.5) *Emission Raman stimulée*

L'émission Raman stimulée a été mise en évidence fortuitement par Woodbury et Ng en 1962 en déclenchant un laser à Rubis au moyen d'une cellule de Kerr contenant du nitrobenzène [Woo62]. A côté de la raie laser, le spectre comprenait une raie Stokes très intense (20% de celle du laser) à la fréquence décalée de la fréquence de vibration du nitrobenzène. Depuis, l'émission Raman stimulée a été mise en évidence dans différents milieux (gaz, liquide, solide) [Blo64a], [Blo64b], [Gru69], [Pat70a], [Pat70b], [Juju83]. Dans les puits quantiques semi-conducteurs, l'émission Raman stimulée a également été démontrée en résonance avec les transitions intersousbandes [Liu01], [Liu03b], [Sch07].

Dans notre configuration, nous sommes dans un schéma à trois niveaux où l'inversion de population est théoriquement possible. Le schéma est identique à celui d'un laser à Rubis (fig. 5.15) [Mai60] et il s'apparente à celui du laser à fontaine quantique [Juju95], [Olg97]. Dans cette situation, pour atteindre l'inversion de population, il suffit d'utiliser un pompage suffisamment intense pour vider l'état fondamental.

Le point critique est de savoir si ce processus peut donner lieu à un gain net car notre système est fortement inhomogène. En effet, on ne peut exclure que les photons émis lors de la transition $p_z \rightarrow s$ puissent être réabsorbés par une transition intrabande de boîtes quantiques de taille différente. Néanmoins, une solution pour inverser la population de toutes les tailles de boîtes serait d'utiliser une source large bande.

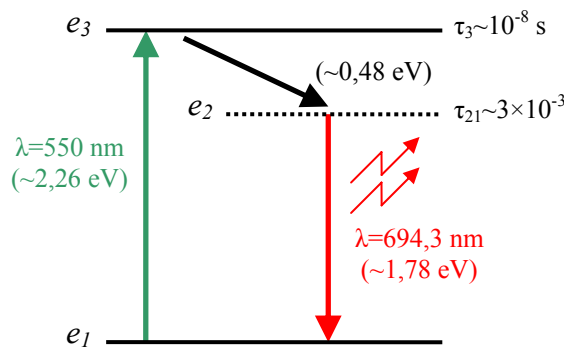


Fig. 5.15 : Inversion de population dans un laser à Rubis [Mai60].

5.3.6) Spectroscopie de diffusion Raman non résonante

Je présente maintenant des mesures de spectroscopie Raman non résonante visant à estimer l'état de contrainte dans les petites boîtes quantiques GaN. L'annexe 2 décrit les généralités sur la diffusion Raman non-résonante.

Pour réaliser cette expérience, j'ai adapté le banc de spectroscopie de photoluminescence de notre laboratoire. Le spectromètre (HR460) est muni d'un réseau dispersif de 1800 traits/mm et la longueur de dispersion est de 2×460 mm. La détection s'effectue grâce à une caméra CCD (*Charge Coupled Device*). L'excitation est fournie par un laser Argon dont la longueur d'onde est fixée à $\lambda=488$ nm. Un prisme est placé à la sortie du laser pour disperser spatialement les autres longueurs d'onde d'émission (501 ; 514 ; 528 nm) et ainsi éviter que ces émissions ne rentrent dans le spectromètre. Grâce à un objectif de microscope $\times 40$ (ouverture numérique = 0,65), le laser est focalisé sur l'échantillon sur une tache de diamètre inférieur à 10 μm . L'émission de l'échantillon est récoltée de manière rétro-difusée et dirigée vers le port d'entrée du spectromètre à réseau. L'excitation s'effectue à incidence normale, c'est-à-dire, suivant la direction de croissance z . Deux filtres passe-haut colorés ($\lambda=495$ et 500 nm) sont utilisés pour s'affranchir de la forte puissance du laser de pompage. De plus un polariseur Glan-Taylor croisé avec la polarisation du laser est utilisé. Dans cette configuration, seul le mode de vibration E_2 (*high*) peut être détecté. En notation de Porto, cela correspond à la configuration $z(xy)\bar{z}$ où z correspond à l'axe [0001] et x, y sont dans le plan des couches. L'étude que je présente ici est similaire à l'étude menée à Valence par Ana Cros [\[Cro06\]](#) sur des boîtes quantiques plus grosses.

Sur le graphique suivant (5.16) sont tracés les spectres de diffusion Raman pour trois échantillons différents. La courbe bleue représente la diffusion Raman sur un échantillon constitué de 1 μm de GaN relaxé, épitaxié par MOCVD sur substrat Saphir (A1199). Sur cette courbe, on distingue très clairement un pic à 568 cm^{-1} ($\sim 70,5 \text{ meV}$) attribué au mode de phonon E_2 (*high*) du GaN. La largeur spectrale de ce pic est limitée par la résolution du banc de mesure.

La courbe verte représente la diffusion Raman sur un échantillon constitué de 1 μm de AlN relaxé, épitaxié par MOCVD sur Saphir. On distingue sur cette courbe deux pics. L'un situé à 655 cm^{-1} ($\sim 81\text{ meV}$) est attribué au mode de phonon E_2 (*high*) de l'AlN. Le deuxième pic situé à 576 cm^{-1} ($\sim 71\text{ meV}$) présent sur les trois courbes, provient du substrat Saphir. Ce pic a également été observé par Garro *et al.* [Gar06].

La courbe rouge représente la diffusion Raman sur l'échantillon constitué des 200 plans de boîtes quantiques GaN. Les 200 plans de boîtes sont épitaxiés sur un quasi-substrat AlN sur Saphir identique à l'échantillon de référence précédent. On distingue donc sur cette courbe deux pics similaires à l'échantillon précédent, l'un attribué au substrat Saphir, l'autre attribué au mode de vibration E_2 (*high*) de l'AlN relaxé. Cependant, sur ce dernier pic, on observe un épaulement aux basses énergies attribué aux barrières AlN séparant les différents plans de boîtes quantiques GaN. Ce décalage vers les basses énergies de $\sim 8\text{ cm}^{-1}$ ($\sim 1\text{ meV}$) prouve que les barrières AlN subissent une légère contrainte de tension à cause de la présence des boîtes quantiques GaN.

A basse énergie, on observe un pic de très faible amplitude situé à 605 cm^{-1} ($\sim 75\text{ meV}$). Ce pic est attribué au mode de vibration E_2 (*high*) des boîtes quantiques GaN. Je rappelle que le GaN se trouve exclusivement dans les boîtes quantiques et dans la couche de mouillage. Le pic d'émission est décalé vers les hautes énergies de 37 cm^{-1} ($\sim 4,5\text{ meV}$) par rapport au GaN massif relaxé. Ce décalage prouve que les petites boîtes quantiques GaN sont fortement contraintes sur AlN. La contrainte est au moins aussi forte que dans les boîtes quantiques GaN étudiées par différents auteurs [Gle00], [Cro06], [Gar06], [Cro07]. Des mesures de diffraction de rayon X permettraient de déterminer précisément la valeur des états de contrainte. Cependant, en première approximation, puisque le décalage des pics d'émission Raman par rapport au matériau massif est proche des résultats obtenus dans la littérature, nous considérerons que les contraintes dans les petites boîtes quantiques GaN sont similaires à celles des boîtes quantiques de taille plus grande.

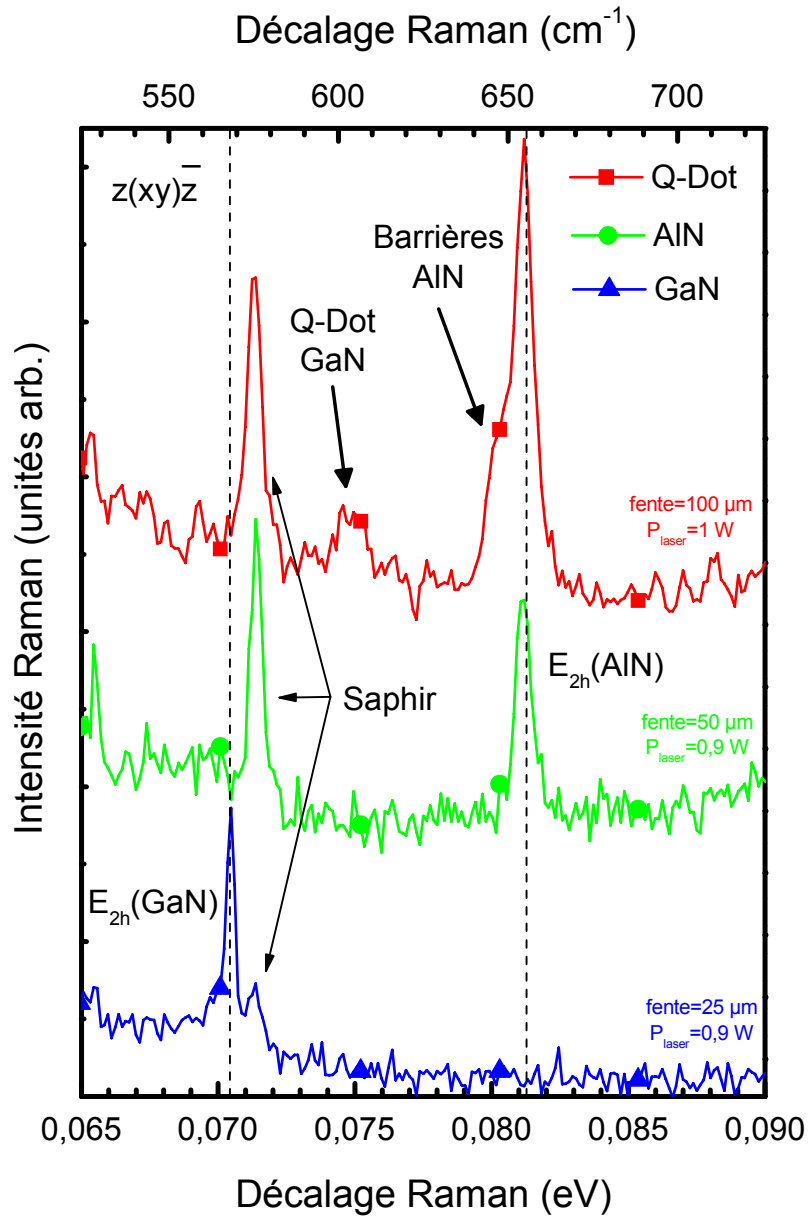


Fig. 5.16 : Spectre de diffusion Raman pour trois différents échantillons décrits dans le texte.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté dans une première partie les caractéristiques structurales originales des boîtes quantiques GaN/AlN. Après avoir caractérisé par spectroscopie UV et infrarouge l'échantillon contenant 200 plans de boîtes quantiques GaN/AlN, j'ai mis en évidence l'émission intrabande des électrons entre les sous-niveaux ($p_z \rightarrow s$) dans les boîtes quantiques GaN/AlN. L'émission se situe à la longueur d'onde record de $\lambda \sim 1,48 \mu\text{m}$. Le processus d'émission est sélectif en taille de boîtes quantiques et met en jeu la diffusion Raman résonante par les phonons $A_1(LO)$ des boîtes GaN. La largeur de raie de l'émission nous permet d'estimer le temps de cohérence des électrons $T_2 > 320 \text{ fs}$.

Chapitre 6

Relaxation intrabande dans les boîtes quantiques

GaN/AlN

La compréhension des mécanismes de relaxation des porteurs dans les structures semi-conductrices à zéro dimension est d'un grand intérêt à la fois d'un point de vue fondamental mais aussi du point de vue des applications. En effet, les mécanismes de relaxation régissent les performances des dispositifs à boîtes quantiques comme les absorbants saturables ou les photodétecteurs.

D'un point de vue fondamental, la spectroscopie des boîtes quantiques a déjà montré l'effet original du confinement 0D (spectre d'absorption discret [Marz94], [Hes94], [Gam96], [Kak04], [Rol06], [Bar06]). On s'attend dans les boîtes quantiques à ce que la présence de niveaux d'énergie bien séparés conduise à des propriétés dynamiques des porteurs très différentes de celles rencontrées dans les matériaux massifs ou les hétérostructures à puits quantiques, c'est-à-dire, des systèmes contenant des continua d'états. Dans les boîtes quantiques, la difficulté pour un porteur de trouver un état pour céder son énergie devrait entraîner un ralentissement significatif de la relaxation [Ben91], [Boc90]. De nombreux processus participent à la relaxation des porteurs dans les semi-conducteurs, mais parmi eux, l'émission de phonons optiques est le plus efficace. Dans les puits quantiques GaN/AlN, le temps de relaxation intersousbande T_I a été mesuré par des expériences de type pompe-sonde par plusieurs équipes [Heb02], [Iiz00], [Ham04], [Ham05], [Wan05], [Wan06]. A cause de la forte ionocité des matériaux nitrures, ce temps est plus court dans les puits quantiques GaN/AlN par rapport à leur homologue GaAs/AlGaAs, (150 et 300 fs à comparer avec ~ 1 ps). Dans les boîtes quantiques, l'émission de phonon optique LO est théoriquement interdite si la

séparation en énergie entre les niveaux n'est pas exactement égale à l'énergie du phonon. L'impossibilité de satisfaire la conservation de l'énergie entre les états discrets lorsque le porteur émet un phonon optique induit le ralentissement de la relaxation des porteurs qui porte le nom d'effet « phonon bottleneck ».

Dans les boîtes quantiques InAs encapsulées dans une matrice AlInAs accordée en maille sur InP, Péronne *et al.* ont mesuré un temps de capture des électrons supérieur à 3 ps [Pér03]. De ces mesures, ils ont extrapolé un temps de relaxation intrabande $p_x \rightarrow s$ et $p_y \rightarrow s$ inférieur à la picoseconde.

Dans les boîtes quantiques InAs encapsulées dans une matrice GaAs, Sauvage *et al.* ont mesuré un temps de capture des électrons de la couche de mouillage vers les niveaux intrabandes des boîtes quantiques InAs de ~ 3 ps et 1,5 ps pour la relaxation intrabande des trous (dont le dipôle est orienté suivant l'axe de croissance z) [Sau98]. Cependant, Sauvage *et al.* ont montré que lorsque la transition électronique est proche de l'énergie du phonon optique (36 meV dans GaAs) le temps de relaxation des polarons (particule mixte électron-phonon) est beaucoup plus long ~ 70 ps [Sau02].

Pour autant, les temps mesurés ci-dessus ne sont pas beaucoup plus longs que le temps de relaxation intersousbande dans les puits quantiques InGaAs/AlInAs [Cam96].

Dans ce chapitre, je discute les mesures expérimentales que j'ai effectuées sur la relaxation intrabande des porteurs en bande de conduction dans les boîtes quantiques GaN/AlN à $\lambda = 1,55 \mu\text{m}$. J'ai tout d'abord utilisé la technique de spectroscopie femtoseconde pour mesurer directement le temps de relaxation intrabande $p_z \rightarrow s$ des électrons dans les boîtes quantiques GaN. Ce temps s'est avéré être aussi court que dans les puits quantiques GaN/AlN, c'est-à-dire ~ 163 fs.

Nous pouvons donner une estimation du temps de cohérence T_2 des électrons à 326 fs grâce à la relation $T_2 < 2 \times T_1$ qui sera expliquée. Cette dernière valeur est en accord avec la valeur déduite de la largeur de raie de l'émission intrabande $p_z \rightarrow s$.

Finalement, je présente les mesures que j'ai effectuées visant à estimer l'intensité de saturation I_s de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$. Cette mesure est importante car l'intensité de saturation est un paramètre clé pour la réalisation d'absorbants saturables ou de commutateurs tout optiques.

6.1) Mesure du temps de retour à l'équilibre T_1 de l'absorption $s \rightarrow p_z$

L'expérience qui suit a été réalisée au laboratoire en collaboration avec Juliette Mangeney.

6.1.1) La source

Pour mesurer le temps de retour à l'équilibre T_1 des électrons, j'ai utilisé une source laser femtoseconde à la longueur d'onde de 1,55 μm . Cette source est générée de la manière suivante : un laser Ti : Saphir fonctionnant en régime de verrouillage de modes (*mode locking*) est pompé optiquement par un laser Nd : YAG (*yttrium aluminium garnet*) doublé à 532 nm de longueur d'onde dont la puissance est de 12,6 Watt en continu. Grâce au gain spectralement très large du laser Ti : Saphir, il est possible de générer des impulsions de type Gaussien très courtes (~ 200 fs) à une cadence de 80 MHz. La longueur d'onde est centrée autour de 800 nm. La cadence de 80 MHz correspond au temps que met un photon à faire un aller-retour dans la cavité. La puissance moyenne à la sortie du laser Ti : Saphir est de $\sim 1,8$ Watt. L'impulsion laser femto seconde vient exciter un OPO (*Optical Parametric Oscillator*) permettant d'obtenir des impulsions ultra-courtes accordables de 1,2 à 2,3 μm de longueur d'onde en utilisant l'onde 'Signal' ou 'Idler'. Pour notre expérience, la longueur d'onde de la source est fixée à $\lambda = 1550$ nm avec une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 25$ nm.

6.1.2) L'expérience pompe-sonde

Le principe de la mesure résolue temporellement repose sur la saturation de l'absorption : elle consiste à observer, à l'aide d'une impulsion sonde, la reconstruction temporelle de l'absorption d'une transition intrabande blanchie à l'instant initial par une impulsion pompe de forte intensité.

La figure suivante 6.1 décrit le montage classique de type pompe-sonde inspiré de l'interféromètre de Michelson. L'impulsion délivrée par la source est séparée en deux parties sur un cube séparateur spécialement traité aux longueurs d'onde des télécommunications. L'impulsion pompe est décalée temporellement par rapport à l'impulsion sonde grâce à un coin-cube mobile. Les deux faisceaux sont ensuite recombinaison de manière colinéaire mais

séparés spatialement. Un objectif de microscope $\times 10$ (A. N. = 0,25) est utilisé pour focaliser les faisceaux pompe et sonde sur l'échantillon et un autre objectif identique pour collecter le faisceau sonde transmis. Finalement, en utilisant un filtre spatial (diaphragme), on élimine une grande partie du faisceau pompe résiduel. Le faisceau sonde transmis est détecté par une photodiode en Germanium. L'utilisation d'un détecteur Germanium par rapport à une photodiode InGaAs permet de s'affranchir des processus non-linéaires d'ordre deux générés dans le détecteur lorsque les intensités lumineuses sont très grandes (absorption à deux photons, génération de second harmonique,...). Puisque les longueurs d'onde pompe et sonde sont identiques, il est difficile de s'affranchir complètement du signal pompe. Une dernière astuce consiste à jouer sur la polarisation des deux faisceaux (pompe et sonde). Plus précisément, le faisceau sonde est polarisé TM ($\theta = 0^\circ$) et le faisceau pompe à $\theta = -45^\circ$. En plaçant un polariseur à $\theta = +45^\circ$ devant la détection, on s'affranchit très fortement du signal pompe résiduel. Cette configuration permet d'obtenir une composante de polarisation des deux faisceaux (pompe et sonde) suivant l'axe de croissance c afin de satisfaire la règle de sélection en polarisation de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$. Pour bénéficier d'une grande sensibilité, on utilise une détection synchrone permettant de démoduler le signal sonde à la fréquence du faisceau pompe haché mécaniquement.

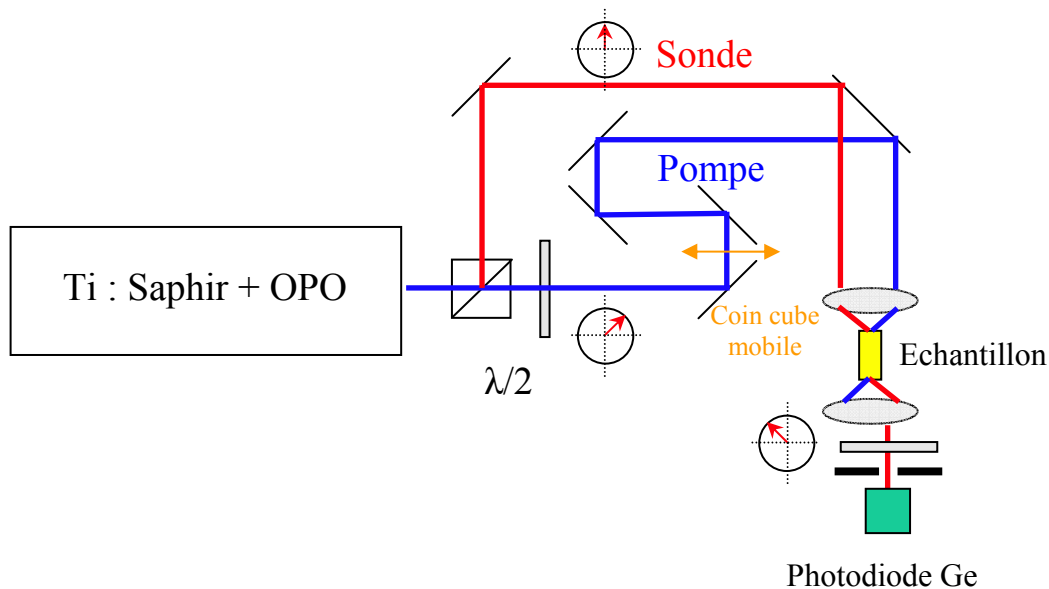


Fig. 6.1 : Schéma du montage expérimental pompe-sonde.

6.1.3) Mesure du temps de relaxation intrabande des électrons

La mesure résolue en temps que je présente a été effectuée sur le même échantillon que celui étudié dans le chapitre 5, c'est-à-dire l'échantillon E1150. La longueur d'onde de la source est fixée à $\lambda=1550$ nm, c'est-à-dire, en résonance avec la transition $s \rightarrow p_z$ dans les boîtes quantiques GaN. La puissance moyenne de la pompe est de 20 mW tandis que celle de la sonde est de 1 mW. Cela nous donne un ratio pompe-sonde égal à 20. Pour l'expérience, les facettes opposées de l'échantillon sont polies à 45° pour former un guide d'onde multi passages. La longueur de l'échantillon est de 1,6 mm et son épaisseur de $420 \mu\text{m}$. Dans cette configuration, la lumière passe à peu près quatre fois à travers la couche active comme illustré sur la figure 6.2 à droite. La figure 6.2 gauche montre le spectre de transmission de l'échantillon pour cette configuration. L'absorption à la longueur d'onde de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN est de 57 %.

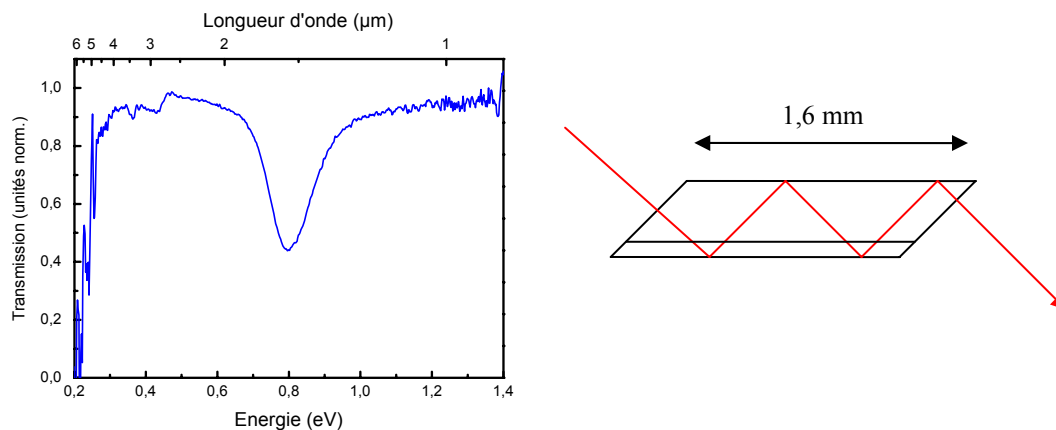


Fig. 6.2 : À gauche : spectre de transmission de l'échantillon E1150 mesuré dans un guide d'onde multi passages. À droite : schéma du guide multi passages.

La figure suivante (6.3) présente l'intensité sonde transmise à travers l'échantillon en fonction du délai entre la pompe et la sonde.

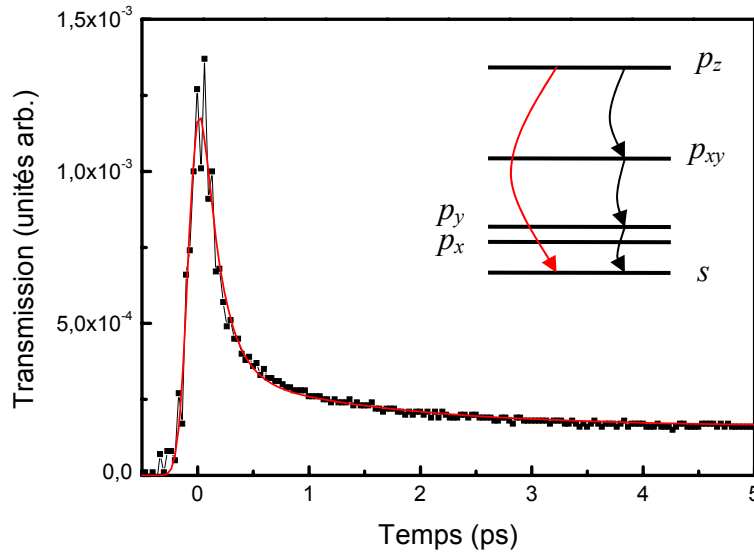


Fig. 6.3 : Transmission de la sonde à travers l'échantillon en fonction du retard entre l'impulsion sonde et l'impulsion pompe. La courbe rouge illustre l'ajustement par une convolution entre une Gaussienne et une fonction multi-exponentielle décroissante.

Lorsque l'impulsion sonde arrive au même instant que l'impulsion pompe ($t=0$), la transmission de la sonde augmente brusquement du fait du blanchiment de l'absorption par l'impulsion pompe. Lorsque la sonde traverse l'échantillon après la pompe, elle sonde la reconstruction de l'absorption qui a eu lieu du fait de la relaxation des porteurs injectés dans p_z par l'impulsion pompe, vers l'état fondamental (s) des boîtes quantiques.

A $t=0$, on observe sur le graphe des oscillations rapides. Elles correspondent aux interférences entre le faisceau sonde et le résidu de faisceau pompe non filtré. On remarque une décroissance rapide entre 0 et 1 ps suivie d'une décroissance lente du signal transmis. La transmission de la sonde après 5 ps est toujours supérieure à celle à $t<0$. Ceci suggère la présence de plusieurs constantes de temps pour le retour à l'équilibre de l'absorption intrabande. Un tel comportement a aussi été observé sur les puits quantiques GaN/AlN [Ham05]. Le temps de décroissance long peut être attribué aux phénomènes de piégeage/dépiégeage des porteurs par les défauts profonds.

Le temps de relaxation des porteurs est extrêmement court, du même ordre de grandeur que la largeur temporelle de l'impulsion laser. Il est donc important de tenir compte de la largeur temporelle du laser pour décrire la saturation. L'intensité de sonde transmise au moment t est donnée par :

$$I(t) = Cste \int_{-\infty}^t \exp\left(-\frac{(s-t_0)^2}{2\sigma^2}\right) \left[\exp\left(-\frac{(t-s)^2}{\tau_1}\right) + \exp\left(-\frac{(t-s)^2}{\tau_2}\right) + \dots + \exp\left(-\frac{(t-s)^2}{\tau_k}\right) \right] ds$$

où t_0 est le moment d'arrivée de l'impulsion pompe, $2\sigma\sqrt{2\ln(2)}$ donne la largeur totale à mi-hauteur de l'impulsion pompe et τ_1, τ_2, τ_k sont les temps caractéristiques de réponse du milieu. C'est une convolution d'une courbe Gaussienne correspondant à l'impulsion pompe avec une fonction multi-exponentielle décroissante correspondant aux temps de relaxation des porteurs. L'expression de $I(t)$ peut être simplifiée (en faisant un changement de variable) de la manière suivante :

$$I(t) = C \left(\exp\left(\frac{\sigma^2}{2\tau_1^2}\right) \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{\tau_1}\right) N\left(\frac{t-t_0}{\sigma} - \frac{\sigma}{\tau_1}\right) + \dots + \exp\left(\frac{\sigma^2}{2\tau_k^2}\right) \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{\tau_k}\right) N\left(\frac{t-t_0}{\sigma} - \frac{\sigma}{\tau_k}\right) \right)$$

$$\text{où la fonction } N\left(\frac{t-t_0}{\sigma} - \frac{\sigma}{\tau_1}\right) = \int_{-\infty}^{\left(\frac{t-t_0}{\sigma} - \frac{\sigma}{\tau_1}\right)} \exp\left(-\frac{s^2}{2\sigma^2}\right) ds$$

La fonction $N(x)$ est tabulée dans de nombreux logiciels de calcul. Pour réaliser l'ajustement des données expérimentales, nous avons choisi Matlab et utilisé la fonction « lsqnonlin » avec les paramètres ajustables suivants : $\sigma, \tau_1, \tau_2, \tau_3, t_0$ et C .

Le meilleur ajustement se trouve être pour une Gaussienne ayant une largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de ~ 188 fs. Quant à la décroissance de la transmission, le meilleur ajustement de la courbe expérimentale est obtenu par une loi bi-exponentielle : $A\exp(-t/\tau_1) + B\exp(-t/\tau_2)$ avec $\tau_1=163$ fs et $\tau_2=1,5$ ps. Le temps τ_3 est trouvé très supérieur à τ_1 et τ_2 . Une constante a alors été ajoutée pour remplacer la troisième exponentielle décroissante qui est très lente. Son temps de décroissance est très supérieur à 10 ps mais inférieur à 12,5 ns, ce dernier temps correspond à la cadence du laser.

Le premier temps ($\tau_l=163$ fs) qui est extrêmement court, traduit la durée de vie des électrons dans l'état p_z . La valeur est comparable avec le temps de relaxation intersousbande mesuré dans les puits quantiques GaN/AlN par plusieurs auteurs [Heb02], [Iiz00], [Ham04], [Ham05], [Wan05], [Wan06]. L'argument suivant permet d'expliquer ce résultat étonnant : il existe un grand nombre de niveaux relais pouvant participer à la relaxation vers le niveau fondamental s dans les boîtes quantiques GaN/AlN. La multiplication des chemins de relaxation possibles est probablement la cause de la durée de vie très courte dans l'état p_z . Cette relaxation se fait soit directement de l'état p_z vers le niveau fondamental s , soit via la relaxation sur un niveau intermédiaire comme les niveaux p_{xy} par exemple. Ceci est schématisé en insert de la figure 6.3. Des résultats similaires ont été obtenus dans les boîtes quantiques InAs/GaAs [Sau98], [Mül03] et InAs/AlInAs [Pér03]. Le deuxième temps $T_l^b=1,5$ ps traduit la thermalisation des électrons dans l'état fondamental s .

6.1.4) Temps de cohérence T_2 et durée de vie T_1

Le temps de cohérence T_2 est le temps caractéristique au bout duquel la relation de phase entre le champ de l'onde électromagnétique excitatrice et l'oscillation entre les deux niveaux d'énergie du porteur est perdue. Il est à l'origine de la largeur de raie non nulle d'une transition entre deux niveaux d'énergie discrets. Plus ce temps est court, plus la largeur homogène de la transition est grande ($\Delta E_{FWHM}=2\hbar/T_2$).

Pour un système à deux niveaux g et e , le temps de cohérence T_2 est relié aux durées de vie T_l^g et T_l^e des deux niveaux par la relation [Cohen-Tan95] :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_l^g} + \frac{1}{T_l^e} \right) + \gamma$$

Cette relation traduit le fait que la largeur de raie est donnée par la durée de vie des deux états (par exemple, pour un atome isolé la durée de vie est donnée par le temps d'émission spontanée) et par un terme éventuel d'amortissement supplémentaire γ . Dans un gaz, γ a par exemple pour origine les collisions élastiques entre les molécules. Dans les puits quantiques, γ contribue largement à la largeur de raie. Il provient en effet, de la relaxation très rapide des porteurs en bas de la sousbande par interaction électron-électron, émission de phonons

optiques ou acoustiques, par diffusion sur les impuretés ou les interfaces rugueuses des puits. Chaque changement du moment k du porteur à l'intérieur de la sousbande est un processus déphasant. Dans les puits quantiques GaN/AlN, ce déphasage intrasousbande a lieu typiquement en 10 à 30 fs [Suz97], [Tch06], [Wan05], [Wan06].

Dans les boîtes quantiques, on s'attend en revanche à ce que les processus déphasants γ soient beaucoup moins efficaces, c'est-à-dire, qu'il n'y ait pas de processus déphasant inélastique. En d'autres termes, il n'y a pas de mécanisme qui change brutalement la phase de la fonction d'onde du porteur sans que celui-ci change d'énergie ($\gamma \sim 0$).

L'élargissement de la transition est donc limité par la durée de vie :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1^g} + \frac{1}{T_1^e} \right)$$

De plus, si l'on considère que l'état g est l'état fondamental ($T_1^g = \infty$), on obtient la relation très simple :

$$T_2 = 2 \times T_1$$

Ceci est une différence fondamentale entre les boîtes et les puits quantiques car pour ces derniers, l'élargissement homogène d'une transition intersousbande n'est pas limité par la durée de vie mais plutôt par le terme γ .

Sur l'échantillon E1150 comprenant 200 plans de boîtes quantiques GaN, j'ai mesuré un temps de relaxation T_1 intrabande $p_z \rightarrow s$ égal à ~ 163 fs. Grâce à cette mesure, nous pouvons estimer le temps de cohérence $T_2 \sim 326$ fs. Ce temps de cohérence de phase correspond à une largeur totale de raie homogène pour la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ de ~ 4 meV ($\Delta E = 2\hbar/T_2$). Cette dernière valeur ($\Delta E = 4$ meV) est en bon accord avec la largeur de raie extraite des mesures d'émission intrabande décrites dans la section 5.3.4). De plus, cette valeur est un ordre de grandeur plus faible que celle de la largeur homogène intersousbande mesurée dans les puits quantiques GaN/AlN (voir échantillon E935 chapitre 4, $\Delta E_{FWHM} = 40$ meV). Cette réduction d'un facteur 10 de la largeur de raie intrabande dans les boîtes quantiques comparée aux puits quantiques a déjà été observée pour les boîtes quantiques InAs/GaAs [Sau02b] par rapport aux puits quantiques InGaAs/GaAs [Cam96].

6.2) Mesure de l'intensité de saturation intrabande

Dans cette dernière partie, je présente des mesures visant à déterminer l'intensité de saturation I_s de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN/AlN. Ce paramètre fondamental est relié au dipôle de la transition intrabande $\mu_{s \rightarrow p_z}$, au temps de relaxation T_1 et au temps de cohérence T_2 des électrons par la relation suivante :

$$I_s = \frac{nc\varepsilon_0\hbar^2}{2\mu_{s \rightarrow p_z}^2 T_1 T_2} (*) \text{ avec } I_s \text{ définie comme } \alpha(I_0) = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I_0}{I_s}} .$$

La démonstration de cette formule basée sur les équations de la matrice densité est proposée en annexe.

6.2.1) Revue des mesures de saturation intersousbande

Les premières mesures de saturation intersousbande ont été effectuées en 1988 par Julien *et al.* dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs en utilisant un laser CO₂ à $\lambda \sim 10 \mu\text{m}$ [juju88], [juju93].

Ces auteurs ont mesuré une intensité de saturation $I_s \sim 340 \text{ kWatt/cm}^2$ et déduit un temps de relaxation $T_1 \sim 1 \text{ ps}$. Ces mesures ont été reprises sept ans plus tard par Duboz *et al.* en utilisant un laser à électrons libres pour la caractérisation de photodétecteurs QWIP [Dub95a], [Dub95b]. En 1996, Vodopyanov *et al.* ont mesuré directement le temps de cohérence électronique par des mesures de *hole burning* spectral dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs et InGaAs/AlInAs à $\lambda \sim 5 \mu\text{m}$ de longueur d'onde [Vodo96], [Vodo97]. Toutes ces mesures visent à déterminer les temps T_1 ou T_2 lorsque l'énergie de la transition se situe au dessus de l'énergie du phonon optique LO . D'autres mesures ont été effectuées à plus grande longueur d'onde (plus petites énergies) dans le but d'étudier la relaxation des porteurs en dessous de l'énergie du phonon optique LO [Obe87], [Hel93], [Fai94b].

L'intensité de saturation I_s est un paramètre essentiel pour la réalisation d'absorbants saturables dans le but de fabriquer des commutateurs tout-optiques ultra-rapides. Leur réalisation aux longueurs d'onde des télécommunications par fibres optiques a été démontrée dans trois familles de matériaux.

Dans les puits quantiques InGaAs/AlAs/AlAsSb, Mozume *et al.* ont obtenu une énergie de saturation de $3 \text{ fJ}/\mu\text{m}^2$ ($2 \text{ MWatt}/\text{cm}^2$) à $\lambda \sim 1,68 \mu\text{m}$ dans la configuration « zigzag » [Moz03], [Gop03]. En utilisant un système à puits couplés, ils ont atteint difficilement $\lambda \sim 1,55 \mu\text{m}$ [Akiy02], [Sim07]. Très récemment, ces auteurs ont fabriqué un démultiplexeur 160 Gbit/s-10 Gbit/s en utilisant ce matériau (InGaAs/AlAs/AlAsSb). Ils obtiennent un contraste de 10 dB en propagation guidée avec une énergie d'impulsion de 8 pJ [Aki07].

Les matériaux II-VI sont aussi très prometteurs. En effet, dans des puits quantiques CdS/ZnSe/BeTe, un contraste de 10 dB à $\lambda \sim 1,55 \mu\text{m}$ a été mesuré pour une énergie de pompe de seulement 13,3 pJ en propagation guidée [Aki05], [Akita06]. La valeur la plus faible rapportée récemment est une énergie pompe $< 7 \text{ pJ}$ pour un contraste de 10 dB [Con07b]. L'avantage de ces matériaux émergents est que la croissance est réalisée à l'accord de maille sur substrat GaAs (100).

Dans les puits quantiques GaN/AlN, plusieurs équipes ont étudié l'intensité de saturation dans la perspective de fabriquer des commutateurs optiques multi-Terabits/s. En 2002, Iizuka *et al.* ont déterminé une intensité de saturation de $\sim 360 \text{ MWatt}/\text{cm}^2$ ($\sim 0,5 \text{ pJ}/\mu\text{m}^2$) à $\lambda \sim 1,46 \mu\text{m}$ à l'incidence de Brewster [Iiz02]. Néanmoins, la mesure est difficile et la courbe qu'ils présentent dans leur article est très bruitée [Iiz02] (voir fig 6.4).

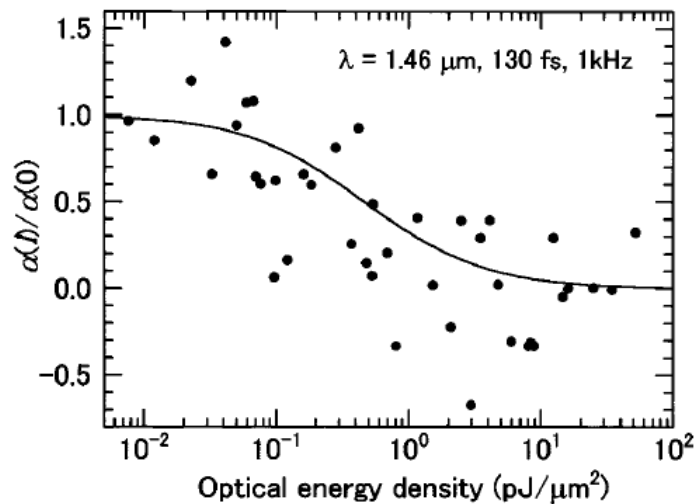


Fig. 6.4 : Courbe de saturation intrabande des puits quantiques GaN/AlN mesurée par Iizuka *et al.* [Iiz02].

En 2003, l'équipe de Claire Gmachl à *Bell Laboratories* [Rap03] a effectué des mesures similaires mais dans la configuration « zigzag » et a observé une intensité de saturation $I_s \sim 500 \text{ MWatt/cm}^2$ ($\sim 0,5 \text{ pJ}/\mu\text{m}^2$), très proche de la valeur rapportée par Iizuka *et al.* La susceptibilité non linéaire d'ordre trois déduite de ces mesures (en utilisant la relation de Kramers-Kronig) est de $|\chi^{(3)}| = 5 \times 10^{-19} \text{ m}^2 / \text{V}^2$.

En 2004, l'équipe de Kishino au Japon [Ham04] a mesuré une intensité de saturation de $\sim 4,3 \text{ GWatt/cm}^2$, soit un ordre de grandeur supérieur à celle mesurée par les deux autres équipes. Ces auteurs expliquent cette différence par un dopage plus important dans leur structure. Ce dopage plus important induit un temps de déphasage T_2 plus court, et donc, une intensité de saturation I_s plus grande.

Depuis, Iizuka *et al.* à Toshiba ont continué l'étude et réalisé des absorbants saturables aboutis [Iiz04], [Iiz05], [Iiz06a], [Iiz06b], [Shim07], [Kum07]. La meilleure valeur obtenue à titre de comparaison avec les autres matériaux est un taux d'extinction de 10 dB pour une énergie pompe de $\sim 100 \text{ pJ}$ [Iiz06b]. Cette valeur a déjà beaucoup diminué grâce à l'amélioration de la qualité cristalline du matériau, mais aussi de la qualité des flancs des guides gravés [Shim07], [Kum07].

Récemment, l'équipe de Roberto Paiella à l'Université de Boston a montré qu'en optimisant le guide d'onde, c'est-à-dire, en augmentant le recouvrement modal du champ électromagnétique avec les puits quantiques, l'énergie de saturation peut être diminuée à 38 pJ pour une profondeur de modulation de 10 dB [Li.Y07a], [Li.Y07b]. Pour diminuer encore l'énergie de saturation, ces auteurs travaillent sur l'insertion de puits quantiques couplés dans la région active [Sun05], [Li.Y06], [Dri07].

6.2.2) Les boîtes quantiques GaN/AlN

L'utilisation des boîtes quantiques GaN/AlN comme milieu actif pour les absorbants saturables est intéressante. En effet, l'idée est de profiter du temps de cohérence T_2 des électrons plus long dans les boîtes que dans les puits quantiques pour diminuer l'intensité de saturation. Si ce temps T_2 est dix fois plus long, on peut espérer obtenir une énergie de saturation d'un ordre de grandeur plus faible.

Pour une transition intersousbande dans un puits quantique GaN/AlN ($n=2,3$) présentant un dipôle de $z_{12}=0,5$ nm ($\mu_{12}=e \times z_{12}$), une durée de vie $T_1=160$ fs, et un temps de déphasage de $T_2=16,5$ fs ($\Delta E_{FWHM} = 80$ meV [Iiz02]), l'intensité de saturation calculée à partir de la formule (*) est de $I_s \sim 180$ MWatt/cm². Cette dernière valeur est proche des mesures effectuées par Iizuka *et al.* [Iiz02] et Rapaport *et al.* [Rap03].

A titre de comparaison, pour une transition intrabande dans une boîte quantique GaN/AlN ($n=2,3$) présentant un dipôle identique au puits quantique, c'est-à-dire de $z_{s \rightarrow pz}=0,5$ nm, une durée de vie $T_1=160$ fs, et un temps de déphasage de $T_2=320$ fs ($T_2=2 \times T_1$), l'intensité de saturation chute à $I_s \sim 9,3$ MWatt/cm².

6.2.3) Expérience de saturation de l'absorption intrabande $s \rightarrow p_z$

L'étude de saturation a été menée en collaboration avec Juliette Mangeney au laboratoire. Pour réaliser l'expérience, j'ai utilisé la même source que celle utilisée pour la mesure pompe-sonde. Le profil temporel de l'impulsion est de type Gaussien avec une largeur totale à mi-hauteur de ~ 200 fs. La longueur d'onde est fixée à $\lambda=1,55$ μm avec un élargissement de $\Delta\lambda=25$ nm. L'expérience a été réalisée avec un seul faisceau traversant l'échantillon contenant les boîtes quantiques GaN dans la même configuration zigzag (avec deux réflexions internes) que celle utilisée pour la mesure pompe-sonde. La polarisation du faisceau est orientée TM (p) par rapport au plan des couches. Au vu de la longueur de l'échantillon et en tenant compte du profil spatial du faisceau ainsi que de sa convergence (voir fig. 6.5), la saturation ne peut se produire que pour une réflexion.

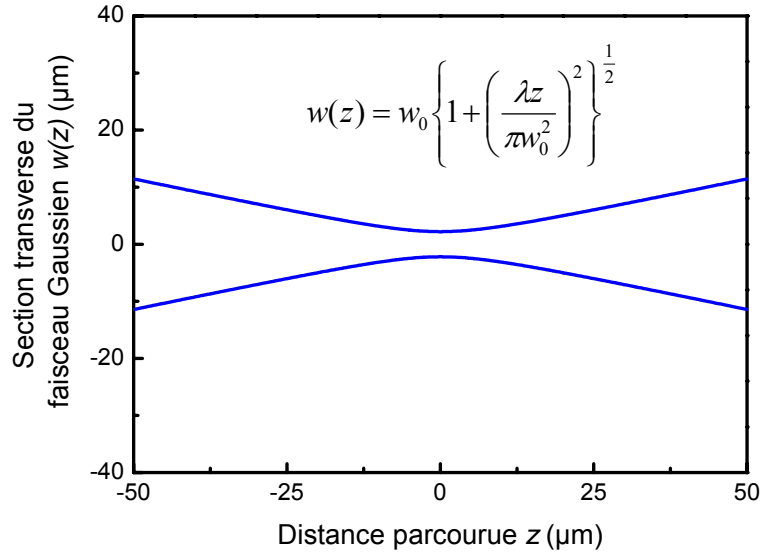


Fig. 6.5 : Profil spatial du faisceau.

Le faisceau est haché mécaniquement à 200 Hz. La transmission de l'échantillon est mesurée grâce à une photodiode Ge dont le signal est démodulé à l'aide d'une détection synchrone. La puissance du faisceau d'excitation est mesurée avant l'échantillon grâce à un puissance-mètre soigneusement calibré. Un atténuateur linéaire variable sur quatre décades est utilisé pour varier continûment la puissance. L'expérience est réalisée à température ambiante.

Sur la courbe suivante (fig. 6.6) est tracée l'évolution de la puissance transmission à travers l'échantillon divisée par la puissance incidente P_t/P_0 en fonction de la puissance incidente P_0 .

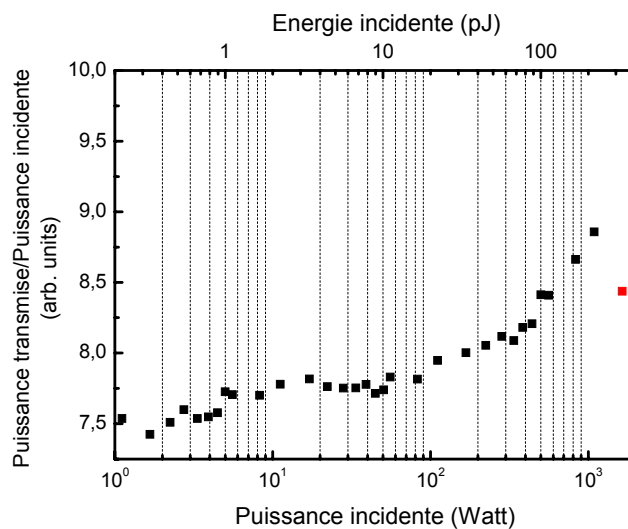


Fig. 6.6 : Evolution de la puissance transmise à travers les boîtes quantiques GaN en fonction de la puissance incidente.

Sur la courbe suivante (fig. 6.7) est tracée l'évolution de la transmission de l'échantillon divisée par l'intensité incidente I_t/I_0 en fonction de l'intensité incidente I_0 . Les carrés noirs sont les points expérimentaux, la courbe rouge est un ajustement théorique expliqué par la suite. L'échelle en ordonnée est normalisée à 1 par rapport à l'ajustement théorique (courbe rouge).

L'échelle en intensité est normalisée par la transmission de Fresnel aux interfaces Air ($n=1$)/Saphir ($n\sim 1,7$) et Saphir ($n\sim 1,7$)/Boîtes quantiques ($n\sim 2,1$) tenant compte des angles de réfraction. Après calcul, la puissance dans les plans de boîtes quantiques est égale à 38,2 % de la puissance incidente mesurée.

L'échelle en intensité est également normalisée par la configuration où le faisceau se propagerait directement dans le guide d'onde. C'est-à-dire, dans la situation où la direction du champ électrique serait parallèle au dipôle $\vec{\mu}_{s \rightarrow p_z}$ de la transition intrabande des boîtes quantiques. On a donc $I_0^{\text{guide d'onde}} = I_0^{\text{zigzag}} \times \sin^2(\theta)$ où $\theta \sim 35^\circ$ est l'angle entre le faisceau et la normale à la surface de l'échantillon.

Pour obtenir l'intensité (en Watt/cm²), j'ai normalisé la puissance mesurée par la surface au *waist* calculée pour le faisceau Gaussien ($S \sim 21,5 \mu\text{m}^2$). Ceci suppose que les plans de boîtes quantiques se trouvent au point de focalisation du faisceau. Vu la forte divergence du faisceau illustrée sur la figure 6.5, une petite variation de la position de l'échantillon sur la distance focale entraîne une forte diminution de l'intensité dans le plan des boîtes quantiques. Ainsi, les intensités présentées sur le graphe sont des valeurs maximales, certainement surestimées.

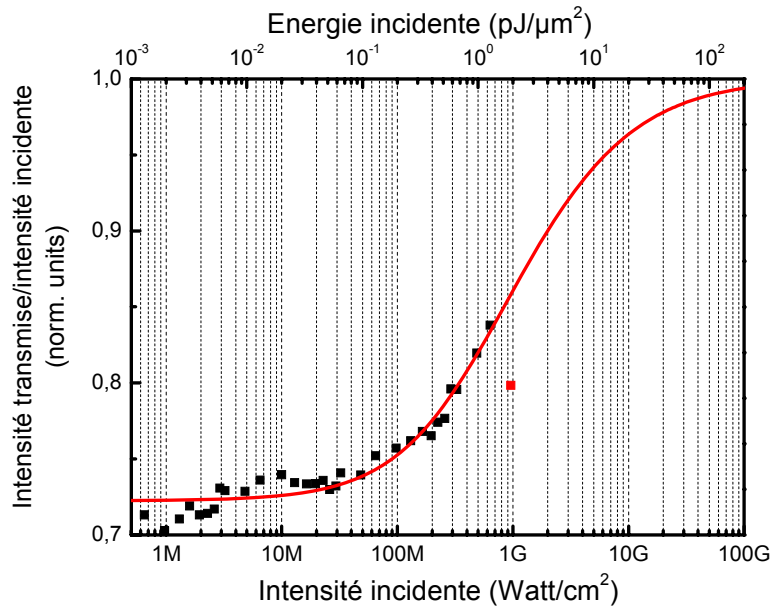


Fig. 6.7 : Evolution de la transmission des boîtes quantiques GaN en fonction de l'intensité incidente.

Sur la figure 6.7, la transmission de l'échantillon est à peu près constante pour des intensités I_0 comprises entre 1 et 100 MWatt/cm². Pour des intensités I_0 supérieures à 100 MWatt/cm², on observe une augmentation de la transmission avec l'intensité. Pour $I_0 \sim 1$ GWatt/cm², la transmission a augmenté de ~15 % par rapport à sa valeur initiale. Cette augmentation progressive de la transmission en fonction de l'intensité incidente est une signature du blanchiment de l'absorption intrabande des boîtes quantiques GaN.

6.2.4) Modèles

L'évolution de l'absorption α en fonction de l'intensité lumineuse incidente I_0 en régime stationnaire est décrite par la fonction suivante :

$$\alpha(I_0) = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I_0}{I_s}} \quad \text{où } I_s \text{ représente l'intensité de saturation.}$$

L'intensité de saturation I_s est l'intensité pour laquelle l'absorption α a diminué de moitié. Puisque la transmission $I_t/I_0 = \exp(-\alpha L)$, l'évolution de la transmission en fonction de l'intensité incidente suit la loi suivante :

$$\frac{I_t}{I_0} = \exp\left(-\alpha_0 L / \left(1 + \frac{I_0}{I_s}\right)\right).$$

Néanmoins, plusieurs facteurs doivent être pris en considération en fonction des conditions expérimentales utilisées :

- Pour une forte absorption par unité de longueur de la pompe dans l'échantillon, il faut prendre en compte l'atténuation de l'intensité I_0 durant la propagation ℓ dans la zone active. Il faut donc résoudre l'équation différentielle de Beer-Lambert qui est : $\frac{dI(\ell)}{d\ell} = -\alpha(I)I(\ell)$.

La solution de cette équation pour l'intensité transmise s'écrit de façon implicite sous la forme :

$$\ln\left(\frac{I_t}{I_0}\right) + I_0 \left(\frac{I_t/I_0 - 1}{I_s}\right) = -\alpha_0 L$$

où I_t/I_0 représente la transmission et I_0 l'intensité incidente. Les paramètres ajustables sont l'absorbance $\alpha_0 L$ et l'intensité de saturation I_s .

- Il faut aussi tenir compte du profil spatial Gaussien du faisceau, auquel cas, l'intensité transmise I_t se calcule de la manière suivante :

$$I_t = \frac{I_0}{S} \int_0^{+\infty} \exp(-r^2/a^2) (1 - \alpha(r)) 2\pi r dr$$

$$I_t = \frac{I_0}{\pi a^2} \int_0^{+\infty} \exp(-r^2/a^2) \left(1 - \frac{\alpha_0 L}{1 + \frac{I_0}{I_s} \exp(-r^2/a^2)}\right) 2\pi r dr.$$

L'ajustement des points expérimentaux s'effectue avec la fonction suivante [\[uju88\]](#) :

$$\frac{I_t}{I_0} = \exp\left(-\alpha_0 L \frac{I_s}{I_0} \ln\left(1 + \frac{I_0}{I_s}\right)\right).$$

- Finalement, la répartition temporelle Gaussienne de l'impulsion doit elle aussi être prise en considération pour les impulsions courtes [Hel93], [Dub95a]. Puisque le temps de retour à l'équilibre des porteurs ($T_1 \sim 165$ fs) est proche de la durée de l'impulsion pompe (~ 200 fs), il faut résoudre l'équation différentielle à taux de population régissant l'évolution temporelle du système :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_2}{dt} = \sigma\Phi(N_1 - N_2) - \frac{N_2}{T_1} \\ N = N_1 + N_2 = Cste \end{array} \right\} \Rightarrow \frac{dN_2}{dt} = \sigma\Phi N - \left(2\sigma\Phi + \frac{1}{T_1}\right)N_2$$

où Φ représente le flux de photons d'énergie $h\nu$ défini comme : $\Phi = \frac{I}{h\nu} = \Phi_0 \exp(-t^2/\Delta^2)$,

$N_1(t)$ et $N_2(t)$ sont les populations des niveaux 1 et 2 dépendantes du temps. N représente la population totale du système.

Pour simplifier la résolution de l'équation différentielle, on peut approximer le profil temporel Gaussien de l'impulsion par un profil rectangulaire dont la largeur est Δ .

Nous négligeons également la dispersion d'indice dans l'échantillon ($\frac{d\tilde{n}}{d\lambda} = 0$).

Après résolution de l'équation différentielle, nous obtenons :

$$\alpha(t) = \sigma(N_1(t) - N_2(t)) = \alpha_0 \left\{ \frac{1 + \frac{I_0}{I_s} \exp\left(-\frac{t}{T_1} \left(1 + \frac{I_0}{I_s}\right)\right)}{1 + \frac{I_0}{I_s}} \right\}.$$

Il reste à intégrer $\alpha(t)$ sur la largeur temporelle Δ de l'impulsion : $\alpha(I_0) = \frac{1}{\Delta} \int_0^\Delta \alpha(t) dt$.

On aboutit à la fonction suivante [Hel93] :

$$\frac{I_t}{I_0} = \exp \left\{ -\frac{\alpha_0}{1 + \frac{I_0}{I_s}} \left(1 - \frac{I_0 T_1}{I_s \Delta} \frac{1}{\left(1 + \frac{I_0}{I_s}\right)} \left(\exp\left(-\frac{\Delta}{T_1} \left(1 + \frac{I_0}{I_s}\right)\right) - 1 \right) \right) \right\}.$$

Sur le graphe 6.8 sont tracés les quatre cas théoriques cités précédemment. Pour ces quatre courbes, $I_s = 10^9$ Watt/cm² et $\alpha_0 L = 0,3$ ce qui est proche des conditions expérimentales. Le trait

continu rouge représente le cas où aucune correction n'est prise en compte. La courbe avec les carrés bleus représente le cas où la pompe est progressivement absorbée par l'échantillon. On remarque que prendre en considération la déplétion de la pompe n'a pas beaucoup d'incidence, ce qui est logique puisque l'absorption par réflexion $\alpha_0 L$ est faible $\sim 30\%$.

La courbe discontinue verte représente la situation où le profil spatial Gaussien du faisceau est pris en considération. Finalement, la courbe discontinue rose représente la situation où le profil temporel court Δ de l'impulsion devant T_1 est pris en compte.

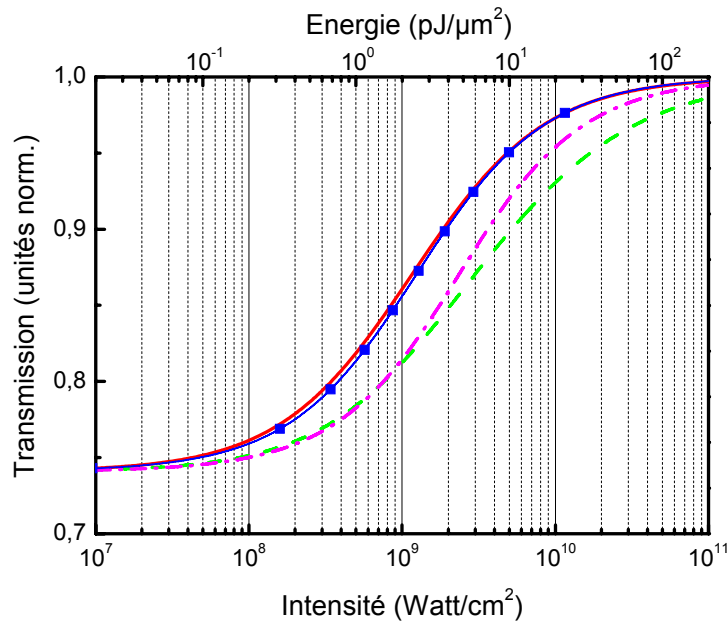


Fig. 6.8 : Evolution de la transmission en fonction de l'intensité d'excitation pour les quatre modèles décrits dans le texte.

Les effets les plus importants sont de toute évidence le profil spatial Gaussien de la pompe et sa dépendance temporelle. En combinant la dépendance spatiale et temporelle, la résolution analytique devient très fastidieuse. Nous avons donc résolu numériquement ces équations et l'ajustement a été effectué par la technique des moindres carrés. Le meilleur ajustement (courbe rouge sur la figure 6.7) est pour une absorbance de $\alpha L=0,32$ et une intensité de saturation $I_s \sim 137 \text{ MWatt/cm}^2$ ($\sim 0,27 \text{ pJ}/\mu\text{m}^2$). Cette dernière valeur de I_s est 14 fois supérieure à la valeur théorique attendue initialement de $I_s \sim 9,3 \text{ MWatt/cm}^2$. Comment expliquer cet écart ? D'autres facteurs n'ont pas été pris en considération :

- De toute évidence, réduire l'élargissement temporel Gaussien à un rectangle contribue à surestimer l'intensité de saturation I_s .
- De plus, la nature inhomogène des absorptions intrabandes des boîtes quantiques n'est pas prise en compte. Elle pourrait être décrite de la manière suivante [Iiz02] :

$$\frac{\alpha(I_0)}{\alpha_0} = \frac{\sum_i \frac{p_i g_i(\nu)}{1 + I_0/I_s^i}}{\sum_i p_i g_i(\nu)}$$

p_i et I_s^i représente le ratio de densité de porteurs et l'intensité de saturation pour la $i^{\text{ème}}$ taille de boîtes quantiques. $g_i(\nu)$ représente l'élargissement Lorentzien de l'absorption i . Néanmoins, puisque nous ne connaissons pas la valeur de cet élargissement $g_i(\nu)$, ni le nombre i de taille de boîtes quantiques différentes contribuant à l'absorption du faisceau pompe ($\lambda=1,55 \mu\text{m}$ et $\Delta\lambda=25 \text{ nm}$), l'inhomogénéité ne peut pas être prise en compte.

Cependant, il est facile de comprendre que lorsque l'on sature une taille i de boîtes quantiques, les raies d'absorption spectralement voisines ($i+1$) et ($i-1$) contribuent également à l'absorption du faisceau pompe. Ainsi, l'intensité de saturation I_s déterminée précédemment est encore surestimée puisque l'absorption des boîtes ($i+1$) et ($i-1$) n'est pas saturée [Vodo97], [Iiz02].

- Finalement, l'incertitude la plus grande dans mon expérience est la valeur de la surface de la tache du faisceau pompe sur les plans de boîtes quantiques. Dans la normalisation de l'échelle en intensité, la valeur de cette surface est $\sim 21,5 \mu\text{m}^2$. Cette valeur est la plus petite possible d'après la convergence Gaussienne du faisceau. Si l'on regarde le graphe où est tracé le profil spatial du faisceau (fig 6.5), un décalage de $35 \mu\text{m}$ sur la distance focale par rapport au *waist*, augmente la surface d'excitation à $\sim 295 \mu\text{m}^2$. L'intensité de saturation I_s diminuerait alors d'un facteur ~ 14 !

6.2.5) Limite du modèle de saturation d'un système à deux niveaux

Le modèle utilisé pour déterminer l'intensité de saturation développé en annexe suppose deux approximations discutables :

-premièrement, le modèle suppose que seulement deux niveaux quantiques participent à l'absorption des photons mais aussi à la relaxation des porteurs. Or nous savons qu'il existe une multitude de niveaux dans les boîtes quantiques. La relaxation peut donc s'effectuer soit directement du niveau p_z vers le niveau fondamental s , soit via des niveaux relais comme les niveaux p_{xy} par exemple.

-deuxièmement, le modèle suppose que l'intensité incidente utilisée durant l'expérience n'est pas trop importante. En fait, l'approximation reste valable tant que la période des oscillations de Rabi $1/\Lambda$ (qui dépend de l'amplitude du champ) reste plus grande que le temps de déphasage T_2 :

$$\Lambda_{ij} = \frac{\overrightarrow{\mu}_{ij} \cdot \overrightarrow{E}_i}{2\hbar} \ll \frac{1}{T_2}$$

Si l'on calcule la période des oscillations de Rabi de notre système pour une intensité de la pompe de 1 GWatt/cm^2 , on trouve une période $(1/\Lambda) \sim 50 \text{ fs}$, valeur très inférieure au temps de déphasage T_2 attendu ($T_2 \sim 320 \text{ fs}$). On sort dans ce cas de la validité du modèle. Sur les graphiques suivants (6.9) est représentée l'évolution des populations s - p_z en fonction du temps pour trois intensités d'excitation différentes qui sont 10 , 100 et 1000 MWatt/cm^2 . A 10 MWatt/cm^2 , le modèle reste valable, à 100 MWatt/cm^2 , les oscillations de Rabi commencent à apparaître, et à 1 GWatt/cm^2 , les oscillations de Rabi sont clairement visibles.

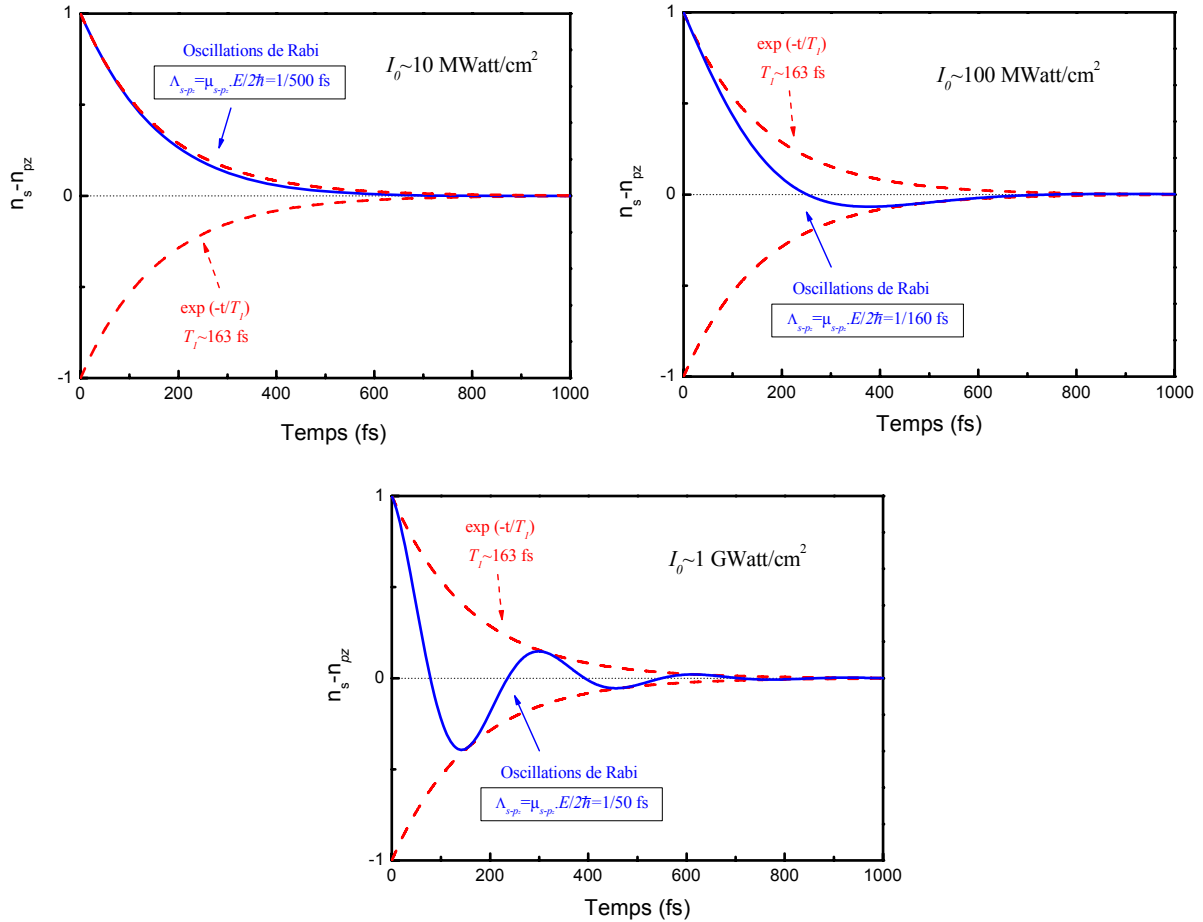


Fig. 6.9 : Evolution de la différence de population $n_s - n_{pz}$ en fonction du temps pour trois intensités d'excitation différentes.

Dans le régime oscillatoire de Rabi, il serait possible d'observer le dédoublement de Rabi, c'est-à-dire, le dédoublement de la raie d'absorption homogène de la transition électronique (Doublet Autler-Townes) [Boyd92], [Cohen-Tan95]. Néanmoins, puisque notre système à boîtes quantiques GaN/AlN est très inhomogène, cela semble difficile.

Dans ce régime où les oscillations de Rabi sont présentes, les équations à taux de population ne sont plus valables. Il faut repartir des équations de Bloch optiques décrivant l'évolution de la matrice densité.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai dans une première partie mesuré le temps de relaxation des porteurs entre les sous-niveaux des boîtes quantiques GaN/AlN à $\lambda=1,55 \mu\text{m}$. Cette durée de vie s'est avérée être aussi courte que dans les puits quantiques GaN/AlN, c'est-à-dire $\sim 163 \text{ fs}$. Ce temps très court peut s'expliquer par la multiplication des chemins de relaxation via les différents sous-niveaux dans les boîtes quantiques. Grâce à la relation $T_2=2\times T_1$, nous pouvons estimer le temps de cohérence T_2 des électrons à $\sim 326 \text{ fs}$. Cette dernière valeur est en accord avec la largeur de raie extrapolée de la mesure d'émission intrabande assistée par processus Raman.

Dans une deuxième partie, j'ai déterminé expérimentalement l'intensité de saturation I_s de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN/AlN. Après plusieurs ajustements théoriques indispensables, l'intensité de saturation I_s extraite se trouve être $\sim 137 \text{ MWatt/cm}^2$. Cette valeur est inférieure à celles rapportées dans la littérature [[Iiz02](#)], [[Rap03](#)] dans les puits quantiques GaN/AlN, mais elle reste supérieure à la valeur attendue ($\sim 9,3 \text{ MWatt/cm}^2$). Cet écart peut s'expliquer par l'incertitude sur la surface de la tache d'excitation S mais également par l'inhomogénéité de la raie d'absorption contribuant à la diminution de I_s . Ces résultats ouvrent des perspectives intéressantes pour la réalisation d'absorbants saturables ultra-rapides à boîtes quantiques GaN/AlN.

Conclusion et Perspectives

Mon travail de thèse est centré sur l'étude des transitions intersousbandes dans les puits et boîtes quantiques GaN/AlN, notamment pour les applications en émission et en modulation aux longueurs d'onde des télécommunications par fibre optique.

Dans le chapitre 2, j'ai mis en évidence en collaboration avec l'équipe d'E. Rosencher, l'amplification résonante de la génération de second harmonique dans les puits quantiques GaN/AlN. La valeur de la susceptibilité non-linéaire $\chi_{zzz}^{(2)}$ d'ordre deux mesurée est de 114 pm/V, soit cinq fois plus grande que dans le GaN massif. Cependant cette amplification résonante reste relativement faible si l'on regarde les résultats obtenus au début des années 90 [Fej89], [Ros89], [Bou90], [Sir91]. Néanmoins, l'exaltation des non linéarités pourrait être fortement augmentée en accroissant le dopage dans les puits quantiques GaN mais aussi en maximisant le produit des trois dipôles (puits couplés). En mettant en œuvre les techniques d'accord de phase [Cho03], [Hah99], on peut envisager la fabrication de convertisseurs de fréquence très efficaces en optique guidée fonctionnant dans le proche infrarouge. Une technique originale pour obtenir l'accord de phase dans les puits quantiques GaN/AlN serait d'utiliser le renversement de polarité Ga, N [Cho03].

Dans le troisième chapitre, j'ai mis en évidence la relaxation radiative entre deux sousbandes de conduction dans les puits quantiques GaN/AlN. Cette émission intersousbande sous pompage optique est observée à température ambiante à la longueur d'onde de $\lambda=2,13 \mu\text{m}$. Le rendement interne de luminescence est faible, seulement 0,3 μW par Watt de puissance pompe, à cause de l'efficacité des mécanismes non radiatifs caractéristique des émetteurs intersousbandes. Néanmoins, ceci n'est pas un obstacle pour la réalisation de lasers intersousbandes performants. Dans la dernière partie de ce chapitre, j'ai montré qu'avec une ingénierie des couches, il est possible d'obtenir l'inversion de population dans les puits quantiques GaN couplés avec une très mince barrière en AlN.

A titre de première étape, j'ai étudié le couplage fort entre puits quantiques de GaN/AlN dans le quatrième chapitre. Cette étude poursuit celle menée par Maria Tchernycheva au laboratoire [Tch06b]. J'ai mis en évidence dans ce chapitre, le transfert tunnel des électrons entre deux puits quantiques GaN couplés par une très fine barrière AlN. Le transfert des

électrons entre les deux puits s'effectue sous l'application d'un champ électrique. Puisque l'absorption intersousbande est directement proportionnelle au nombre de porteurs dans la sousbande fondamentale, la lumière est modulée par l'application d'un champ électrique. Basé sur ce principe, nous avons fabriqué le premier modulateur électro-optique intersousbande fonctionnant aux longueurs d'onde des télécommunications et à température ambiante. En réduisant la taille des dispositifs, notre modulateur présente une bande passante de 1,4 GHz à -3 dB, avec une profondeur de modulation de 44 % [Kei08]. Cette étude ouvre la voie d'une nouvelle génération de modulateurs électro-optiques très rapides dont la bande passante pourrait atteindre 60 GHz [Hol06].

Dans la dernière partie de mon manuscrit, je me suis focalisé sur l'étude des propriétés intrabandes des boîtes quantiques GaN/AlN. Dans le chapitre 5, j'ai mis en évidence l'émission intrabande des électrons entre les sous-niveaux ($p_z \rightarrow s$) dans les boîtes quantiques GaN/AlN. L'émission est observée à $\lambda \sim 1,48 \mu\text{m}$ de longueur d'onde sous un pompage optique à $\lambda = 1,34 \mu\text{m}$. Le processus est assisté par la diffusion Raman résonante de phonons $A_1(LO)$ du GaN. La largeur de raie de l'émission ($< 4 \text{ meV}$) nous permet d'estimer le temps de cohérence des électrons $T_2 > 320 \text{ fs}$.

Dans le sixième et dernier chapitre, j'ai mesuré le temps de relaxation des porteurs entre les sous-niveaux p_z et s des boîtes quantiques GaN/AlN à $\lambda = 1,55 \mu\text{m}$. Le retour à l'équilibre de l'absorption intrabande s'est avéré être aussi court que dans les puits quantiques GaN/AlN, c'est-à-dire $\sim 163 \text{ fs}$. Ce temps très court peut s'expliquer par la multiplication des chemins de relaxation via les différents sous-niveaux dans les boîtes quantiques. Grâce à la relation $T_2 = 2 \times T_1$, nous pouvons estimer le temps de cohérence T_2 des électrons à $\sim 326 \text{ fs}$. Cette dernière valeur est en accord avec la largeur de raie extrapolée de la mesure d'émission intrabande assistée par processus Raman. Finalement, j'ai déterminé expérimentalement l'intensité de saturation I_s de la transition intrabande $s \rightarrow p_z$ des boîtes quantiques GaN/AlN. L'intensité de saturation I_s extraite se trouve être $\sim 137 \text{ MWatt/cm}^2$. Cette valeur est inférieure à celles mesurées dans la littérature [Iiz02], [Rap03] dans les puits quantiques GaN/AlN. Ces résultats ouvrent des perspectives intéressantes pour la réalisation d'absorbants saturables ultra-rapides à boîtes quantiques GaN/AlN.

Annexe 1

Traitement semi-classique non perturbatif de m -ondes, en interaction avec n -niveaux

Dans cette partie, j'expose les grandes lignes de l'analyse semi-classique via le formalisme de la matrice densité d'un système de m ondes en interaction avec n niveaux non dégénérés. Ce formalisme très puissant, basé sur les équations de la matrice densité, est identique à celui proposé par De Temple *et al.* [\[Tem81\]](#), et adapté au cas des structures à puits quantiques. Le lecteur pourra trouver plus de détails dans les références suivantes : [\[Tem81\]](#), [\[Gur83\]](#), [\[Jul85\]](#), [\[Ros91\]](#), [\[Bou92\]](#).

Equation de Bloch optique

Dans un système à n niveaux, les équations de la matrice densité font intervenir n^2 éléments de matrice dont n éléments diagonaux. Les éléments diagonaux correspondent à la population de chaque niveau. L'évolution de la matrice densité ρ_{ij} est gouvernée par l'équation dynamique :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H, \rho] - \left\{ \frac{d\rho}{dt} \right\}_{relaxation} \quad (1)$$

où H désigne l'Hamiltonien de l'interaction dipolaire électrique et où le dernier terme a été inclus pour tenir compte de manière phénoménologique de la relaxation du système. En développant l'équation matricielle ρ_{ij} , on obtient les équations dites de Bloch optiques dans un régime quasi-stationnaire :

$$\frac{\partial \rho_{ii}}{\partial t} = -\Gamma_{ii}(\rho_{ii} - \rho_{ii}^{eq}) + \sum_k \frac{1}{i\hbar} (\rho_{ik} \vec{\mu}_{ki} \cdot \vec{E} - \rho_{ki} \vec{\mu}_{ik} \cdot \vec{E}) \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = -(i\Omega_{ij} + \Gamma_{ij})\rho_{ij} + \sum_k \frac{1}{i\hbar} (\rho_{ik} \vec{\mu}_{kj} \cdot \vec{E} - \rho_{kj} \vec{\mu}_{ik} \cdot \vec{E}) \quad (3)$$

où Γ_{ij} est la matrice de relaxation. En effet, les termes diagonaux $\Gamma_{ii}=1/\tau_{ii}$ représentent les durées de vie ou de relaxation de l'électron dans le niveau i (mécanisme inélastique). $\Gamma_{ij}=1/\tau_{ij}$ est le taux de relaxation pour les termes hors diagonale et représente le temps de déphasage ou perte de cohérence (mécanisme élastique) des électrons dans notre étude. Ce temps est corrélé à la largeur de raie intersousbande par la relation $\Delta E_{ij}=2\hbar\Gamma_{ij}$. $\Omega_{ij}=(E_i-E_j)/\hbar$ désigne l'écart de fréquences entre les niveaux d'énergie E_i et E_j . Enfin, ρ_{ii}^{eq} désigne les populations à l'équilibre thermodynamique en l'absence de radiation.

Hypothèses et approximations :

Les solutions générales des équations de Bloch optiques ne sont pas connues. Il est cependant possible de les résoudre sous réserve d'effectuer certaines hypothèses et approximations.

- i)* La première de ces approximations consiste à limiter ce traitement aux interactions en proche résonance, ce qui revient à effectuer l'approximation dite « des ondes tournantes ». Cette hypothèse conduit à négliger les séquences alternées d'émission/absorption faisant intervenir des niveaux « virtuels » tels que les effets Raman Stokes et anti-Stokes ou la génération de second harmonique dans un système à deux niveaux. La validité de l'approximation des ondes tournantes a été intensivement étudiée [Blo40] et il est bien connu qu'elle tombe en défaut lorsque l'intensité des champs est très grande. Plus précisément, la contribution des processus non résonants reste négligeable tant que la condition suivante est respectée :

$$\Lambda_{ij} = \frac{\vec{\mu}_{ij} \cdot \vec{E}_i}{2\hbar} \ll \Gamma_{ij} = \frac{1}{\tau_{ij}}$$

où Λ_{ij} représente la fréquence de Rabi associée au champ, τ_{ij} est le temps de déphasage.

- ii)* Je suppose que les champs se propageant dans le milieu peuvent être assimilés à des ondes planes monochromatiques. Je ne tiendrai donc pas compte des profils des faisceaux ainsi que des effets de diffraction ou des effets d'auto (dé) focalisation.
- iii)* Enfin, je supposerai des durées d'interaction grandes devant le temps de réponse intrinsèque des électrons. Cette hypothèse est pleinement justifiée puisque la réponse électronique a été mesurée dans les puits quantiques GaN/AlN et est de l'ordre de 150 à 300 fs [Ham04], [Ham05], [Heb02], [Iiz00], [Wan05], [Wan06], tandis que la durée d'impulsion du laser utilisé dans mon expérience est 6 ns.

L'hypothèse *iii*) revient donc à limiter la recherche à des solutions quasi-stationnaires des équations de Bloch, c'est-à-dire que l'on se placera dans la limite où les populations évoluent très peu sur l'échelle de temps caractéristique de l'interaction :

$$\frac{\partial \rho_{ii}}{\partial t} \rightarrow 0$$

Dans la suite du calcul, on considérera l'interaction de deux ondes avec trois niveaux.

Conformément à l'hypothèse des ondes planes *ii*), le champ source sera pris sous la forme :

$$\vec{E} = E_p \cos(\omega_p t - k_p x) \vec{z} + E_h \cos(\omega_h t - k_h x + \theta_h) \vec{z} \quad (4)$$

L'indice p se réfère au champ pompe en proche résonance avec les transitions intersousbandes 1-2 et 2-3, et l'indice h au champ harmonique en proche résonance avec la transition 1-3. θ_h désigne la phase de l'onde harmonique (la phase du champ pompe est prise nulle). k_p et k_h sont les composantes du vecteur d'onde suivant l'axe x de propagation et \vec{z} désigne le vecteur unitaire de polarisation.

A l'aide de l'approximation des ondes tournantes, les composantes ρ_{ij} peuvent être décomposées en termes de Fourier prédominants de la manière suivante :

$$\rho_{12} = \tilde{\rho}_{12}^a \exp[i(\omega_p t - k_p x)] + \tilde{\rho}_{12}^b \exp[i((\omega_p - \omega_h)t - (k_h - k_p)x)] \quad (5)$$

$$\rho_{23} = \tilde{\rho}_{23}^a \exp[i(\omega_p t - k_p x)] + \tilde{\rho}_{23}^b \exp[i((\omega_p - \omega_h)t - (k_h - k_p)x)] \quad (6)$$

$$\rho_{13} = \tilde{\rho}_{13}^a \exp[i(2\omega_p t - 2k_p x)] + \tilde{\rho}_{13}^b \exp[i(\omega_h t - k_h x)] \quad (7)$$

En remplaçant les composantes par leur expression (5, 6 et 7) dans l'équation (3), en multipliant par les termes conjugués et en négligeant les termes oscillant rapidement, on aboutit à un système de douze équations dont les inconnues sont les composantes de Fourier $\tilde{\rho}_{ij}^{a,b}$. Voici les fréquences de Rabi complexes :

$$\Lambda_{12} = \frac{\vec{\mu}_{12} \cdot \vec{E}_p}{2\hbar} ; \Lambda_{23} = \frac{\vec{\mu}_{23} \cdot \vec{E}_p}{2\hbar} ; \Lambda_{13} = \frac{\vec{\mu}_{13} \cdot \vec{E}_h}{2\hbar} e^{i\theta_h}$$

ainsi que les désaccords de fréquence complexes :

$$L_{12}^a = \Omega_{12} + \omega_p - i\Gamma_{12} ; L_{12}^b = \Omega_{12} + \omega_h - \omega_p - i\Gamma_{12}$$

$$L_{23}^a = \Omega_{23} + \omega_p - i\Gamma_{23} ; L_{23}^b = \Omega_{23} + \omega_h - \omega_p - i\Gamma_{23}$$

$$L_{13}^b = \Omega_{13} + \omega_h - i\Gamma_{13} ; L_{13}^a = \Omega_{13} + 2\omega_p - i\Gamma_{13}$$

On réduit le système de douze à six équations linéaires (les six autres sont les expressions conjuguées) :

$$\begin{aligned}
 L_{12}^a \tilde{\rho}_{12}^a &= \tilde{\rho}_{32}^b \Lambda_{13} - \tilde{\rho}_{13}^a \Lambda_{23}^* - (\rho_{11} - \rho_{22}) \Lambda_{12} \\
 L_{12}^b \tilde{\rho}_{12}^b &= \tilde{\rho}_{32}^a \Lambda_{13} - \tilde{\rho}_{13}^b \Lambda_{23}^* \\
 L_{23}^a \tilde{\rho}_{23}^a &= \tilde{\rho}_{13}^a \Lambda_{12}^* - \tilde{\rho}_{21}^b \Lambda_{13} - (\rho_{22} - \rho_{33}) \Lambda_{23} \\
 L_{23}^b \tilde{\rho}_{23}^b &= \tilde{\rho}_{13}^b \Lambda_{12}^* - \tilde{\rho}_{21}^a \Lambda_{13} \\
 L_{13}^a \tilde{\rho}_{13}^a &= \tilde{\rho}_{23}^a \Lambda_{12} - \tilde{\rho}_{12}^a \Lambda_{23} \\
 L_{13}^b \tilde{\rho}_{13}^b &= \tilde{\rho}_{23}^b \Lambda_{12} - \tilde{\rho}_{12}^b \Lambda_{23} - (\rho_{11} - \rho_{33}) \Lambda_{13} .
 \end{aligned}$$

Pour décrire les expressions conjuguées, on adopte la convention $L_{21}^a = -L_{12}^*$. En résolvant ces équations à l'aide par exemple de la technique des graphes des fluxes [Mal53], [Mal56], on montre que les termes de Fourier s'expriment comme une combinaison linéaire des différences des populations :

$$\tilde{\rho}_{ij}^l = A_{ij}^l (\rho_{11} - \rho_{22}) + B_{ij}^l (\rho_{22} - \rho_{33}) + C_{ij}^l (\rho_{11} - \rho_{33}) \quad l = a \text{ ou } b.$$

Les valeurs littérales des coefficients A_{ij}^l , B_{ij}^l et C_{ij}^l sont exprimées ci-dessous. Elles sont issues de l'article de De Temple *et al.* [Tem81].

where $l = a, b$. Define individual closed path gains as $A = |\Lambda_{23}|^2 / L_{13}^b L_{12}^b$, $B = |\Lambda_{13}|^2 / L_{12}^b L_{32}^a$, $C = |\Lambda_{12}|^2 / L_{32}^a L_{31}^a$, $D = |\Lambda_{23}|^2 / L_{31}^a L_{21}^a$, $E = |\Lambda_{13}|^2 / L_{21}^a L_{23}^b$, and $F = |\Lambda_{12}|^2 / L_{23}^b L_{13}^b$, and a graph determinant as $\Delta = 1 - (A + B + C + D + E + F - 2BDF) + (AE + AD + AC + FD + FC + FB + EC + EB + DB) - (ECA + DBF)$.³³ With these, the coefficients are found to be given by

$$\begin{aligned}
 A_{13}^a &= \frac{\Lambda_{12} \Lambda_{23}}{L_{12}^a L_{13}^a \Delta^*} (1 - A - B - F)^* , \\
 B_{13}^a &= -\frac{\Lambda_{12} \Lambda_{23}}{L_{23}^a L_{13}^a \Delta^*} (1 - A - E - F)^* , \\
 C_{13}^a &= -\frac{\Lambda_{12} \Lambda_{23}}{L_{31}^a L_{13}^a \Delta^*} (E - B)^* , \\
 A_{13}^b &= -\frac{\Lambda_{13}}{L_{21}^a \Delta} [F(1 - C - B) - AC] ,
 \end{aligned}$$

$$B_{13}^b = -\frac{\Lambda_{13}}{L_{32}^b \Delta} [A(1-E-D) - DF], \quad (\text{A6})$$

$$C_{13}^b = \frac{\Lambda_{13}}{L_{13}^b \Delta} (1-E-D-C-B+EC+DB+EB), \quad (\text{A7})$$

$$A_{12}^a = -\frac{\Lambda_{12}}{L_{12}^a \Delta^*} (1-C-B-A-F+CA+CF+BF)^*, \quad (\text{A8})$$

$$B_{12}^a = \frac{\Lambda_{12}}{L_{23}^a \Delta^*} [D(1-F-A) - AE]^*, \quad (\text{A9})$$

$$C_{12}^a = \frac{\Lambda_{12}}{L_{31}^a \Delta^*} [E(1-B-C) - DB]^*, \quad (\text{A10})$$

$$A_{12}^b = \frac{\Lambda_{13} \Lambda_{23}^*}{L_{21}^a L_{12}^b \Delta} (F-C), \quad (\text{A11})$$

$$B_{12}^b = \frac{\Lambda_{13} \Lambda_{23}^*}{L_{32}^a L_{12}^b \Delta} (1-D-E-F), \quad (\text{A12})$$

$$C_{12}^b = -\frac{\Lambda_{13} \Lambda_{23}^*}{L_{13}^b L_{12}^a \Delta} (1-F-D-C), \quad (\text{A13})$$

$$A_{23}^a = \frac{\Lambda_{23}}{L_{12}^a \Delta^*} [C(1-F-A) - FB]^*, \quad (\text{A14})$$

$$B_{23}^a = -\frac{\Lambda_{23}}{L_{23}^a \Delta^*} (1-A-F-E-D+AE+AD+DF)^* \quad (\text{A15})$$

$$C_{23}^a = \frac{\Lambda_{23}}{L_{31}^a \Delta^*} [B(1-E-D) - EC]^*, \quad (\text{A16})$$

$$A_{23}^b = -\frac{\Lambda_{13} \Lambda_{12}^*}{L_{21}^a L_{23}^b \Delta} (1-A-B-C), \quad (\text{A17})$$

$$B_{23}^b = -\frac{\Lambda_{13} \Lambda_{12}^*}{L_{32}^a L_{23}^b \Delta} (A-D), \quad (\text{A18})$$

$$C_{23}^b = \frac{\Lambda_{13} \Lambda_{12}^*}{L_{13}^b L_{23}^a \Delta} (1-D-C-B). \quad (\text{A19})$$

These coefficients are valid for arbitrary field intensity, phase angle θ_1 , and detunings to within the validity of the rotating-wave approximation.

L'étape suivante du calcul consiste à déterminer les valeurs des populations des différents niveaux. L'équation (2) s'écrit sous la forme :

$$(\rho_{11} - \rho_{11}^{eq})\Gamma_{11} = \frac{2}{\hbar} \Im m(\rho_{12} \vec{\mu}_{21} \cdot \vec{E} + \rho_{13} \vec{\mu}_{31} \cdot \vec{E}) \quad (8)$$

$$(\rho_{22} - \rho_{22}^{eq})\Gamma_{22} = \frac{2}{\hbar} \Im m(\rho_{23} \vec{\mu}_{32} \cdot \vec{E} - \rho_{12} \vec{\mu}_{21} \cdot \vec{E}) \quad (9)$$

$$(\rho_{33} - \rho_{33}^{eq})\Gamma_{33} = -\frac{2}{\hbar} \Im m(\rho_{13} \vec{\mu}_{31} \cdot \vec{E} + \rho_{23} \vec{\mu}_{32} \cdot \vec{E}) \quad (10)$$

Par la suite, on admettra que $\Gamma_{11} = \Gamma_{22} = \Gamma_{33} = 1/\tau_l$.

En utilisant l'expression des cohérences (5, 6 et 7) et en moyennant dans le temps, on peut remplacer :

$$\frac{\rho_{12} \vec{\mu}_{21} \cdot \vec{E}}{\hbar} \rightarrow \tilde{\rho}_{12}^a \Lambda_{12}^* + \tilde{\rho}_{12}^b \Lambda_{12}^* F$$

$$\frac{\rho_{23} \vec{\mu}_{32} \cdot \vec{E}}{\hbar} \rightarrow \tilde{\rho}_{23}^a \Lambda_{32}^* + \tilde{\rho}_{23}^b \Lambda_{32}^* F$$

$$\frac{\rho_{13} \vec{\mu}_{31} \cdot \vec{E}}{\hbar} \rightarrow \tilde{\rho}_{13}^a \Lambda_{13}^* + \tilde{\rho}_{13}^b \Lambda_{13}^* F$$

Le facteur $F = \exp\{i[(\omega_3 - \omega_1 - \omega_2)t - (k_h - 2k_p)x]\}$ correspond au désaccord de phase entre les ondes pompe et harmonique et traduit la conservation de l'énergie ainsi que du vecteur d'onde au cours de l'interaction. Par la résolution des équations (8, 9 et 10), on détermine alors les valeurs des populations ainsi que les composantes de Fourier des termes non diagonaux $\tilde{\rho}_{ij}^{a,b}$.

La polarisation macroscopique du milieu est réelle et est donnée par :

$$\vec{P} = N.Tr(\rho\vec{\mu}) = 2N.\Re(\rho_{12}\mu_{21} + \rho_{23}\mu_{32} + \rho_{13}\mu_{31})\vec{z} \quad (11)$$

où N représente le nombre de porteurs dans le milieu en cm^{-3} . La résolution de ces équations permet donc de traduire les effets de gain paramétrique, d'absorption et de dispersion.

Susceptibilité non-linéaire

La susceptibilité non linéaire d'ordre deux associée à la génération de second harmonique s'écrit :

$$\vec{P}_{NL}^{(2)}(2\omega) = \varepsilon_0 \chi_{2\omega}^{(2)} \vec{E}(\omega) \vec{E}(\omega) = N\mu_{31} \tilde{\rho}_{13}^a.$$

Il vient :

$$|\chi_{2\omega}^{(2)}| = 4 \frac{N\mu_{31}}{\varepsilon_0 E_p^2} |\tilde{\rho}_{13}^a| \quad (12)$$

Si on suppose que seul le premier niveau est peuplé et que l'interaction s'effectue en champ faible, on peut alors remplacer les termes de population qui interviennent dans les cohérences par leur valeur à l'équilibre sans pompage : $N\rho_{11} = n_{3D}$, et $\rho_{22} = \rho_{33} = 0$.

Pour des intensités de pompage faible, le terme $\tilde{\rho}_{13}^a$ qui traduit le gain paramétrique s'écrit :

$$\tilde{\rho}_{13}^a = \frac{\Lambda_{12} \Lambda_{23}}{L_{13}^a} \frac{\rho_{11}}{L_{12}^a}$$

En injectant cette valeur dans l'équation (12), on obtient donc la valeur de la susceptibilité non-linéaire d'ordre deux en faible signal :

$$\chi_{zzz}^{(2\omega)} = \frac{e^3 n_{3D}}{\varepsilon_0 \hbar^2} \frac{z_{12} z_{23} z_{31}}{(\omega - \Omega_{12} - i\Gamma_{12})(2\omega - \Omega_{31} - i\Gamma_{31})}$$

En utilisant les valeurs des longueurs des dipôles calculées ($z_{12}=0,495$ nm, $z_{13}=0,011$ nm et $z_{23}=0,673$ nm), les largeurs homogènes des transitions ($\Delta E_{12}=42$ meV) et le dopage volumique ($n_{3D}=3,8\times 10^{18}$ cm⁻³), on obtient une susceptibilité non-linéaire d'ordre deux à la résonance :

$$\chi_{zzz}^{(2\omega)}=135 \text{ pm/V}$$

Annexe 2

La Diffusion Raman non résonante

Le processus de diffusion Raman résulte généralement (mais pas toujours) de l'interaction de la lumière avec les modes de vibrations (aux fréquences Ω_i) atomiques ou moléculaires constituant le milieu diffuseur. Il se manifeste sur le spectre optique sous la forme de Lorentziennes, centrées en $\pm\Omega_i$ et d'amplitudes proportionnelles à la différence de population entre les niveaux de vibration impliqués. Il fournit donc des informations sur la position et la population des niveaux quantiques du système diffuseur.

La diffusion Raman est un processus non linéaire d'ordre 3 (χ^3). La diffusion inélastique de la lumière a été prédite pour la première fois en 1923 par Smekal [Sme23] à partir d'arguments sur la conservation de l'énergie. C'est en 1928 que Raman et Krishnan [Ram28] observent en Inde pour la première fois ce phénomène. Puisque la source de pompage était bien trop faible (lumière du soleil), ils n'observent que la diffusion Raman spontanée. Le phénomène fut découvert presque simultanément en URSS par Landsberg et Mandel'stamm [Lan28].

Le principe du processus Raman spontané est schématisé sur la figure suivante (A2) :

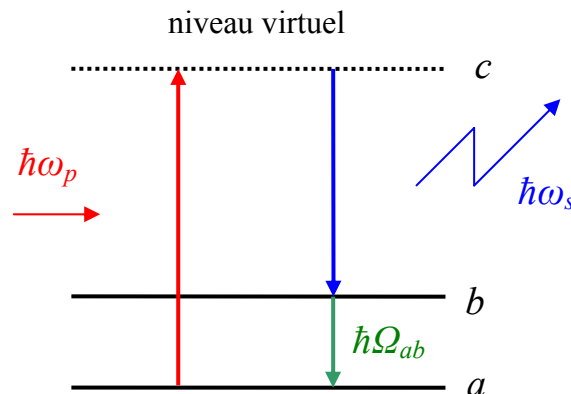


Fig. A2 : Schéma de principe de la diffusion Raman.

Un photon incident ω_p est diffusé en un photon ω_s , la différence d'énergie $\hbar(\omega_p - \omega_s) = \hbar\Omega_{ab}$ étant absorbée par le centre diffuseur du matériau. La fréquence Ω_{ab} correspond à la fréquence de vibration des molécules ou des modes de phonon dans un solide cristallin. La fréquence ω_s est appelée fréquence Stokes. Parallèlement, il existe le deuxième processus moins efficace où $\hbar(\omega_p + \Omega_{ab}) = \hbar\omega_{As}$, avec ω_{As} appelée fréquence anti-Stokes.

L'efficacité du processus de diffusion Raman spontanée est caractérisée par la section efficace différentielle de diffusion d'un photon de fréquence ω_p et de polarisation \mathbf{e}_p en un photon de fréquence ω_s et de polarisation \mathbf{e}_s . Cette section efficace est donnée par la formule de Kramers-Heisenberg [Kra25] :

$$\frac{d\sigma_{Spont}^{Raman}}{d\Omega} = \frac{\omega_p \omega_s^3 n_s^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_c \frac{\langle b | \vec{d} \cdot \vec{e}_s | c \rangle \langle c | \vec{d} \cdot \vec{e}_p | a \rangle}{\omega_{ca} - \omega_p} + \frac{\langle b | \vec{d} \cdot \vec{e}_p | c \rangle \langle c | \vec{d} \cdot \vec{e}_s | a \rangle}{\omega_{cb} + \omega_p} \right|^2$$

où Ω représente l'angle solide de diffusion, n_s est l'indice optique à la fréquence Stokes, et \mathbf{d} est l'opérateur moment dipolaire électrique.

L'amplitude de diffusion Raman est proportionnelle au module carré du recouvrement des fonctions d'onde mises en jeu dans le processus. Le processus fait appel à un niveau quantique virtuel (niveau c sur le schéma A2). Ainsi, lorsque les fréquences mises en jeu dans le processus sont proches d'une résonance intrinsèque du matériau, l'amplitude de diffusion Raman peut très fortement augmenter. Dans ce cas, la largeur de raie du pic d'émission Raman est directement reliée à celle de la résonance du matériau [Boyd92], [Shen84].

Annexe 3

Modèle simple de la saturation de l'absorption intrabande

Dans l'hypothèse que seuls les deux premiers niveaux d'énergie confinés suivant la direction de croissance z , participent à l'absorption intrabande (ce qui est très discutable), nous pouvons déduire le coefficient d'absorption intrabande quelle que soit la puissance de l'onde excitatrice à partir des équations de la matrice densité. Ce modèle simple réunit les mêmes hypothèses et démarches que celles discutées et suivies dans l'annexe du chapitre II.

A partir des équations de Bloch optique (1, 2),

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H, \rho] - \left\{ \frac{d\rho}{dt} \right\}_{relaxation}$$

$$\frac{\partial \rho_{ii}}{\partial t} = -\Gamma_{ii}(\rho_{ii} - \rho_{ii}^{eq}) + \sum_k \frac{1}{i\hbar} (\rho_{ik} \vec{\mu}_{ki} \cdot \vec{E} - \rho_{ki} \vec{\mu}_{ik} \cdot \vec{E}) \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = -(i\Omega_{ij} + \Gamma_{ij})\rho_{ij} + \sum_k \frac{1}{i\hbar} (\rho_{ik} \vec{\mu}_{kj} \cdot \vec{E} - \rho_{kj} \vec{\mu}_{ik} \cdot \vec{E}) \quad (2)$$

Dans un régime stationnaire, les éléments de la matrice densité vérifient les relations suivantes :

$$\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = -\Gamma_{11}(\rho_{11} - \rho_{11}^{eq}) + \frac{1}{i\hbar} (\rho_{12} \vec{\mu}_{21} \cdot \vec{E} - \rho_{21} \vec{\mu}_{12} \cdot \vec{E}) = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = -\Gamma_{22}(\rho_{22} - \rho_{22}^{eq}) + \frac{1}{i\hbar} (\rho_{21} \vec{\mu}_{12} \cdot \vec{E} - \rho_{12} \vec{\mu}_{21} \cdot \vec{E}) = 0 \quad (4)$$

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} = -(i\Omega_{12} + \Gamma_{12})\rho_{12} + \frac{1}{i\hbar} (\rho_{11} - \rho_{22}) \vec{\mu}_{12} \cdot \vec{E} = 0 \quad (5)$$

$$\rho_{12} = (\rho_{21})^* \quad (6)$$

On suppose que $\Gamma_{11}=\Gamma_{22}=1/T_1$ et $\Gamma_{12}=\Gamma_{21}=1/T_2$. T_1 est le temps de vie du niveau intrabande et T_2 est le temps de cohérence. Le champ électrique de la radiation incidente est pris sous la forme :

$$\vec{E} = E_p \cos(\omega t - kx) \vec{z} = \frac{E_p}{2} (\exp i(\omega t - kx) + c.c.) \vec{z} \quad (7)$$

Les éléments ρ_{ij} peuvent s'écrire alors :

$$\rho_{12} = \tilde{\rho}_{12} \exp i(\omega t - kx) \quad \text{et} \quad \rho_{21} = \tilde{\rho}_{21} \exp -i(\omega t - kx) \quad (8)$$

$$\tilde{\rho}_{21} = (\tilde{\rho}_{12})^*$$

En réunissant les systèmes (8) et (5), $\tilde{\rho}_{12}$ s'écrit donc :

$$\tilde{\rho}_{12} = \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) \Lambda_{12}}{L_{12}} \quad (9)$$

Λ_{12} et L_{12} sont respectivement la fréquence de Rabi et le désaccord de fréquence donnés par les équations suivantes :

$$\Lambda_{12} = \frac{\vec{\mu}_{12} \cdot \vec{E}_p}{2\hbar} \quad \text{et} \quad L_{12} = \Omega_{12} + \omega - i\Gamma_{12}$$

Ω_{12} est la fréquence de la transition 1 \rightarrow 2 définie comme : $\hbar\Omega_{12} = E_1 - E_2$

Après résolution des équations (3), (4) et (9), on obtient :

$$\rho_{11} - \rho_{22} = \frac{\rho_{11}^{eq} - \rho_{22}^{eq}}{1 + \frac{4\Lambda_{12}^2 T_1 / T_2}{(\Omega_{21} - \omega)^2 + (1/T_2)^2}} \quad (10)$$

Si α_0 est le coefficient d'absorption sous une faible intensité de champ et σ_{12} la section efficace d'absorption de la transition, il vient :

$$\alpha_0 = \sigma_{12} (\rho_{11}^{eq} - \rho_{22}^{eq})$$

Sous un fort champ électrique, le coefficient d'absorption $\alpha = \sigma_{12} (\rho_{11} - \rho_{22})$, on a donc :

$$\alpha_{IntraBande} = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{4\Lambda_{12}^2 T_1 / T_2}{(\Omega_{21} - \omega)^2 + (1/T_2)^2}} \quad (11)$$

A la résonance intrabande $\omega = \Omega_{12}$:

$$\alpha_{IntraBande} = \frac{\alpha_0}{1 + 4\Lambda_{12}^2 T_1 T_2}$$

Si l'intensité de la radiation incidente dans le matériau est $I_0 = n c \epsilon_0 E_p^2 / 2$, où n est l'indice optique, nous obtenons l'intensité de saturation I_s :

$$I_s = \frac{nc\varepsilon_0\hbar^2}{2\mu_{12}^2T_1T_2}$$

avec I_s définie comme :

$$\alpha_{\text{Intra-Bande}}(I_0) = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I_0}{I_s}}$$

Lorsque l'intensité de la pompe atteint l'intensité de saturation, le coefficient d'absorption est réduit de moitié. Si l'on connaît l'intensité de saturation et la valeur du dipôle, on peut estimer le produit T_1T_2 .

Références

A

1. [Abs86]
Inelastic light scattering by electronic excitations in semiconductor heterostructures
G. Abstreiter, R. Merlin, A. Pinczuk,
IEEE, J. Quan. Elec., **22**, 1771 (1986)
2. [Ade01]
Molecular-Beam Epitaxy of GaN: A Phase Diagram
C. Adelmann, J. Brault, E. Martinez-Guerrero, G. Mula, H. Mariette, Le Si Dang, et B. Daudin,
Phys. Stat. Sol (a) **188**, 575 (2001)
3. [Ade02]
GaN islanding by spontaneous rearrangement of a strained two-dimensional layer on (0001) AlN
C. Adelmann, N. Gogneau, E. Sarigiannidou, J.-L. Rouvière, B. Daudin
Appl. Phys. Lett., **81**, 3064 (2002)
4. [Aka91]
Photoluminescence of Mg-doped p-type GaN and electroluminescence of GaN p-n junction LED
I. Akasaki, H. Amano, M. Kito, et K. Hiramatsu,
Journal of Luminescence, **48**, 666 (1991)
5. [Aki01]
Short-wavelength intersubband transitions down to 1.6 μm in ZnSe/BeTe type-II superlattices
R. Akimoto, Y. Kinpara, K. Akita, F. Sasaki, S. Kobayashi,
Appl. Phys. Lett. **78**, 580 (2001)
6. [Aki02]
Short-wavelength ($\lambda < 2 \mu\text{m}$) intersubband absorption dynamics in ZnSe/BeTe quantum wells
R. Akimoto, K. Akita, F. Sasaki, and S. Kobayashi
Appl. Phys. Lett. **80**, 2433 (2002)
7. [Aki02b]
Sub-picosecond electron relaxation of near-infrared intersubband transitions in n-doped (CdS/ZnSe)/BeTe quantum wells
R. Akimoto, K. Akita, F. Sasaki, and T. Hasama
Appl. Phys. Lett. **81**, 2998 (2002)
8. [Aki05]
Subpicosecond saturation of intersubband absorption in (CdS/ZnSe)/BeTe quantum-well waveguides at telecommunication wavelength
R. Akimoto, B. S. Li, K. Akita, and T. Hasama
Appl. Phys. Lett. **87**, 181104 (2005)
9. [Aki07]
All-optical demultiplexing of 160–10 Gbit/s signals with Mach-Zehnder interferometric switch utilizing intersubband transition in InGaAs/AlAs/AlAsSb quantum well
R. Akimoto, T. Simoyama, H. Tsuchida, S. Namiki, C. G. Lim, M. Nagase, T. Mozume, T. Hasama, and H. Ishikawa
Appl. Phys. Lett. **91**, 221115 (2007)
10. [Akita06]
Intersubband all-optical switching in submicron high-mesa SCH waveguide structure with wide-gap II-VI-based quantum wells
K. Akita, R. Akimoto, T. Hasama, H. Ishikawa, and Y. Takanashi,
Electron. Lett. **42**, 1352 (2006)
11. [Akiy02]
1.55- μm picosecond all-optical switching by using intersubband absorption in InGaAs-AlAs-AlAsSb coupled quantum wells
T. Akiyama, N. Georgiev, T. Mozume, H. Yoshida, A.V. Gopal, O. Wada
IEEE Photonics Technol. Lett. **14**, 495 (2002)
12. [All88]
Inter-sub-band absorption in GaAs/AlGaAs quantum wells between 4.2 K and room temperature
P von Allmen, M Berz, G Petrocelli, F -K Reinhart and G Harbeke
Semicond. Sci. Technol., **3**, 1211 (1988)
13. [Ama89]

P-Type Conduction in Mg-Doped GaN Treated with Low-Energy Electron Beam Irradiation (LEEBI)

H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, et I. Akasaki,
Jpn. J. Appl. Phys. **28**, L2112 (1989).

14. [Amb98]

Growth and applications of Group III-nitrides

O. Ambacher,
J. of Phys. D : Applied Physics **31**, 2653 (1998).

15. [Ana05]

Electrical control of polariton coupling in intersubband microcavities

Aji A. Anappara, Alessandro Tredicucci, Giorgio Biasiol, and Lucia Sorba
Appl. Phys. Lett. **87**, 051105 (2005)

16. [Ana06]

Tunnel-assisted manipulation of intersubband polaritons in asymmetric coupled quantum wells

Aji A. Anappara, Alessandro Tredicucci, Fabio Beltram, Giorgio Biasiol, and Lucia Sorba
Appl. Phys. Lett. **89**, 171109 (2006)

17. [Ana07]

Cavity polaritons from excited-subband transitions

A. A. Anappara, A. Tredicucci, F. Beltram, G. Biasiol, L. Sorba, S. De Liberato, C. Ciuti
Appl. Phys. Lett. **91**, 231118 (2007)

18. [And00]

Theory of the electronic structure of GaN/AlN hexagonal quantum dots

A. D. Andreev, E. P. O'Reilly
Phys. Rev. B **62**, 15851 (2000)

19. [And01]

Optical transitions and radiative lifetime in GaN/AlN self-organized quantum dots

Aleksey D. Andreev, Eoin P. O'Reilly
Appl. Phys. Lett., **79**, 521 (2001)

20. [And03]

A. D. Andreev
ITQW proceedings, (2003)

21. [Ang99]

Ultrafast second-harmonic generation spectroscopy of GaN thin films on sapphire

W. E. Angerer, N. Yang, A. G. Yodh, M. A. Khan, C. J. Sun
Phys. Rev. B., **59**, 2932, (1999)

22. [Ara82]

Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current

Y. Arakawa and H. Sakaki
Appl. Phys. Lett. **40**, 939 (1982)

23. [Arg69]

First-Order Raman Effect in Wurtzite-Type Crystals

C. A. Arguello, D. L. Rouseau, S. P. S. Porto
Phys. Rev., **181**, 1351 (1969)

24. [Ata94]

Second-order nonlinear optical susceptibility of asymmetric quantum wells

R. Atanasov, F. Bassani, V. M. Agronovich
Phys. Rev. B., **50**, 7809, (1994)

25. [Azu95]

Polarized Raman spectra in GaN

T Azuhata, T Sota, K Suzuki and S Nakamura
J. Phys.: Condens. Matter **7**, L129 (1995)

B

26. [Bal01]

Enhancement of sum frequency generation near the photonic band gap edge under the quasi phase matching conditions

A. V. Balakin, V. A. Bushuev, B. I. Mantsyzov, I. A. Ozheredov, E. V. Petrov, A. P. Shkurinov, P. Masselin, G. Mouret
Phys. Rev. E., **63**, 1, (2001)

27. [Bale90]

J. W. Bales, K. A. McIntosh, T. C. L. G. Sollner, W. D. Goodhue, E. R. Brown

Proc. SPIE 1283, 74 (1990)

28. [Bar05]

Short wavelength intersubband emission from InAs/AlSb quantum cascade structures

D. Barate, R. Teissier, Y. Wang, and A. N. Baranov

Appl. Phys. Lett., **87**, 051103 (2005)

29. [Bar06]

Photoluminescence of single GaN/AlN hexagonal quantum dots on Si(111): Spectral diffusion effects

R. Bardoux, T. Guillet, P. Lefebvre, T. Taliercio, T. Bretagnon, S. Rousset, B. Gil, and F. Semond

Phys. Rev. B **74**, 195319 (2006)

30. [Bar73]

Infrared Lattice Vibrations and Free-Electron Dispersion in GaN

A. S. Barker, M. Ilegems

Phys. Rev. B **7**, 743 (1973)

31. [Bast96]

Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures

G. Bastard

(Mes Editions de Physique, Les Ulis, 1996).

32. [Bau05a]

Tunneling effects and intersubband absorption in AlN/GaN superlattices

E. Baumann, F. R. Giorgetta, D. Hofstetter, H. Wu, W. J. Schaff, L. F. Eastman, and L. Kirste

Appl. Phys. Lett. **86**, 032110 (2005)

33. [Bau05b]

Intersubband photoconductivity at 1.6 μm using a strain-compensated AlN/GaN superlattice

E. Baumann, F. R. Giorgetta, D. Hofstetter, H. Lu, X. Chen, W. J. Schaff, L. F. Eastman, S. Golka, W. Schrenk, and G. Strasser

Appl. Phys. Lett. **87**, 191102 (2005)

34. [Bau06a]

Electrically adjustable intersubband absorption of a GaN/AlN superlattice grown on a transistorlike structure

E. Baumann, F. R. Giorgetta, D. Hofstetter, S. Leconte, F. Guillot, E. Bellet-Amalric, E. Monroy

Appl. Phys. Lett. **89**, 101121 (2006)

35. [Bau06b]

Near infrared absorption and room temperature photovoltaic response in AlN/GaN superlattices grown by metal-organic vapor-phase epitaxy

E. Baumann, F. R. Giorgetta, D. Hofstetter, S. Golka, W. Schrenk, G. Strasser, L. Kirste, S. Nicolay, E. Feltin, J. F. Carlin, and N. Grandjean

Appl. Phys. Lett. **89**, 041106 (2006)

36. [Bel03]

Comment on "AlN/GaN double-barrier resonant tunneling diodes grown by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy" [Appl. Phys. Lett. 81, 1729 (2002)]

A. E. Belyaev, C. T. Foxon, S. V. Novikov, O. Makarovskiy, L. Eaves, M. L. Kappers, C. J. Humphreys,

Appl. Phys. Lett. **83**, 3626 (2003)

37. [Ben91]

Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems

H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torrès, C. Weisbuch

Phys. Rev. B **44**, 10945 (1991)

38. [Ber92]

Triple quantum well electron transfer infrared modulator

V. Berger, E. Dupont, D. Delacourt, B. Vinter, N. Vodjdani, and M. Papuchon

Appl. Phys. Lett. **61**, 2072 (1992)

39. [Ber94]

Three-level laser based on intersubband transitions in asymmetric quantum wells: a theoretical study

Vincent Berger

Semicond. Sci. Technol. **9**, 1493 (1994)

40. [Ber96]

Room-temperature quantum well infrared modulator using a Schottky diode

V. Berger, N. Vodjdani, D. Delacourt, and J. P. Schnell

Appl. Phys. Lett. **68**, 1904 (1996)

41. [Ber97]

Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides

F. Bernardini, V. Fiorentini, et D. Vanderbilt, ,

Phys. Rev. B **56**, R10024 (1997)

42. [Ber98]

Macroscopic polarization and band offsets at nitride heterojunctions

- F. Bernardini, V. Fiorentini,
Phys. Rev. B, **57**, R9427 (1998)
43. [Blo40]
Magnetic Resonance for Nonrotating Fields
F. Bloch, A. Slegert
Phys. Rev., **57**, 522, (1940)
44. [Blo64a]
Coupling Between Vibrations and Light Waves in Raman Laser Media
N. Bloembergen and Y. R. Shen
Phys. Rev. Lett. **12**, 504 (1964)
45. [Blo64b]
Multimode Effects in Stimulated Raman Emission
N. Bloembergen and Y. R. Shen
Phys. Rev. Lett. **13**, 720 (1964)
46. [Boc90]
Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases
U. Bockelmann, G. Bastard
Phys. Rev. B **42**, 8947 (1990)
47. [Bor89]
Evaluation of the feasibility of a far-infrared laser based on intersubband transitions in GaAs quantum wells
Shmuel I. Borenstain and Joseph Katz
Appl. Phys. Lett. **55**, 654 (1989)
48. [Bou90]
Detailed analysis of second-harmonic generation near 10.6 μm in GaAs/AlGaAs asymmetric quantum wells
P. Boucaud, F. H. Julien, D. D. Yang, J.-M. Lourtioz, E. Rosencher, P. Bois, J. Nagle
Appl. Phys. Lett., **57**, 215, (1990)
49. [Bou92a]
Modulation bandwidth enhancement of all-optical modulators based on photo-induced intersubband absorption in GaAs/AlGaAs quantum wells by proton implantation
P. Boucaud, P. Vagos, F. H. Julien, J.-M. Lourtioz
Electron. Lett., **28**, 1373 (1992)
50. [Bou92b]
Génération de second-harmonique et absorption intrabande photo-induite dans les hétérostructures à puits quantiques
P. Boucaud
Thèse (1992)
51. [Boyd92]
Nonlinear optics
Robert W. Boyd
Academic Press, Inc., 1992
52. [Bro04]
GaN quantum dots density control by rf-plasma molecular beam epitaxy
J. Brown, F. Wu, P. M. Petroff, et J. S. Speck,
Appl. Phys. Lett. **84**, 690 (2004)
53. [Bru00]
Infrared second-order optical susceptibility in InAs/GaAs self-assembled quantum dots
T. Brunhes, P. Boucaud, S. Sauvage, A. Lemaître, J.-M. Gérard, F. Glotin, R. Prazeres, J.-M. Ortega
Phys. Rev. B., **61**, 5562, (2000)

C

54. [Cam96]
Interface roughness and alloy-disorder scattering contributions to intersubband transition linewidths
K. L. Campman, H. Schmidt, A. Imamoglu, and A. C. Gossard
Appl. Phys. Lett. **69**, 2554 (1996)
55. [Cap94]
Coupled Quantum Well Semiconductors with Giant Electric Field Tunable Nonlinear Optical properties in the Infrared
F. Capasso, C. Sirtori, A. Y. Cho
IEEE, J. Quant. Elec., **30**, 1313, (1994)

56. [Cha04]
Stranski-Krastanov growth mode during the molecular beam epitaxy of highly strained GaN
V. Chamard, T. Schülli, M. Sztucki, T. H. Metzger, E. Sarigiannidou, J.-L. Rouvière, M. Tolan, C. Adelmann, et B. Daudin
Phys. Rev. B **69**, 125327 (2004)
57. [Che95]
Calculated second-harmonic susceptibilities of BN, AlN, GaN
J. Chen, Z. H. Levine, J. W. Wilkins
Appl. Phys. Lett., **66**, 1129, (1995)
58. [Che97]
Nonlinear local-field corrections to the optical second-harmonic susceptibility of insulating crystals
J. Chen, L. Jonsson, J. W. Wilkins
Phys. Rev. B., **56**, 1787, (1997)
59. [Cho03]
Second-harmonic generation in periodically poled GaN
A. Chowdhury, H. M. Ng, M. Bhardwaj, N. G. Weimann
Appl. Phys. Lett., **83**, 1077, (2003)
60. [Chr94]
Optical and structural properties of III-V nitrides under pressure
N. E. Christensen, et I. Gorczyca,
Phys. Rev. B **50**, 4397 (1994)
61. [Chu96]
k·p method for strained wurtzite semiconductors
S. L. Chuang, C. S. Chang,
Phys. Rev. B **54**, 2491 (1996)
62. [Chui94]
Tunable mid-infrared generation by difference frequency mixing of diode laser wavelength in intersubband InGaAs/AlAs quantum wells
H. C. Chui, G. L. Woods, M. M. Fejer, E. L. Martinet, J. S. Harris
Appl. Phys. Lett., **66**, 265, (1994)
63. [Cip00]
Propagation of guided optical waves in thick GaN layers grown on (0001) sapphire
D. Ciplys, R. Gaska, M. S. Shur, R. Rimeika, J. W. Yang, M. Asif Khan,
Appl. Phys. Lett., **76**, 2232 (2000)
64. [Ciu05]
Quantum vacuum properties of the intersubband cavity polariton field
Cristiano Ciuti and Gérald Bastard, Iacopo Carusotto
Phys. Rev. B **72**, 115303 (2005)
65. [Ciu06]
Input-output theory of cavities in the ultrastrong coupling regime: The case of time-independent cavity parameters
Cristiano Ciuti¹ and Iacopo Carusotto
Phys. Rev. A **74**, 033811 (2006)
66. [Cohen-Tan95]
Mécanique Quantique
C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë
Herman édition 1995
67. [Col05]
Quantum cascade intersubband polariton light emitters
R. Colombelli, C. Ciuti, Y. Chassagneux, and C. Sirtori,
Semicond. Sci. Technol. **20**, 985 (2005).
68. [Con07]
Intersubband absorption with different sublevel couplings in [(CdS/ZnSe/BeTe)/(ZnSe/BeTe)] double quantum wells
G. W. Cong, R. Akimoto, K. Akita, T. Hasama, and H. Ishikawa
Appl. Phys. Lett. **90**, 181919 (2007)
69. [Con07b]
Low-saturation-energy-driven ultrafast alloptical switching operation in (CdS/ZnSe)/BeTe intersubband transition
G. W. Cong, R. Akimoto, K. Akita, T. Hasama, and H. Ishikawa
Opt. Express **15**, 12123 (2007).
70. [Cro06]
Raman study and theoretical calculations of strain in GaN quantum dot multilayers
A. Cros, N. Garro, J. M. Llorens, A. García-Cristóbal, A. Cantarero, N. Gogneau, E. Monroy, B. Daudin
Phys. Rev. B **73**, 115313 (2006)

71. [Cro07]
Raman scattering as a tool for the evaluation of strain in GaN/AlN quantum dots: The effect of capping
A. Cros, N. Garro, A. Cantarero, J. Coraux, H. Renevier, B. Daudin
Phys. Rev. B **76**, 165403 (2006)
72. [Cyw06]
Growth of thin AlInN/GaN quantum wells for applications to high-speed intersubband devices at telecommunication wavelengths
G. Cywiński, C. Skierbiszewski, A. Feduniewicz-Żmuda, M. Siekacz, L. Nevou, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, P. Prystawko, M. Kryško, S. Grzanka, I. Grzegory, A. Presz, J. Z. Domagała, J. Smalc, M. Albrecht, T. Remmele, S. Porowski,
J. Vac. Sci. Technol. B, **24**, 1505 (2006)
73. [Cyw06b]
Crack Free GaInN/AlInN Multiple Quantum Wells Grown on GaN with Strong Intersubband Absorption at 1.55 μm
G. Cywinski, C. Skierbiszewski, A. Feduniewicz-Zmuda, M. Siekacz, L. Nevou, L. Doyennette, F.H. Julien, P. Prystawko, M. Krysko, S. Grzanka, I. Grzegory and S. Porowski
Acta Physica Polonica A, **110**, 175 (2006)
- ## D
74. [Dami99]
From visible to white light emission by GaN quantum dots on Si(111) substrate
B. Damilano, N. Grandjean, F. Semond, J. Massies, M. Leroux
Appl. Phys. Lett. **75**, 962 (1999)
75. [Dar05]
Phonon mode behavior in strained wurtzite AlN/GaN superlattices
V. Darakchieva, E. Valcheva, P. P. Paskov, M. Schubert, T. Paskova, B. Monemar, H. Amano, I. Akasaki
Phys. Rev. B **71**, 115329 (2005)
76. [Dau97]
Stranski-Krastanov growth mode during the molecular beam epitaxy of highly strained GaN
B. Daudin, F. Widmann, G. Feuillet, Y. Samson, M. Arlery, et J. L. Rouvière
Phys. Rev. B **56**, R7069 (1997)
77. [Dav97]
Raman and photoluminescence studies of biaxial strain in GaN epitaxial layers grown on 6H-SiC
V. Yu. Davydov, N. S. Averkiev, I. N. Goncharuk, D. K. Nelson, I. P. Nikitina, A. S. Polkovnikov, A. N. Smirnov, M. A. Jacobson, O. K. Semchinova
J. Appl. Phys. **82**, 5097 (1997)
78. [Dav98]
Phonon dispersion and Raman scattering in hexagonal GaN and AlN
V. Yu. Davydov, Yu. E. Kitaev, I. N. Goncharuk, A.N. Smirnov, J. Graul, O. Semchinova, D. Uffmann, M. B. Smirnov, A. P. Mirgorodsky, R.A. Evarestov
Phys. Rev. B **58**, 12899 (1998)
79. [Dav02]
Band Gap of Hexagonal InN and InGaN Alloys
V.Yu. Davydov, A.A. Klochikhin, V.V. Emtsev, D.A. Kurdyukov, S.V. Ivanov, V.A. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, J. Aderhold, J. Graul, A.V. Mudryi, H. Harima, A. Hashimoto, A. Yamamoto, E.E. Haller
Phys. Stat. Sol. (b) **234**, 787 (2002)
80. [Deva90]
Tunnelling and Relaxation in Coupled Quantum Wells
B. Deveaud, F. Clerot, A. Chomette, A. Regreny, R. Ferreira, G. Bastard and B. Sermage
Europhys. Lett. **11**, 367 (1990)
81. [Dev07a]
Very short wavelength ($\lambda=3.1 - 3.3 \mu\text{m}$) quantum cascade lasers
J. Devenson, D. Barate, O. Cathabard, R. Teissier, and A.N. Baranov
Appl. Phys. Lett., **89**, 191115, (2007)
82. [Dev07b]
InAs/AlSb quantum cascade lasers emitting at 2.75–2.97 μm
J. Devenson, O. Cathabard, R. Teissier, and A. N. Baranov
Appl. Phys. Lett. **91**, 251102 (2007)
83. [Din71]
Absorption, Reflectance, and Luminescence of GaN Epitaxial Layers
R. Dingle, D. D. Sell, S. E. Stokowski, M. Ilegems,

Phys. Rev. B, **4**, 1211 (1971)

84. [Din03]

Microcavity Polariton Splitting of Intersubband Transitions

Dimitri Dini, Rüdiger Köhler, Alessandro Tredicucci, Giorgio Biasiol, and Lucia Sorba
Phys. Rev. Lett. **90**, 116401 (2003)

85. [Doy05]

GaN-based quantum dot infrared photodetector operating at 1.38 μm

L. Doyennette, L. Nevou, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. Guillot, E. Monroy, R. Colombelli, and F.H. Julien
Electron. Lett. **41**, 1077 (2005)

86. [Doy06]

Dispositifs unipolaires nitrides pour les télécommunications par fibre optique

L. Doyennette

Thèse de doctorat, Université Paris Sud (2006) n° d'ordre : 8612

87. [Dri07]

Intersubband absorption in AlN/GaN/AlGaIn coupled quantum wells

K. Driscoll, A. Bhattacharyya, T. D. Moustakas, Roberto Paiella, L. Zhou and D. J. Smith
Appl. Phys. Lett. **91**, 141104 (2007)

88. [Dub95a]

Electron relaxation time measurements in GaAs/AlGaAs quantum wells: Intersubband absorption saturation by a free-electron laser

J. Y. Duboz, E. Costard, E. Rosencher, P. Bois, J. Nagle, J. M. Berset, D. Jaroszynski, J. M. Ortega
J. Appl. Phys. **77**, 6492 (1995)

89. [Dub95b]

Electron capture time measurements in GaAs/AlGaAs quantum-well infrared photodetectors: Photoresponse saturation by a free-electron laser

J. Y. Duboz, E. Costard, J. Nagle, J. M. Berset, J. M. Ortega, J. M. Gérard
J. Appl. Phys. **78**, 1224 (1995)

90. [Dub97a]

Grating coupled infrared modulator at normal incidence based on intersubband transitions

J. Y. Duboz, V. Berger, N. Laurent, D. Adam, and J. Nagle
Appl. Phys. Lett. **70**, 1569 (1997)

91. [Dub97b]

Large infrared modulation depth obtained in the normal incidence reflection on a grating coupled with intersubband transitions

J. Y. Duboz, V. Berger, N. Laurent, D. Adam, and J. Nagle
Appl. Phys. Lett. **71**, 1697 (1997)

92. [Dub02]

GaN or the history of a scientific explosion driven by applications and markets, in Low-dimensional nitride semiconductors

J.-Y. Duboz, et J. C. Garcia, édité par B. Gil,
Oxford University Press (2002)

93. [Dum01]

Enhancement of second harmonic generation in a one dimensional semiconductor photonic band gap

Y. Dumeige, P. Vidakovic, S. Sauvage, I. Sagnes, J. A. Levenson, C. Sibilia, M. Centini, G. D'Aguanno, M. Scalora
Appl. Phys. Lett., **78**, 3021, (2001)

94. [Dup93a]

Phase and amplitude modulation based on intersubband transitions in electron transfer double quantum wells

E. Dupont, D. Delacourt, V. Berger, N. Vodjdani, and M. Papuchon
Appl. Phys. Lett. **62**, 1907 (1993)

95. [Dup93b]

Midinfrared amplitude and phase modulation by intersubband transitions in biased GaAs/GaAlAs double quantum wells

E. Dupont, D. Delacourt, and M. Papuchon
Appl. Phys. Lett. **63**, 2514 (1993)

96. [Dup03]

Vacuum-field Rabi splitting in quantum-well infrared photodetectors

E. Dupont, H. C. Liu, A. J. SpringThorpe, W. Lai, M. Extavour
Phys. Rev. B **68**, 245320 (2003)

97. [Dup06]

Terahertz Emission in Asymmetric Quantum Wells by Frequency Mixing of Midinfrared Waves

E. Dupont, Z. Wasilewski, H.C. Liu,
IEEE J. Quantum Electronics, **42**, 1157 (2006)

E

98. [Eli99]
Laser-induced damage threshold and surface processing of GaN at 400 nm wavelength
P. G. Eliseev, H. B. Sun, S. Juodkazis and T. Sugahara
Jpn J. Appl. Phys. **38**, L839 (1999)
99. [Esa70]
Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors
L. Esaki and R. Tsu
IBM J. Res. Dev., **14**, 61 (1970)

F

100. [Fai94]
Quantum cascade laser
J. Faist, F. Capasso, D. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu, A. Y. Cho
Science, **264**, 553 (1994)
101. [Fai94b]
Phonon limited intersubband lifetimes and linewidths in a two-dimensional electron gas
Jerome Faist, Carlo Sirtori, Federico Capasso, Loren Pfeiffer, and Ken W. West
Appl. Phys. Lett. **64**, 872 (1994)
102. [Fai98a]
Short wavelength ($\lambda \sim 3.4 \mu\text{m}$) quantum cascade laser based on strained compensated InGaAs/AlInAs
J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu, et A. Y. Cho,
Appl. Phys. Lett. **72**, 680 (1998)
103. [Fej89]
Observation of Extremely Large Quadratic Susceptibility at 9.6-10.8 μm in Electric-Field-Biased AlGaAs Quantum wells
M. M. Fejer, S. J. B. Yoo, R. L. Byer
Phys. Rev. Lett., **62**, 1041, (1989)
104. [Fink01]
Polarized front-illumination response in intraband quantum dot infrared photodetectors at 77 K
E. Finkman, S. Maimon, V. Immer, G. Bahir, S. E. Schacham, F. Fossard, F. H. Julien, J. Brault, M. Gendry
Phys. Rev. B **63**, 45323 (2001)
105. [Fio95a]
Electric field induced interband second harmonic generation in GaAs/AlGaAs quantum wells
A. Fiore, E. Rosencher, V. Berger, J. Nagle
Appl. Phys. Lett., **67**, 3765, (1995)
106. [Fio95b]
Second-order optical susceptibility of biased quantum wells in the interband regime
A. Fiore, E. Rosencher, B. Vinter, D. Weill, V. Berger
Phys. Rev. B., **51**, 13192, (1995)
107. [Fra49]
One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory
F. C. Frank, et J. H. van der Merwe,
Proceedings of the Royal Society of London, **198**, 205 (1949)
108. [Fra61]
Generation of optical harmonics
P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich
Phys. Rev. Lett., **7**, 118, (1961)

G

109. [Gal01]
Time-resolved spectroscopy of MBE-grown GaN/AlGaN hetero- and homo-epitaxial quantum wells
M. Gallart, A. Morel, T. Taliercio, P. Lefebvre, B. Gil, J. Allègre, H. Mathieu, N. Grandjean, J. Massies, I. Grzegory, S. Porowsky
Materials Science and Engineering, **B82**, 140 (2001)

110. [Gam96]
Homogeneous Linewidths in the Optical Spectrum of a Single Gallium Arsenide Quantum Dot
D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, D. Park
Science **273**, 87 (1996)
111. [Gar06]
Resonant Raman scattering in self-assembled GaN/AlN quantum dots
N. Garro, A. Cros, J. M. Llorens, A. García-Cristóbal, A. Cantarero, N. Gogneau, E. Sarigiannidou, E. Monroy, B. Daudin
Phys. Rev. B **74**, 75305 (2006)
112. [Gav00]
Linear and nonlinear optical properties of group-III nitrides
V. I. Gavrilenko, R. Q. Wu
Phys. Rev. B., **61**, 2632, (2000)
113. [Gav01]
Second harmonic generation of GaN(0001)
V. I. Gavrilenko, R. Q. Wu
Phys. Rev. B., **65**, 035405, (2001)
114. [Gen04]
Quantum cascade photodetector
L. Gendron, M. Carras, A. Huynh, V. Ortiz, C. Koeniguer and V. Berger
Appl. Phys. Lett. **85**, 2824 (2004)
115. [Gen05]
High resistance narrow band quantum cascade photodetectors
L. Gendron, C. Koeniguer, V. Berger, X. Marcadet
Appl. Phys. Lett. **86**, 121116 (2005)
116. [Gil96]
Oscillator strengths for optical band-to-band processes in GaN epilayers
B. Gil, F. Hamdani, et H. Morkoç,
Phys. Rev. B **54**, 7678 (1996)
117. [Gil98]
Group III nitride semiconductor compounds
Bernard Gil
Ed. Oxford Science Publication, (1998)
118. [Gil02]
Low-dimensional nitride semiconductors
Bernard Gil
Ed. Oxford Science Publication, (2002)
119. [Gio07a]
High frequency ($f=2.37$ GHz) room temperature operation of $1.55 \mu\text{m}$ AlN/GaN-based intersubband detector
F.R. Giorgetta, E. Baumann, F. Guillot, E. Monroy and D. Hofstetter
Electronics Letters, **43**, 185 (2007)
120. [Gio07]
 $16.5 \mu\text{m}$ quantum cascade detector using miniband transport
F. R. Giorgetta, E. Baumann, M. Graf, L. Ajili, N. Hoyler, M. Giovannini, J. Faist, D. Hofstetter, P. Krötz and G. Sonnabend
Appl. Phys. Lett. **90**, 231111 (2007)
121. [Gle99a]
Phonons in a strained hexagonal GaN-AlN superlattice
J. Gleize, F. Demangeot, J. Frandon, M. A. Renucci, F. Widmann, B. Daudin
Appl. Phys. Lett., **74**, 703 (1999)
122. [Gle99b]
Anisotropy effects on polar optical phonons in wurtzite GaN/AlN superlattices
J. Gleize, M. A. Renucci, J. Frandon, and F. Demangeot
Phys. Rev. B **60**, 15985 (1999)
123. [Gle00]
Signature of GaN-AlN quantum dots by nonresonant Raman scattering
J. Gleize, J. Frandon, F. Demangeot, M. A. Renucci, C. Adelman, B. Daudin, G. Feuillet, B. Damilano, N. Grandjean, J. Massies
Appl. Phys. Lett., **77**, 2174 (2000)
124. [Gma00]
Intersubband absorption at $\lambda=1.55 \mu\text{m}$ in well- and modulation-doped GaN/AlGaIn multiple quantum wells with superlattice barriers
Claire Gmachl, Hock M. Ng, S.-N. George Chu, and Alfred Y. Cho
Appl. Phys. Lett. **77**, 3722 (2000)
125. [Gma01a]

Sub-picosecond electron scattering time for $\lambda \sim 1.55 \mu\text{m}$ intersubband transitions in GaN/AlGaIn multiple quantum wells

C. Gmachl, S. V. Frolov, H. M. Ng, S-N. G. Chu, et A. Y. Cho,
Electron. Lett. **37**, 378 (2001)

126. [Gma01b]

Intersubband absorption in degenerately doped GaN/Al_xGa_{1-x}N coupled double quantum wells

C. Gmachl, H. M. Ng, et A. Y. Cho,
Appl. Phys. Lett. **79**, 1590 (2001)

127. [Goa00]

Band structure nonlocal pseudopotential calculation of the III-nitride wurtzite phase materials system. Part I. Binary compounds GaN, AlN, and InN

M. Goano, E. Bellotti, E. Ghilino, G. Ghione, et K. F. Brennan,
J. Appl. Phys. **88**, 6467 (2000)

128. [Gogn03]

Structure of GaN quantum dots grown under "Modified Stranski-Krastanow" conditions on AlN

N. Gogneau, D. Jalabert, E. Monroy, T. Shibata, M. Tanaka, B. Daudin
J. Appl. Phys. **94**, 2254 (2003)

129. [Gogn04]

Croissance de boîtes quantiques GaN/AlN auto-organisées par épitaxie par jets moléculaires assistée par plasma

N Gogneau
Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier Grenoble I (2004)

130. [Golk07]

Negative differential resistance in dislocation-free GaN/AlGaIn double-barrier diodes grown on bulk GaN

S. Golka, C. Pflügl, W. Schrenk, G. Strasser, C. Skierbiszewski, M. Siekacz, I. Grzegory, and S. Porowski
Appl. Phys. Lett. **88**, 172106 (2006)

131. [Gop03]

Understanding the ultra-low intersubband saturation intensity in InGaAs-AlAsSb quantum wells

A. V. Gopal, H. Yoshida, T. Simoyama, N. Georgiev, T. Mozume, H. Ishikawa
IEEE Journal of Quantum Electronics, **39**, 299 (2003)

132. [Gra06]

InP-based quantum cascade detectors in the mid-infrared

Marcel Graf, Nicolas Hoyler, Marcella Giovannini, Jérôme Faist, and Daniel Hofstetter
Appl. Phys. Lett. **88**, 112418 (2006)

133. [Gru69]

Intensity and Gain Measurements on the Stimulated Raman Emission in Liquid O₂ and N₂

J. B. Grun, A. K. McQuillan, and B. P. Stoicheff
Phys. Rev. **180**, 61 (1969)

134. [Gui06]

Si-doped GaN/AlN quantum dot superlattices for optoelectronics at telecommunication wavelengths

F. Guillot, E. Bellet-Amalric, E. Monroy, M. Tchernycheva, L. Nevou, L. Doyennette, F. H. Julien, Le Si Dang, T. Remmele, M. Albrecht, T. Shibata, M. Tanaka
J. Appl. Phys., **100**, 044326 (2006)

135. [Gur83]

Synthetic Nonlinear Semiconductors

M. K. Gurnick, T. A. DeTemple
IEEE, J. Quant. Elec., **QE-19**, 791, (1983)

H

136. [Hah99]

Phase-matched optical second-harmonic generation in GaN and AlN slab waveguides

D. N. Hahn, G. T. Kiehne, J. B. Ketterson, G. K. L. Wong, P. Kung, A. Saxler, M. Razeghi
J. Appl. Phys., **85**, 2497, (1999)

137. [Ham04]

Ultrafast intersubband relaxation and nonlinear susceptibility at 1.55 μm in GaN/AlN multiple-quantum wells

J. Hamazaki, S. Matsui, H. Kunugita, K. Ema, H. Kanazawa, T. Tachibana, A. Kikuchi, et K. Kishino,
Appl. Phys. Lett. **84**, 1102 (2004)

138. [Ham05]

Intersubband relaxation dynamics in GaN/AlN multiple quantum wells studied by two-color pump-probe experiments

J. Hamazaki, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino

- Phys. Rev. B., **71**, 165334 (2005)
139. [Har02]
Properties of GaN and related compounds studied by means of Raman scattering
Hiroshi Harima
J. Phys.: Condens. Matter, **14**, R967 (2002)
140. [Har87]
Observation of Stark shifts in quantum well intersubband transitions
Alex Harwit and J. S. Harris, Jr.
Appl. Phys. Lett. **50**, 685 (1987)
141. [Heb02]
Comparative study of ultrafast intersubband electron scattering times at $\sim 1.55 \mu\text{m}$ wavelength in GaN/AlGaN heterostructures
J. D. Heber, C. Gmachl, H. M. Ng, et A. Y. Cho,
Appl. Phys. Lett. **81**, 1237 (2002)
142. [Hel88]
Observation of grating-induced intersubband emission from GaAs/AlGaAs superlattices
M. Helm, E. Colas, P. England, F. DeRosa, and S. J. Allen, Jr
Appl. Phys. Lett., **53**, 1714, (1988)
143. [Hel89]
Intersubband emission from semiconductor superlattices excited by sequential resonant tunnelling
M. Helm, P. England, E. Colas, F. DeRosa, S. J. Allen, Jr
Phys. Rev. Lett., **63**, 74, (1989)
144. [Hel93]
Complete bleaching of the intersubband absorption in GaAs/AlGaAs quantum wells using a far-infrared free-electron laser
M. Helm, T. Fromherz, B. N. Murdin, C. R. Pidgeon, K. K. Geerinck, N. J. Hovenyer, and W. Th. Wenckebach
Appl. Phys. Lett. **63**, 3315 (1993)
145. [Hel98]
The polarity of GaN: a critical review
E. S. Hellman,
MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research **3**, 1 (1998)
146. [Hel03]
Intersubband spectroscopy of doped and undoped GaN/AlN quantum wells grown by molecular-beam epitaxy
A. Helman, M. Tchernycheva, A. Lussou, E. Warde, F. H. Julien, Kh. Moumanis, G. Fishman, E. Monroy, B. Daudin, D. Le Si Dang, E. Bellet-Amalric, and D. Jalabert
Appl. Phys. Lett. **83**, 5196 (2003)
147. [Hes94]
Near-Field Spectroscopy of the Quantum Constituents of a Luminescent System
H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer, and K. W. West
Science **264**, 1740 (1994)
148. [Hira94]
Feasibility of 1.55 μm Intersubband Photonic Devices Using InGaAs/AlAs Pseudomorphic Quantum Well Structures
Y. Hirayama, J. H. Smet, L.-H. Peng, C. G. Fonstad, et E. P. Ippen,
Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 890 (1994)
149. [Hir90]
Well-width dependence of intersubband absorption in InGaAs/InAlAs multiquantum wells
Hiromitsu Asai and Yuichi Kawamura
Appl. Phys. Lett. **56**, 1149 (1990)
150. [Hofe01]
Photoconductive response of InAs/GaAs quantum dot stacks
S. Hofer, H. Hirner, R. Bratschitsch, G. Strasser and K. Unterrainer
Physica E, **13**, 190, (2002)
151. [Hof02]
Quantum-cascade-laser structures as photodetectors
Daniel Hofstetter, Mattias Beck, and Jérôme Faist
Appl. Phys. Lett. **81**, 2683 (2002)
152. [Hof03]
GaN/AlN-based quantum-well infrared photodetector for 1.55 μm
Daniel Hofstetter, Sven-Silvius Schad, Hong Wu, William J. Schaff, and Lester F. Eastman
Appl. Phys. Lett. **83**, 572 (2003)
153. [Hof06a]
23 GHz operation of a room temperature photovoltaic quantum cascade detector at 5.35 μm
D. Hofstetter, M. Graf, T. Aellen, J. Faist, L. Hvozdar, S. Blaser

Appl. Phys. Lett. **89**, 061119 (2006)

154. [Hof06b]

High-quality AlN/GaN-superlattice structures for the fabrication of narrow-band 1.4 μm photovoltaic intersubband detectors

D. Hofstetter, E. Baumann, F. R. Giorgetta, M. Graf, M. Maier, F. Guillot, E. Bellet-Amalric, E. Monroy
Appl. Phys. Lett. **88**, 121112 (2006)

155. [Hof07]

Optically nonlinear effects in intersubband transitions of GaN/AlN-based superlattice structures

D. Hofstetter, E. Baumann, F. R. Giorgetta, F. Guillot, S. Leconte, and E. Monroy
Appl. Phys. Lett. **91**, 131115 (2007)

156. [Hol06]

Electroabsorption Modulator Using Intersubband Transitions in GaN–AlGaN–AlN Step Quantum Wells

Petter Holmström
IEEE J. Quantum Electron., **42**, 810, (2006)

157. [Hu91]

Feasibility of far-infrared lasers using multiple semiconductor quantum wells

Qing Hu, Shechao Feng
Appl. Phys. Lett. **59**, 2923 (1991)

158. [Hug97]

Calculation of linear and second-order optical response in wurtzite GaN and AlN

J. L. P. Hughes, Y. Wang, J. E. Sipe
Phys. Rev. B., **55**, 13630, (1997)

159. [Hui03a]

GaN-based waveguide devices for long-wavelength optical communications

R. Hui, Y. Wan, J. Li, S. X. Jin, J. Y. Lin, et H. X. Jiang,
Appl. Phys. Lett. **82**, 1326 (2003)

160. [Hui03b]

Birefringence of GaN/AlGaN optical waveguides

R. Hui, S. Taherion, Y. Wan, J. Li, S. X. Jin, J. Y. Lin, et H. X. Jiang,
Appl. Phys. Lett. **83**, 1698 (2003)

I

161. [Iba06]

Raman scattering in InAs/(AlGa)As self-assembled quantum dots: Evidence of Al intermixing

J. Ibáñez, R. Cuscó, L. Artús, M. Henini, A. Patané, L. Eaves
Appl. Phys. Lett., **88**, 141905 (2002)

162. [Iiz00]

Ultrafast intersubband relaxation (≤ 150 fs) in AlGaIn/GaN multiple quantum wells

N. Iizuka, K. Kaneko, N. Suzuki, T. Asano, S. Noda, and O. Wada
Appl. Phys. Lett., **77**, 648 (2000)

163. [Iiz02]

Near-infrared intersubband absorption in GaN/AlN quantum wells grown by molecular beam epitaxy

N. Iizuka, K. Kaneko, et N. Suzuki,
Appl. Phys. Lett. **81**, 1803 (2002)

164. [Iiz04]

Sub-picosecond modulation by intersubband transition in ridge waveguide with GaN/AlN quantum wells

N. Iizuka, K. Kaneko, N. Suzuki,
Elect. Lett., **40**, 962 (2004)

165. [Iiz05]

Sub-picosecond all-optical gate utilizing aN intersubband transition

N. Iizuka, K. Kaneko, N. Suzuki,
Optics Express, **13**, 3835 (2005)

166. [Iiz06a]

Polarization dependent loss in III-nitride optical waveguides for telecommunication devices

N. Iizuka, K. Kaneko, N. Suzuki,
J. Appl. Phys., **99**, 093107 (2006)

167. [Iiz06b]

All-Optical Switch Utilizing Intersubband Transition in GaN Quantum Wells

N. Iizuka, K. Kaneko, N. Suzuki,

J. Quantum Electronics, **42**, 765 (2006)

168. [Ileg72]

Luminescence of Zn- and Cd-doped GaN

M. Ilegems, R. Dingle, R. A. Logan,

J. Appl. Phys. **43**, 3797 (1972)

169. [Ima99]

Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED

A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D.P. Di Vincenzo, D. Loss, M. Sherwin, A. Small

Phys. Rev. Lett. **83**, 4204 (1999)

170. [Ioffe06]

<http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaN/mechanic.html#Phonon>

J

171. [Jai00]

III-nitrides: Growth, characterization, and properties

S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, et R. Van Overstraeten,

J. Appl. Phys **87**, 965 (2000)

172. [Jer70]

Marker Fringes: A Detailed Comparison of Theory and Experiment for Isotropic and Uniaxial Crystals

J. Jerphagnon, S. K. Kurtz

J. Appl. Phys., **41**, 1667 (1970)

173. [Jia04]

Demonstration of a 256×256 middle-wavelength infrared focal plane array based on InGaAs/InGaP quantum dot infrared photodetectors

J. Jiang, K. Mi, S. Tsao, W. Zhang, H. Lim, T. O'Sullivan, T. Sills, M. Razeghi, G. J. Brown, M. Z. Tidrow,

Appl. Phys. Lett. **84**, 2232 (2004)

174. [Joh32]

Nitrogen compounds of gallium III

Warren C. Johnson, James B. Parsons, and M. C. Crew

J. Phys. Chem., **36**, 2651 (1932)

175. [Joh93]

Non linear optical solitary waves in a photonic band gap

S. John, N. Akosbek

Phys. Rev. Lett., **71**, 1168, (1993)

176. [Juju83]

The CW optically pumped 12.08 μm Raman laser- Theory and experiments for high power-conversion efficiency

F. Julien, P. Wazen, J-M Lourtioz, T. A. De Temple

IEEE J.Quant. Electron. **QE-19**, 1654 (1983)

177. [Juju85]

Le laser NH3 pompé optiquement: processus multiphotoniques et interactions paramétriques à quatre ondes

F. H. Julien

Thèse d'Etat, Université Paris Sud (1985) n° d'ordre : 3070

178. [Juju88]

Optical saturation of intersubband absorption in GaAs-Al_xGa_{1-x}As quantum wells

F. H. Julien, J.-M. Lourtioz, N. Herschkorn, D. Delacourt, J. P. Pocholle, M. Papuchon, R. Planel and G. Le Roux

Appl. Phys. Lett. **53**, 116 (1988)

179. [Juju91]

Novel all-optical 10 μm waveguide modulator based on intersubband absorption in GaAs/AlGaAs quantum wells

F. H. Julien, P. Vagos, J-M. Lourtioz, D. D. Yang, R. Planel

Appl. Phys. Lett., **59**, 2645 (1991)

180. [juju93]

Erratum: "Optical saturation of intersubband absorption in GaAs-Al_xGa_{1-x}As quantum wells" [Appl. Phys. Lett. 53, II 16 (1988)]

F. H. Julien, J.-M. Lourtioz, N. Herschkorn, D. Delacourt, J. P. Pocholle, M. Papuchon, R. Planel and G. Le Roux

Appt. Phys. Lett. **62**, 18 (1993)

181. [Juju95]

Optically pumped intersubband emission in quantum wells

F. H. Julien, A. Sa'ar, J. Wang, and J.-P. Leburton

Electron. Lett., **31**, 838 (1995)

K

182. [Kak04]
Exciton and biexciton luminescence from single hexagonal GaN/AlN self-assembled quantum dots
S. Kako, K. Hoshino, S. Iwamoto, S. Ishida, and Y. Arakawa
Appl. Phys. Lett. **85**, 64 (2004)
183. [Kal03]
Nonlinear behavior of photoabsorption in hexagonal nitride quantum wells due to free carrier screening of the internal fields
S. Kalliakos, P. Lefebvre, and T. Taliercio
Phys. Rev. B **67**, 205307 (2003)
184. [Kar97]
Ab initio lattice dynamics of BN and AlN: Covalent versus ionic forces
K. Karch and F. Bechstedt
Phys. Rev. B **56**, 7404 (1997)
185. [Kar98]
Ab initio study of structural, dielectric, and dynamical properties of GaN
K. Karch, J.-M. Wagner, and F. Bechstedt
Phys. Rev. B **57**, 7043 (1998)
186. [Kas91]
Possibility of infrared laser in a resonant tunneling structure
A. Kastalsky, V. J. Goldman, J. H. Abeles
Appl. Phys. Lett. **59**, 2636 (1991)
187. [Kaz71]
Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice
R.F. Kazarinov and R.A. Suris
Sov. Phys. Semicond., **5**, 707 (1971)
188. [Kei08]
Electro-Optical Modulator at Telecommunication Wavelengths Based on GaN/AlN Coupled Quantum Wells
N. Kheirodin, L. Nevou, H. Machhadani, P. Crozat, L. Vivien, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. H. Julien, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, and E. Monroy,
IEEE Photon. Technol. Lett., **20**, 724 (2008).
189. [Khu88]
Second-order nonlinear effects in asymmetric quantum-well structures
J. Khurgin
Phys. Rev. B., **38**, 4056, (1988)
190. [Khu95]
Comparative analysis of optically pumped intersubband lasers and intersubband Raman oscillators
J. B. Khurgin, G. Sun, L. R. Friedman, R. A. Soref
J. Appl. Phys., **78**, 7398 (1995)
191. [Kik02]
AlN/GaN double-barrier resonant tunneling diodes grown by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy
A. Kikuchi, R. Bannai, K. Kishino, C.-M. Lee, et J.-I. Chyi,
Appl. Phys. Lett. **81**, 1729 (2002)
192. [Kik03]
Response to "Comment on 'AlN/GaN double-barrier resonant tunneling diodes grown by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy' "
[Appl. Phys. Lett. **83**, 3626 (2003)]
A. Kikuchi, R. Bannai, K. Kishino, C.-M. Lee, J.-I. Chyi,
Appl. Phys. Lett. **83**, 3628 (2003)
193. [Kim97]
Multiphoton photoluminescence from GaN with tunable picosecond pulses
D. Kim, I. H. Libon, C. Voelkmann, Y. R. Shen, V. Petrova-Koch
Phys. Rev. B., **55**, R4907, (1997)
194. [Kis02]
*Intersubband transition in (GaN)*m*/(AlN)*n* superlattices in the wavelength range from 1.08 to 1.61 μm*
K. Kishino, A. Kikuchi, H. Kanazawa, et T. Tachibana,
Appl. Phys. Lett. **81**, 1234 (2002)
195. [Kor94]
TASERS: Possible dc pumped terahertz lasers using interwell transitions in semiconductor heterostructures
A. N. Korotkov, D. V. Averin, and K. K. Likharev

Appl. Phys. Lett. **65**, 1865 (1994)

196. [Kra25]

Über die Streuung von Strahlung durch Atome

H. A. Kramers and W. Heisenberg
Zeitschrift f. Physik, **31**, 681 (1925)

197. [Kra00]

Nonlinear optical response of GaN layers on sapphire: The impact of fundamental beam interference

I. V. Kravetsky, I. M. Tiginyanu, R. Hildebrandt, G. Marowsky, D. Pavlidis, A. Eisenbach, H. L. Hartnagel
Appl. Phys. Lett., **76**, 810 (2000)

198. [Koe06]

Electronic transport in quantum cascade structures at equilibrium

C. Koeniguer, G. Dubois, A. Gomez, and V. Berger
Phys. Rev. B **74**, 235325 (2006)

199. [Kud08]

Contactless electrodetectance spectroscopy of inter- and intersub-band transitions in AlInN/GaN quantum wells

R. Kudrawiec, M. Motyka1, G. Cywinski, M. Siekacz, C. Skierbiszewski, L. Nevou, L. Doyennette, M. Tcherycheva, F. H. Julien, J. Misiewicz
Phys. Stat. Sol. (c) **5**, 503 (2008)

200. [Kum07]

AIN Waveguide with GaN/AIN Quantum Wells for All-Optical Switch Utilizing Intersubband Transition

Chaiyasit Kumtornkittikul1, Toshimasa Shimizu, Norio Iizuka, Nobuo Suzuki, Masakazu Sugiyama, and Yoshiaki Nakano
Japanese Journal of Applied Physics, **46**, L352 (2007)

L

201. [Lan28]

A novel effect of light scattering in crystals

G. Landsberg, L. I. Mandel'stamm
Naturwissenschaften, **16**, 557 (1928)

202. [Lar06]

Second harmonic generation in GaN/Al₅₀Ga₅₀N films deposited by metal-organic chemical vapor deposition

M. C. Larciprete, M. Centini, A. Belardini, L. Sciscione, M. Bertolotti, C. Sibilia, M. Scalora, A. Passaseo, B. Poti
Appl. Phys. Lett., **89**, 131105, (2006)

203. [Lav95]

Observation of optically pumped midinfrared intersubband luminescence in coupled quantum wells structure

Y. Lavon, A. Sa'ar, Z. Moussa, F. H. Julien, R. Planel
Appl. Phys. Lett., **67**, 1984, (1995)

204. [Lec06]

Vertical electron transport study in GaN/AlN/GaN heterostructures

S. Leconte, E. Monroy and J.-M. Gérard
Superlattices and Microstructures, **40**, 507 (2006)

205. [Lec07]

Charge distribution and vertical electron transport through GaN/AlN/GaN single-barrier structures

S Leconte, F Guillot, E Sarigiannidou and E Monroy
Semicond. Sci. Technol. **22**, 107 (2007)

206. [Ler02]

Optical Characterization of Al_xGa_{1-x}N Alloys (x < 0.7) Grown on Sapphire or Silicon

M. Leroux, S. Dalmaso, F. Natali, S. Helin, C. Touzi, S. Laugt, M. Passerel, F. Omnes, F. Semond, J. Massies, et P. Gibart,
Phys. Stat. Sol. (b) **234**, 887 (2002).

207. [Les99]

GaN homoepitaxial layers grown by metalorganic chemical vapor deposition

M. Leszczynski, B. Beaumont, E. Frayssinet, W. Knap, P. Prystawko, T. Suski, I. Grzegory, and S. Porowski
Appl. Phys. Lett. **75**, 1276 (1999)

208. [Lev87a]

Strong 8.2 μm infrared intersubband absorption in doped GaAs/AlAs quantum well waveguides

B. F. Levine, R. J. Malik, J. Walker, K. K. Choi, C. G. Bethea, D. A. Kleinman, and J. M. Vandenberg
Appl. Phys. Lett. **50**, 273 (1987)

209. [Lev87b]

- New 10 μm infrared detector using intersubband absorption in resonant tunneling GaAlAs superlattices*
B. F. Levine, K. K. Choi, C. G. Bethea, J. Walker, and R. J. Malik
Appl. Phys. Lett. **50**, 1092 (1987)
210. [Li06]
 $\lambda\sim 1.49\text{--}3.4\ \mu\text{m}$ intersubband absorptions in (CdS/ZnSe)/BeTe quantum wells grown by molecular beam epitaxy
B. S. Li, R. Akimoto, K. Akita, and T. Hasama
Appl. Phys. Lett. **88**, 221915 (2006)
211. [Li03]
An All-Optical Quantum Gate in a Semiconductor Quantum Dot
X. Li, Y. Wu, D. G. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, L. J. Sham
Science **301**, 809 (2003)
212. [Li.Y06]
Intersubband all-optical switching based on Coulomb-induced optical nonlinearities in GaN/AlGaIn coupled quantum wells
Y Li and R Paiella
Semicond. Sci. Technol. **21**, 1105 (2006)
213. [Li.Y07a]
Nonlinear optical waveguides based on nearinfrared intersubband transitions in GaN/AlIn quantum wells
Yan Li, Anirban Bhattacharyya, Christos Thomidis, Theodore D. Moustakas, and Roberto Paiella
Opt. Express **15**, 5860 (2007)
214. [Li.Y07b]
Ultrafast all-optical switching with low saturation energy via intersubband transitions in GaN/AlIn quantum-well waveguides
Yan Li, Anirban Bhattacharyya, Christos Thomidis, Theodore D. Moustakas, and Roberto Paiella
Opt. Express **15**, 17922 (2007)
215. [Lib07]
Quantum Vacuum Radiation Spectra from a Semiconductor Microcavity with a Time-Modulated Vacuum Rabi Frequency
Simone De Liberato, Cristiano Ciuti I, Iacopo Carusotto
Phys. Rev. Lett. **98**, 103602 (2007)
216. [Lin03]
In_{0.6}Ga_{0.4}As/GaAs quantum-dot infrared photodetector with operating temperature up to 260 K
Lin-Jiang, S. S. Li, N. T. Yeh, J. I. Chyi, C. E. Ross, K. S. Jones
Appl. Phys. Lett. **82**, 1986 (2003)
217. [Liu88]
A novel superlattice infrared source
H. C. Liu
J. Appl. Phys., **63**, 2856 (1988)
218. [Liu91]
Infrared transmission and photocurrent study of intersubband transitions in coupled asymmetrical quantum well structure
H. C. Liu, A. G. Steele, M. Buchanan, Z. R. Wasilewski
J. Appl. Phys., **70**, 7560 (1991)
219. [Liu95]
Sum Frequency Generation by Intersubband Transitions in Step Quantum Wells
H. C. Liu, E. Costard, E. Rosencher, J. Nagle
IEEE J. Quantum Electron., **QE31**, 1659 (1995)
220. [Liu96]
Sum Frequency Generation by Intersubband Transition in Step Quantum Well
H. C. Liu, Jianmeng Li, E. Costard, E. Rosencher, J. Nagle
Solid-State Electronics, **40**, 567 (1996)
221. [Liu00]
Optically pumped intersubband laser: Resonance positions and many-body effects
H. C. Liu, A. J. SpringThorpe
Phys. Rev. B., **61**, 15630, (2000)
222. [Liu01]
Intersubband Raman laser
H. C. Liu, I. W. Cheung, A. J. SpringThorpe, C. Dharma-wardana, Z. R. Wasilewski, D. J. Lockwood, G. C. Aers
Appl. Phys. Lett., **78**, 3580 (2001)
223. [Liu03a]
Coupled Electron-Phonon Modes in Optically Pumped Resonant Intersubband Laser
H. C. Liu, C. Y. Song, Z. R. Wasilewski, A. J. SpringThorpe, J. C. Cao, C. Dharma-wardana, G. C. Aers, . J. Lockwood, J. A. Gupta
Phys. Rev. Lett., **90**, 077402, (2003)
224. [Liu03b]
Quantum dot infrared photodetector
H. C. Liu

Opto Electronics Review **11**, 1 (2003)

225. [Liu.A00]

Piezoelectric field-enhanced second-order non linear optical susceptibilities in wurtzite GaN/AlGaIn quantum wells

A. Liu, S.-L. Chuang, C.Z. Ning
Appl. Phys. Lett., **76**, 333, (2000)

226. [Loe91]

Theoretical studies of the applications of resonant tunneling diodes as intersubband laser and interband excitonic modulators

J. P. Loehr, J. Singh, R. K. Mains, and G. I. Haddad
Appl. Phys. Lett. **59**, 2070 (1991)

227. [Lup08]

Lattice Matched GaN/InAlN Waveguides at $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ Grown by Metalorganic Vapor Phase Epitaxy

A. Lupu, F. H. Julien, S. Golka, G. Pozzovivo, G. Strasser, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, S. Nicolay, M. Mosca, E. Feltin, J-F. Carlin, and N. Grandjean
IEEE Photonics Technol. Lett., **20**, 102 (2008)

228. [Lyu98]

Measurement of far-infrared intersubband spontaneous emission from optically pumped quantum wells

I. Lyubomirsky, Q. Hu, M. R. Melloch
Appl. Phys. Lett., **73**, 3043 (1998)

M

229. [Ma07]

GaNAs double-barrier quantum well infrared photodetector with the photodetection at $1.24 \mu\text{m}$

B. S. Ma, W. J. Fan, Y. X. Dang, W. K. Cheah, W. K. Loke, W. Liu, D. S. Li, S. F. Yoon, D. H. Zhang, H. Wang, C. H. Tung
Appl. Phys. Lett. **91**, 051102 (2007)

230. [Mac93]

Infrared reflectance of thin aluminum nitride films on various substrates

M. F. MacMillan, R. P. Devaty, and W. J. Choyke
Appl. Phys. Lett. **62**, 750 (1993)

231. [Mai60]

Stimulated Optical Radiation in Ruby

T.H. Maiman
Nature, **187**, 493 (1960)

232. [Mal53]

Feedback theory-Some properties of signal flow graphs

S. Y. Malson
Proc. IRE **41**, 1144 (1953)

233. [Mal56]

Feedback theory-Some properties of signal flow graphs

S. Y. Malson
Proc. IRE **44**, 920 (1956)

234. [Man90]

Intersubband infrared absorption in a GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum well structure

M. O. Manasreh, F. Szmulowicz, D. W. Fischer, K. R. Evans, and C. E. Stutz
Appl. Phys. Lett. **57**, 1790 (1990)

235. [Marz94]

Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs

J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard
Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994)

236. [Mii90]

Large Stark shifts of the local to global state intersubband transitions in step quantum wells

Y. J. Mii, R. P. G. Karunasiri, K. L. Wang, M. Chen, and P. F. Yuh
Appl. Phys. Lett. **56**, 1986 (1990)

237. [Min92]

First-principles total-energy calculation of gallium nitride

B. J. Min, C. T. Chan, et K. M. Ho,
Phys. Rev. B **45**, 1159 (1992)

238. [Mir93]

Linear- and non linear-optical properties of GaN thin films

- J. Miragliotta, D. K. Wickenden, T. J. Kistenmacher, W. A. Bryden
J. Opt. Soc. Am. B, **10**, 1447, (1993)
239. [Moo05]
Infrared dielectric function of wurtzite aluminum nitride
 W. J. Moore, J. A. Freitas Jr., R. T. Holm, O. Kovalenkov, V. Dmitriev,
Appl. Phys. Lett., **86**, 141912 (2005)
240. [Mot06]
Energy difference between electron subbands in AlInN/GaInN quantum wells studied by contactless electroreflectance spectroscopy
 M. Motyka, R. Kudrawiec, G. Cywinski, M. Siekacz, C. Skierbiszewski, J. Misiewicz
Appl. Phys. Lett., **89**, 251908 (2006)
241. [Mou03]
Intraband absorptions in GaN/AlN quantum dots in the wavelength range of 1.27–2.4 μm
 Kh. Moumanis, A. Helman, F. Fossard, M. Tcherynycheva, A. Lusson, F. H. Julien, B. Damilano, N. Grandjean, and J. Massies
Appl. Phys. Lett., **82**, 868 (2003)
242. [Mousa95]
Observation of infrared intersubband emission in optically pumped quantum wells
 Z. Moussa, P. Boucaud, F. H. Julien, Y. Lavon, A. Sa'ar, V. Berger, J. Nagle, N. Coron
Electron. Lett., **31**, 912 (1995)
243. [Moz03]
Ultralow Intersubband Absorption Saturation Intensity at Communication Wavelength Achieved in Novel Strain Compensated InGaAs/AlAs/AlAsSb Quantum Wells Grown by Molecular Beam Epitaxy
 Teruo MOZUME, Jun-ichi KASAI, Nikolai GEORGIEV, Takasi SIMOYAMA, Achanta Venu GOPAL and Haruhiko YOSHIDA
Jpn. J. Appl. Phys., **42**, 5500 (2003)
244. [Mul01]
Surfactant effect of gallium during molecular-beam epitaxy of GaN on AlN (0001)
 G. Mula, C. Adelman, S. Moehl, J. Oullier, et B. Daudin,
Phys. Rev. B, **64**, 195406 (2001)
245. [Mül03]
Ultrafast intraband spectroscopy of electron capture and relaxation in InAs/GaAs quantum dots
 T. Müller, F. F. Schrey, G. Strasser, and K. Unterrainer
Appl. Phys. Lett., **83**, 3572 (2003)
- ## N
246. [Nak97a]
Room-temperature continuous-wave operation of InGaN multi-quantum-well structure laser diodes with a lifetime of 27 hours
 S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Mukai, T. Matsushita,
 Y. Sugimoto, et H. Kiyoku,
Appl. Phys. Lett., **70**, 1417 (1997)
247. [Nak97b]
The blue laser diode
 S. Nakamura, et G. Fasol
 Springer-Verlag, Berlin (1997).
248. [Nak87]
Intersubband transitions in GaAs-Al_xGa_{1-x}As modulation-doped superlattices
 M. Nakayama, H. Kuwahara, H. Kato, and K. Kubota
Appl. Phys. Lett., **51**, 1741 (1987)
249. [Nam01]
Growth and deep ultraviolet picosecond time-resolved photoluminescence studies of AlN/GaN multiple quantum wells
 K. B. Nam, J. Li, K. H. Kim, J. Y. Lin, and H. X. Jiang
Appl. Phys. Lett., **78**, 3690 (2001)
250. [Neo99]
Intersubband transitions at 1.3 and 1.55 μm in a novel coupled InGaAs-AlAsSb double-quantum-well structure
 A. Neogi, T. Mozume, H. Yoshida, et O. Wada,
IEEE Photonics Technol. Lett., **11**, 632 (1999)
251. [Nev06a]
Intersubband resonant enhancement of second-harmonic generation in GaN/AlN quantum wells
 L. Nevou, M. Tcherynycheva, F. H. Julien, M. Raybaut, A. Godard, E. Rosencher, F. Guillot, E. Monroy
Appl. Phys. Lett., **89**, 151101 (2006)

252. [Nev06b]
Room-temperature intersubband emission of GaN/AlN quantum wells at $\lambda=2.3\mu\text{m}$
L. Nevou, F. H. Julien, R. Colombelli, F. Guillot, E. Monroy,
Electron. Lett **42**, 1308 (2006)
253. [Nev06c]
New developments for nitride unipolar devices at 1.3–1.5 μm wavelengths
L. Nevou, M. Tcherycheva, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Warde, R. Colombelli, F. Guillot, S. Leconte, E. Monroy, T. Remmele, and M. Albrecht,
Superlattices and Microstructures, **40**, 412 (2006)
254. [Nev07a]
Short wavelength ($\lambda=2.13\mu\text{m}$) intersubband luminescence from GaN/AlN quantum wells at room temperature
L. Nevou, M. Tcherycheva, F.H. Julien, F. Guillot, E. Monroy,
Appl. Phys. Lett. **90**, 121106 (2007)
255. [Nev07b]
Short-wavelength intersubband electroabsorption modulation based on electron tunneling between GaN/AlN coupled quantum wells
L. Nevou, N. Kheirodin, M. Tcherycheva, L. Meignien, P. Crozat, A. Lupu, E. Warde, F. H. Julien, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele and M. Albrecht
Appl. Phys. Lett. **90**, 223511 (1991)
256. [Nic05]
Mid-infrared intersubband absorption in lattice-matched AlInN/GaN multiple-quantum wells
S. Nicolay, J.-F. Carlin, E. Feltin, R. Butté, M. Mosca, N. Grandjean, M. Ilegems, M. Tcherycheva, L. Nevou, and F. H. Julien,
Appl. Phys. Lett. **87**, 111106 (2005)
257. [Nic06]
Indium surfactant effect on AlN/GaN heterostructures grown by metal-organics vapour phase epitaxy: applications to intersubband transitions
S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, M. Mosca, L. Nevou, M. Tcherycheva, F. H. Julien, M. Ilegems, and N. Grandjean,
Appl. Phys. Lett. **88**, 151902 (2006)
258. [Nic07a]
Strain-induced interface instability in GaN/AlN multiple quantum wells
S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, N. Grandjean, L. Nevou, F. H. Julien, M. Schmidbauer, T. Remmele, M. Albrecht,
Appl. Phys. Lett. **91**, 061927 (2007).
259. [Nic07b]
Telecom Range Intersubband Transitions in GaN/AlN Multiple Quantum Wells Grown by Ammonia Molecular Beam Epitaxy
Sylvain Nicolay, Amélie Dussaigne, Laurent Nevou, François. H. Julien, Nicolas Grandjean
7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS07) Las Vegas
- O**
260. [Obe87]
Time-resolved Raman scattering in GaAs quantum wells
D. Y. Oberli, D. R. Wake, M. V. Klein, J. Klem, T. Henderson, and H. Morkoç
Phys. Rev. Lett. **59**, 696 (1987)
261. [Ogl97]
Long-wavelength ($\sim 15.5\mu\text{m}$) unipolar semiconductor laser in GaAs quantum wells
O. Gauthier-Lafaye, P. Boucaud, F. H. Julien, S. Sauvage, S. Cabaret, J.-M. Lourtioz, V. Thierry-Mieg and R. Planel
Appl. Phys. Lett., **71**, 3619 (1997)
262. [Ogl99]
High-power GaAs/AlGaAs quantum fountain unipolar laser emitting at 14.5 μm with 2.5% tunability
O. Gauthier-Lafaye, F. H. Julien, S. Cabaret, and J.-M. Lourtioz, G. Strasser, E. Gornik, M. Helm, P. Bois
Appl. Phys. Lett., **74**, 1537 (1999)
263. [Ogl00]
High-power tunable quantum fountain unipolar lasers
O. Gauthier-Lafaye, B. Seguin-Roa, F. H. Julien, P. Collot, C. Sirtori, J. Y. Duboz, G. Strasser
Physica E (Amsterdam), **7**, 12 (2000)
264. [Ols89]
Photoinduced intersubband absorption in undoped multi-quantum-well structures
M. Olszackier, E. Ehrenfreund, E. Cohen, J. Bajaj, J. Sullivan
Phys. Rev. Lett., **62**, 2997, (1989)
265. [Ozg01]
Systematic measurement of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ refractive indices

U. Ozgur, G. Webb-Wood, H. O. Everitt, F. Yun, H. Morkoc
Appl. Phys. Lett., **79**, 4103, (2001)

P

266. [Pal03]
Intersublevel photoresponse of (In,Ga)As/GaAs quantum-dot photodetectors: polarization and temperature dependence
 D. Pal, L. Chen, E. Towe
Appl. Phys. Lett. **83**, 4634 (2003)
267. [Pan71a]
GaN electroluminescent diodes
 J. I. Pankove, E. A. Miller, and J. E. Berkeyhe
RCA Review, **32**, 383, (1971)
268. [Pan71b]
Electroluminescence in GaN
 J. I. Pankove, E. A. Miller, D. Richman and J. E. Berkeyheiser
Journal of Luminescence, **4**, 63 (1971)
269. [Pan72a]
GaN blue light-emitting diodes
 J. I. Pankove, E. A. Miller and J. E. Berkeyheiser
Journal of Luminescence, **5**, 84, (1972)
270. [Pan72b]
UV dc electroluminescence from GaN
 J. I. Pankove
Journal of Luminescence, **5**, 482 (1972)
271. [Pan73]
Luminescence in GaN
 J. I. Pankove
Journal of Luminescence, **7**, 114 (1973)
272. [Pat70a]
Tunable Stimulated Raman Scattering from Conduction Electrons in InSb
 C. K. N. Patel, E. D. Shaw
Phys. Rev. Lett., **24**, 451 (1970)
273. [Pat70b]
Tunable spin-flip laser and infrared spectroscopy
 C. K. N. Patel, E. D. Shaw, R. J. Kerl
Phys. Rev. Lett., **25**, 8 (1970)
274. [Pel95]
Interband second-harmonic generation in Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe strained quantum wells
 V. Pellegrini, A. Parlangei, M. Borger, R. D. Atanasov, F. Beltram
Phys. Rev. B., **52**, R5527, (1995)
275. [Per92]
Raman scattering and x-ray absorption spectroscopy in gallium nitride under high pressure
 P. Perlin, C. Jauberthie-Carillon, J-P. Itie, A. San Miguel, I. Grzegory, A. Polian
Phys. Rev. B **45**, 83 (1992)
276. [Per93]
Raman-scattering studies of aluminum nitride at high pressure
 Piotr Perlin, Alain Polian, Tadeusz Suski
Phys. Rev. B **47**, 2874 (1993)
277. [Pér03]
Dynamic saturation of an intersublevel transition in self-organized InAs/InxAl1-xAs quantum dots
 E. Péronne, F. Fossard, F. H. Julien, J. Brault, M. Gendry, B. Salem, G. Bremond, A. Alexandrou
Phys. Rev. B **67**, 205329 (2003)
278. [Pet04]
Intersubband photoconductivity of self-assembled InAs quantum dots embedded in InP
 H. Pettersson, L. Landin, M. Kleverman, W. Seifert, L. Samuelson, Y. Fu, et M. Willander
J. Appl. Phys. **95**, 1829 (2004)
279. [Pin79]
Observation of intersubband excitations in a multilayer two dimensional electron gas

A. Pinczuk, H. L. Störmer, R. Dingle, J. M. Worlock, W. Wiegmann and A. C. Gossard
Solid State Communications, **32**, 1001 (1979)

280. [Pin82]

Light scattering by two-dimensional electron systems in semiconductors

A. Pinczuk and J. M. Worlock
Surface Science, **113**, 69 (1982)

281. [Pug99]

Electronic structure calculations on nitride semiconductors

S. K. Pugh, D. J. Dugdale, S. Brand, R. A. Abram,
Semicond. Sci. Technol. **14**, 23 (1999)

Q

282. [Qu94]

Second-harmonic generation from a GaAs/Al_{1-x}Ga_xAs asymmetric quantum-well structure

X. H. Qu, D. J. Bottomley, H. Ruda, A. J. Springthorpe
Phys. Rev. B., **50**, 5703, (1994)

R

283. [Ram28]

A new type of secondary radiation

C. W. Raman, K. S. Krishnan
Nature, **121**, 501 (1928)

284. [Ram90]

Doping density dependence of intersubband transitions in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum-well structures

M. Ramsteiner, J. D. Ralston, P. Koidl, B. Dischler, H. Biebl, J. Wagner, and H. Ennen
J. Appl. Phys., **67**, 3900 (1990)

285. [Ran03]

Self-consistent calculations of the optical properties of GaN quantum dots

V. Ranjan, G. Allan, C. Priester, et C. Delerue
Phys. Rev. B **68**, 115305 (2003)

286. [Rap03]

Resonant optical nonlinearities from intersubband transitions in GaN/AlN quantum wells

R. Rapaport, Gang Chen, O. Mitrofanov, C. Gmachl, H. M. Ng, S. N. G. Chu
Appl. Phys. Lett., **83**, 263, (2003)

287. [Rev07]

InGaAs/AlAsSb/InP quantum cascade lasers operating at wavelength close to 3 μm

D.G.Revin, J.W.Cockburn, M.J.Steer, R.J.Airey, M.Hopkinson, A.B.Krysa, L.R.Wilson, S.Menzel
Appl. Phys. Lett., **90**, 021108, (2007)

288. [Rid93]

B. K. Ridley,

Quantum Processes in Semiconductors

Ed. Oxford Science Publication, third edition (1993)

289. [Rid94]

B. K. Ridley,

in H. C. Liu *et al.* editors, *Quantum Well Intersubband transition Physics and Devices.*

Kluwer Academic Publishers (1994)

290. [Rol06]

Optical properties of single non-polar GaN quantum dots

F. Rol, B. Gayral 1, S. Founta, B. Daudin, J. Eymery, J.-M. Gérard, H. Mariette, Le Si Dang, D. Peyrade
Phys. Status Solidi b, **243**, 1652 (2006)

291. [Ros89a]

Second harmonic generation by intersub-band transitions in compositionally asymmetrical MQWs

E. Rosencher, P. Bois, J. Nagle, S. Delaitre
Elec. Lett., **25**, 1063, (1989)

292. [Ros89b]

Observation of nonlinear optical rectification at 10.6 μm in compositionally asymmetrical AlGaAs multi-quantum wells
E. Rosencher, P. Bois, J. Nagle, E. Costard, S. Delaitre
Appl. Phys. Lett., **55**, 1597, (1989)

293. [Ros91]

Model system for optical nonlinearities: Asymmetric quantum wells
E. Rosencher, P. Bois
Phys. Rev. B., **44**, 11315, (1991)

294. [Ros96]

Quantum Engineering of Optical Nonlinearities
E. Rosencher, A. Fiore, B. Vinter, V. Berger, P. Bois, J. Nagle
Science, **271**, 168, (1996)

295. [Ros02]

Optoélectronique
Emmanuel Rosencher, Borge Vinter
Dunod, 2^{ème} édition, (2002)

296. [Rub93]

Quasiparticle band structure of AlN and GaN
A. Rubio, J. L. Corkill, M. L. Cohen, E. L. Shirley, S. G. Louie,
Phys. Rev. B **48**, 11810 (1993)

297. [Ruf01]

Phonon Dispersion Curves in Wurtzite-Structure GaN Determined by Inelastic X-Ray Scattering
T. Ruf, J. Serrano, M. Cardona, P. Pavone, M. Pabst, M. Krisch, M. D'Astuto, T. Suski, I. Grzegory, and M. Leszczynski.
Phys. Rev. Lett., **86**, 906 (2001)

S

298. [Sak96]

Sum-frequency generation in a two-dimensional photonic lattice
K. Sakoda, K. Ohtaka
Phys. Rev. B., **54**, 5742, (1996)

299. [Sanj83]

Dependence on volume of the phonon frequencies and the ir effective charges of several III-V semiconductors
J. A. Sanjurjo, E. Lopez-Cruz, P. Vogl, M. Cardona
Phys. Rev. B **28**, 4579 (1983)

300. [San05]

Measurement of second order susceptibilities of GaN and AlGaN
N. A. Sanford, A. V. Davydov, D. V. Tsvetkov, A. V. Dmitriev, S. Keller, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, S. S. Park, J. Y. Han, R. J. Molnar
J. Appl. Phys., **97**, 053512, (2005)

301. [San02]

Indistinguishable photons from a single-photon device
C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon, et Y. Yamamoto
Nature **419**, 594 (2002)

302. [Sap07]

Photovoltaic probe of cavity polaritons in a quantum cascade structure
L. Sapienza, A. Vasanelli, C. Ciuti, C. Manquest, C. Sirtori, R. Colombelli, and U. Gennser
Appl. Phys. Lett. **90**, 201101 (2007)

303. [Sar05]

Strain distribution in GaN/AlN quantum-dot superlattices
E. Sarigiannidou, E. Monroy, B. Daudin, J. L. Rouvière, A. D. Andreev
Appl. Phys. Lett. **87**, 203112 (2005)

304. [Sau98]

Saturation of intraband absorption and electron relaxation time in n-doped InAs/GaAs self-assembled quantum dots
S. Sauvage, P. Boucaud, F. Glotin, R. Prazeres, J-M. Ortega, A. Lemaître, J-M. Gérard, V. Thierry-Flieg
Appl. Phys. Lett. **73**, 3818 (1998)

305. [Sau99]

Third-harmonic generation in InAs/GaAs self-assembled quantum dots
S. Sauvage, P. Boucaud, F. Glotin, R. Prazeres, J-M. Ortega, A. Lemaître, J-M. Gérard, V. Thierry-Mieg
Phys. Rev. B., **59**, 9830, (1999)

306. [Sau01]

- Second-harmonic generation resonant with s-p transition in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*
S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, F. Glotin, R. Prazeres, J.-M. Ortega, J.-M. Gérard
Phys. Rev. B., **63**, 113312, (2001)
307. [Sau01b]
Midinfrared absorption and photocurrent spectroscopy of InAs/GaAs self-assembled quantum dots
S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, V. Immer, E. Finkman, J.-M. Gérard
Appl. Phys. Lett. **78**, 2327 (2001)
308. [Sau02]
Long Polaron Lifetime in InAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots
S. Sauvage, P. Boucaud, R. P. S. M. Lobo, F. Bras, G. Fishman, R. Prazeres, F. Glotin, J. M. Ortega, J.-M. Gérard
Phys. Rev. Lett., **88**, 177402 (2002)
309. [Sau02b]
Dephasing of intersublevel polarizations in InAs/GaAs self-assembled quantum dots
S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, M. Broquier, C. Crépin, J.-M. Ortega, J.-M. Gérard
Phys. Rev. B **66**, 153312 (2002)
310. [Sca07]
Laser emission at 830 and 960 GHz from quantum cascade structures
Giaco Scari, Christoph Walther, Harvey Beere, David Ritchie, Jérôme Faist
IEEE Conf. Proc. ITQW2007
311. [Sch07]
Intersubband Raman laser from GaInAs/AlInAs double quantum wells
Maxi Scheinert, Hans Sigg, Soichiro Tsujino, Marcella Giovannini and Jerome Faist
Appl. Phys. Lett., **91**, 131108 (2007)
312. [Sch99]
Large interband second-order susceptibilities in $In_xGa_{1-x}N/GaN$ quantum wells
H. Schmidt, A. C. Abare, J. E. Bowers, S. P. Denbaars, A. Imamoglu
Appl. Phys. Lett., **75**, 3611, (1999)
313. [Sch04]
GaN, AlN, InN and their alloys
L. J. Schovalter, J. B. Whitlock, K. E. Morgan, S. B. Schujman, K. R. Evans, et G. A. Slack,
MRS Vol. **831**, (2004)
314. [Schr05]
Intraband transitions in quantum dot–superlattice heterostructures
F. F. Schrey, L. Rebohle, T. Müller, G. Strasser, K. Unterrainer, D. P. Nguyen, N. Regnault, R. Ferreira, and G. Bastard
Phys. Rev. B, **72**, 155310 (2005)
315. [Sei87]
Intersubband relaxation in GaAs-AlxGa1-xAs quantum well structures observed directly by an infrared bleaching technique
A. Seilmeier, H.-J. Hübner, G. Abstreiter, G. Weimann and W. Schlapp
Phys. Rev. Lett., **59**, 1345 (1987)
316. [Sem07]
Short-wavelength ($\lambda \sim 3.05 \mu\text{m}$) InP-based strain compensated quantum cascade laser
M.P. Semtsiv, M. Wienold, S. Dressler, and W.T. Masselink
Appl. Phys. Lett., **90**, 051111, (2007)
317. [Set94]
Second-harmonic generation in asymmetric Si/SiGe quantum wells
M. Seto, M. Helm, Z. Moussa, P. Boucaud, F. H. Julien, J.-M. Lourtioz, J. F. Nuzel, G. Abstreiter
Appl. Phys. Lett., **65**, 2969, (1994)
318. [Sha96]
Strain effects on excitonic transitions in GaN: Deformation potentials
W. Shan, R. J. Hauenstein, A. J. Fisher, J. J. Song, W. G. Perry, M. D. Bremser, R. F. Davis, et B. Goldenberg,
Phys. Rev. B **54**, 13460 (1996).
319. [Shen84]
The Principles of Nonlinear Optics
Y. R. Shen
Wiley-Interscience 1984
320. [Shi01]
Near-room-temperature operation of an InAs/GaAs quantum-dot infrared photodetector
Shiang-Feng-Tang, S. Y. Lin, Si-Chen-Lee
Appl. Phys. Lett. **78**, 2428 (2001)

321. [Shim07]
Fabrication and Measurement of AlN Cladding AlN/GaN Multiple-Quantum-Well Waveguide for All-Optical Switching Devices Using Intersubband Transition
 Toshimasa SHIMIZU1, Chaiyasit KUMTORNKITTIKUL, Norio IIZUKA, Nobuo SUZUKI, Masakazu SUGIYAMA, Yoshiaki NAKANO
 Jpn. J. Appl. Phys. **46**, 6639 (2007)
322. [Sho03]
Determination of the anisotropic dielectric function for wurtzite AlN and GaN by spectroscopic ellipsometry
 S. Shokhovets, R. Goldhahn, G. Gobsch, S. Piekh, R. Lantier, A. Rizzi, V. Lebedev, W. Richter,
 J. Appl. Phys., **94**, 307 (2003)
323. [Sie95]
Quantitative determination of hexagonal minority phase in cubic GaN using Raman spectroscopy
 H. Siegle, L. Eekey, A. Hoffmann, C. Thomsen, B. K. Meyer, D. Schikora, M. Hankeln, K. Lischka
 Solid State Communications, **96**, 943 (1995)
324. [Sie97]
 Zone-boundary phonons in hexagonal and cubic GaN
 H. Siegle, G. Kaczmarczyk, L. Filippidis, A. P. Litvinchuk, A. Hoffmann, C. Thomsen
 Phys. Rev. B **55**, 7000 (1997)
325. [Sim07]
Absorption Dynamics in All-Optical Switch Based on Intersubband Transition in InGaAs–AlAs–AlAsSb Coupled Quantum Wells
 T. Simoyama, S. Sekiguchi, H. Yoshida, J. Kasai, T. Mozume, and H. Ishikawa,
 IEEE Photonics Technol. Lett. **19**, 604 (2007)
326. [Sir91]
Observation of large second order susceptibility via intersubband transition at $\lambda \sim 10 \mu\text{m}$ in asymmetric coupled AlInAs/GaInAs quantum wells
 C. Sirtori, F. Capasso, D. L. Sivco, S. N. G. Chu, A. Y. Cho
 Appl. Phys. Lett., **59**, 2302, (1991)
327. [Sir92]
Giant, Triply Resonant, Third-Order Nonlinear Susceptibility $\chi_{3\omega}^{(3)}$ in Coupled Quantum Wells
 C. Sirtori, F. Capasso, D. L. Sivco, A. Y. Cho
 Phys. Rev. Lett., **68**, 1010, (1992)
328. [Sir94]
Far-infrared generation by doubly resonant difference frequency mixing in a coupled quantum well two-dimensional electron gas system
 C. Sirtori, F. Capasso, J. Faist, L. N. Pfeiffer, K. W. West,
 Appl. Phys. Lett., **65**, 445, (1994)
329. [Sir98]
GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum cascade lasers
 C. Sirtori, P. Kruck, S. Barbieri, P. Collot, J. Nagle, M. Beck, J. Faist, et U. Oesterle,
 Appl. Phys. Lett. **73**, 3486 (1998)
330. [Ski06]
Growth and characterization of AlInN/GaN quantum wells for high-speed intersubband devices at telecommunication wavelengths
 C. Skierbiszewski, G. Cywiński, M. Siekacz, A. Feduniewicz-Zmuda, L. Nevou, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, J. Smalc, P. Prystawko, M. Kryško, S. Grzanka, I. Grzegory, J. Z. Domagała, T. Remmele, M. Albrecht and S. Porowski
 Proc. SPIE **6121**, 612109 (2006)
331. [Sme23]
Zur Quantentheorie der Dispersion
 A. Smekal
 Naturwissenschaften, **11**, 873 (1923)
332. [Ste06]
A semiconductor source of triggered entangled photon pairs
 R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie and A. J. Shields,
 Nature **439**, 179 (2006)
333. [Stra38]
Zur theorie der orientierten ausscheidung von ionen-kristallen aufeinander
 I. N. Stranski, V. L. Krastanow
 Ber. Akad. Wiss. Wien, Math-Naturwiss. Kl., Abt. Iib **146**, 797 (1938)
334. [Str06]
Self-tuned quantum dot gain in photonic crystal lasers
 S. Strauf, K. Hennessy, M. T. Rakher, Y.-S. Choi, A. Badolato, L. C. Andreani, E. L. Hu, P. M. Petroff, and D. Bouwmeester
 Phys. Rev. Lett. **96**, 127404 (2006)
335. [Sun05]
Nonlinear all-optical GaN/AlGaIn multi-quantum-well devices for 100 Gb/s applications at $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$
 Greg Suna, Jacob B. Khurgin, Richard A. Soref

Appl. Phys. Lett. **87**, 201108 (2005)

336. [Suz97]

Feasibility Study on Ultrafast Nonlinear Optical Properties of 1.55- μm Intersubband Transition in AlGaIn/GaN Quantum Wells

N. Suzuki, et N. Iizuka,

Jpn. J. Appl. Phys., **36**, L1006 (1997)

337. [Suz98]

Electron Scattering Rates in AlGaIn/GaN Quantum Wells for 1.55- μm Inter-Subband Transition

N. Suzuki, et N. Iizuka,

Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L369 (1998)

338. [Suz99]

Effect of Polarization Field on Intersubband Transition in AlGaIn/GaN Quantum Wells

N. Suzuki et N. Iizuka,

Jpn. J. Appl. Phys. **38**, L363 (1999)

T

339. [Tal01]

Cw and time-resolved spectroscopy in homoepitaxial GaN films and GaN-GaN quantum wells grown by molecular beam epitaxy

T. Taliercio, M. Gallart, P. Lefebvre, A. Morel, B. Gil, J. Allègre, N. Grandjean, J. Massies, I. Grzegory, S. Porowski

Solid State Communications, **117**, 445 (2001)

340. [Tch05a]

Physique des transitions intersousbandes des hétérostructures de GaN/AlN pour l'optoélectronique à $\lambda=1.3-1.55 \mu\text{m}$

M. Tchernycheva

Thèse de doctorat, Université Paris Sud (2005)

341. [Tch05b]

Intraband absorption of doped GaN/AlN quantum dots at telecommunication wavelengths

M. Tchernycheva, L. Nevou, L. Doyennette, A. Helman, R. Colombelli, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Shibata, M. Tanaka

Appl. Phys. Lett. **87**, 101912 (2005)

342. [Tch06a]

Systematic experimental and theoretical investigation of intersubband absorption

M. Tchernycheva, L. Nevou, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Warde, F. Guillot, E. Monroy, E. Bellet-Amalric, T. Remmele M. Albrecht

Phys. Rev. B., **73**, 125347, (2006)

343. [Tch06b]

Electron confinement in strongly coupled GaN/AlN quantum wells

M. Tchernycheva, L. Nevou, L. Doyennette, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht

Appl. Phys. Lett. **88**, 153113 (2006)

344. [Tem81]

Semiclassical theory of resonant three-wave parametric interactions : Second-harmonic generation

T. A. DeTemple, L. A. Bahler, J. Osmundsen

Phys. Rev. A., **24**, 1950, (1981)

345. [Tie28]

Ueber phosphorencenzfaehiges, durch Silicium aktiviertes Aluminiumnitrid.

E. Tiede, M. Thimann, and K. Senses.

Chemische Berichte, **61**,1568, (1928)

346. [Tor04a]

Exaltation de la Génération de Second Harmonique dans les Cristaux Photoniques à Base de Nitrures

J. Torres

Thèse de doctorat, Université de Montpellier II (2004)

347. [Tor04b]

Giant second-harmonic generation in a one-dimensional GaN photonic crystal

J. Torres, D. Coquillat, R. Legros, J. P. Lascaray, F. Teppe, D. Scalbert, D. Peyrade, Y. Chen, O. Briot, M. Le Vassor d'Yerville, E. Centeno,

D. Cassagne, and J. P. Albert

Phys. Rev. B., **69**, 085105, (2004)

V

348. [Van70]
Electronic Structures of Semiconductor Alloys
J. A. Van Vechten, et T. K. Bergstresser,
Phys. Rev. B **1**, 3351 (1970)
349. [Var06]
Room temperature demonstration of GaN/AlN quantum dot intraband infrared photodetector at fiber-optics communication wavelength
A. Vardi, N. Akopian, G. Bahir, L. Doyennette, M. Tchernycheva, L. Nevou, F. H. Julien, F. Guillot, and E. Monroy
Appl. Phys. Lett. **88**, 143101 (2006)
350. [Var08]
Near infrared quantum cascade detector in GaN/AlGaIn/AlN heterostructures
A. Vardi, G. Bahir, F. Guillot, C. Bougerol, E. Monroy, S. E. Schacham, M. Tchernycheva, and F. H. Julien
Appl. Phys. Lett. **92**, 011112 (2008)
351. [Vodj91]
Tunneling assisted modulation of the intersubband absorption in double quantum wells
N. Vodjdani, B. Vinter, V. Berger, E. Bdckenhoff, and E. Costard
Appl. Phys. Lett. **59**, 555 (1991)
352. [Vodo96]
Two-color midinfrared saturation spectroscopy of intersubband transitions in multi-quantum wells
K. L. Vodopyanov, V. Chazapis, and C. C. Phillips
Appl. Phys. Lett. **69**, 3405 (1996)
353. [Vodo97]
Intersubband absorption saturation study of narrow III - V multiple quantum wells in the $\lambda=2.8-9 \mu\text{m}$ spectral range
K L Vodopyanov, V Chazapis, C C Phillips, B Sung and J S Harris Jr
Semicond. Sci. Technol. **12**, 708 (1997)
354. [Vodo98]
Phase-matched second harmonic generation in asymmetric double quantum wells
K. L. Vodopyanov, K. O'Neill, G. B. Serapiglia, C. C. Phillips, M. Hopkinson, I. Vurgaftman, J. R. Meyer
Appl. Phys. Lett., **72**, 1597, (1998)
355. [Vol26]
Nucleus formation in supersaturated systems
M. Volmer, et A. Weber,
Z. Phys. Chem. **119**, 277 (1926)
356. [Vur01]
Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys
I. Vurgaftman, J. R. Meyer, et L. R. Ram-Mohan,
J. Appl. Phys. **89**, 5815 (2001)
357. [Vur03]
Band parameters for nitrogen-containing semiconductors
I. Vurgaftman, et J. R. Meyer,
J. Appl. Phys. **94**, 3675 (2003)

W

358. [Wag00]
Phonon deformation potentials of alpha-GaN and -AlN: An ab initio calculation
J.-M. Wagner and F. Bechstedt
Appl. Phys. Lett. **77**, 346 (2000)
359. [Wag02]
Properties of strained wurtzite GaN and AlN: Ab initio studies
J.-M. Wagner, et F. Bechstedt,
Phys. Rev. B **66**, 115202 (2002)
360. [Wan96]
Design and Performance Optimization of Optically-Pumped Mid-Infrared Intersubband Semiconductor Lasers
Jin Wang, J.-P. Leburton, F. H. Julien, and A. Sa'ar
IEEE Photonics Technology Letters, **8**, 1001 (1996)

361. [Wan05]
Optical Phonon Sidebands of Electronic Intersubband Absorption in Strongly Polar Semiconductor Heterostructures
Z. Wang, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, D. Hofstetter, J. Hwang, W. J. Schaff, and L. F. Eastman
Phys. Rev. Lett., **94**, 037403 (2005)
362. [Wan06]
Ultrafast hole burning in intersubband absorption lines of GaN/AlN superlattices
Z. Wang, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, D. Hofstetter, E. Baumann, and F. R. Giorgetta, H. Wu, W. J. Schaff, and L. F. Eastman
Appl. Phys. Lett. **89**, 151103 (2006)
363. [Wes85]
First observation of an extremely large-dipole infrared transition within the conduction band of a GaAs quantum well
L. C. West, S. J. Eglash,
Appl. Phys. Lett., **46**, 1156 (1985)
364. [Wid98]
Growth kinetics and optical properties of self-organized GaN quantum dots
F. Widmann, B. Daudin, G. Feuillet, Y. Samson, J. L. Rouvière, et N. Pelekanos,
J. Appl. Phys. **83**, 7618 (1998)
365. [Woo62]
Ruby laser operation in the near IR
E. J. Woodbury and W. K. Ng
Proc. IRE **50**, 2347 (1962)
- ## X
366. [Xie91]
Optical second-order susceptibility of GaAs/Al_xGa_{1-x}As asymmetric coupled-quantum-well structures in the exciton region
Y. L. Xie, Z. H. Chen, D. F. Cui, S. H. Pan, D. Q. Deng, Y. L. Zhou, H. B. Lu, Y. Huang, S. M. Feng, G. Z. Yang
Phys. Rev. B., **43**, 12477, (1991)
- ## Y
367. [Yan90]
Laser diode modulation of 10.6 μm radiation in GaAs/AlGaAs quantum wells
D. D. Yang, P. Boucaud, F. H. Julien, L. Chusseau, J-M. Lourtioz, R. Planel
Electron. Lett., **26**, 1531 (1990)
368. [Yan06]
Resonantly enhanced femtosecond second-harmonic generation and nonlinear luminescence in GaN film grown on sapphire
Hui Yang, S. J. Xu, Q. Li
Appl. Phys. Lett., **88**, 161113, (2006)
369. [Yim73]
Epitaxially grown AlN and its optical band gap
W. M. Yim, E. J. Stofko, P. J. Zanzucchi, J. I. Pankove, M. Ettenberg, et S. L. Gilbert,
J. Appl. Phys. **44**, 292 (1973).
370. [Yos83]
Improvements on the electrical and luminescent properties of reactive molecular beam epitaxially grown GaN films by using AlN-coated sapphire substrates
S. Yoshida, S. Misawa, et S. Gonda
Appl. Phys. Lett. **42**, 427 (1983)
371. [Yua02]
Electrically Driven Single-Photon Source
Z. Yuang, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, et M. Pepper,
Science, **295**, 102 (2002)
372. [Yuh87]
Novel infrared band-aligned superlattice laser
Perng-fei Yuh and K. L. Wang
Appl. Phys. Lett. **51**, 1404 (1987)

Publications

1. **L. Nevou**, F.H. Julien, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Monroy, E. Sarigiannidou, *Intraband emission at $\lambda \approx 1.48 \mu\text{m}$ from GaN/AlN quantum dots at room temperature*, Appl. Phys. Lett. **92**, 161105 (2008).
2. **L. Nevou**, N. Kheirodin, M. Tchernycheva, L. Meignien, P. Crozat, A. Lupu, E. Warde, F. H. Julien, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele and M. Albrecht, *Short-wavelength intersubband electro-absorption modulation based on electron tunneling between GaN/AlN coupled quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **90**, 223511 (2007).
3. **L. Nevou**, M. Tchernycheva, F.H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, *Short wavelength ($\lambda=2.13 \mu\text{m}$) intersubband luminescence from GaN/AlN quantum wells at room temperature*, Appl. Phys. Lett. **90**, 121106 (2007).
4. **L. Nevou**, F. H. Julien, R. Colombelli, F. Guillot, E. Monroy, *Room-temperature intersubband emission of GaN/AlN quantum wells at $\lambda=2.3\mu\text{m}$* , Electron. Lett. **42**, 1308 (2006).
5. **L. Nevou**, M. Tchernycheva, F. H. Julien, M. Raybaut, A. Godard, E. Rosencher, F. Guillot, E. Monroy, *Intersubband resonant enhancement of second-harmonic generation in GaN/AlN quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **89**, 151101 (2006).
6. N. Kheirodin, **L. Nevou**, H. Machhadani, P. Crozat, L. Vivien, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. H. Julien, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, and E. Monroy, *Electro-Optical Modulator at Telecommunication Wavelengths Based on GaN/AlN Coupled Quantum Wells*, IEEE Photon. Technol. Lett., **20**, 724 (2008).
7. M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Warde, F. Guillot, E. Monroy, E. Bellet-Amalric, T. Remmele, M. Albrecht, *Systematic experimental and theoretical investigation of intersubband absorption in GaN/AlN quantum wells*, Phys. Rev. B **73**, 125347 (2006).
8. M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *Electron confinement in strongly coupled GaN/AlN quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **88**, 153113 (2006).
9. L. Doyennette, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. Guillot, E. Monroy, R. Colombelli, F. H. Julien, *GaN-based Quantum Dot Infrared Photodetector operating at $1.38 \mu\text{m}$* , Electron. Lett. **41**, 1077 (2005).
10. M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, A. Helman, R. Colombelli, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Shibata, M. Tanaka, *Intraband absorption of doped GaN/AlN quantum dots at telecommunication wavelengths*, Appl. Phys. Lett. **87**, 101912 (2005).

11. S. Valdueza-Felip, F.B. Naranjo, M. González-Herráez, H. Fernández, J. Solis, F. Guillot, E. Monroy, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, and F. H. Julien. *Characterization of the resonant third-order nonlinear susceptibility of Si-doped GaN/AlN quantum wells and quantum dots at 1.5 μm* . IEEE Photon. Technol. Lett., (in print May 2008).
12. E. Monroy, F. Guillot, S. Leconte, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, and F. H. Julien, E. Baumann, F. R. Giorgetta, and D. Hofstetter, *Latest developments in GaN-based quantum devices for infrared optoelectronics*, Journal of Materials Science : Materials in Electronics (Published online: 5 December 2007).
13. M. Tchernycheva, C. Sartel, G. Cirlin, L. Travers, G. Patriarche, J-C. Harmand, Le Si Dang, J. Renard, B. Gayral, **L. Nevou** and F. Julien, *Growth of GaN free-standing nanowires by plasma-assisted molecular beam epitaxy: structural and optical characterization*, Nanotechnology **18**, 385306 (2007).
14. S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, N. Grandjean, **L. Nevou**, F. H. Julien, M. Schmidbauer, T. Remmele, M. Albrecht, *Strain-induced interface instability in GaN/AlN multiple quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **91**, 061927 (2007).
15. F. Guillot, E. Bellet-Amalric, E. Monroy, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, Le Si Dang, T. Remmele, M. Albrecht, T. Shibata, M. Tanaka, *Si-doped GaN/AlN quantum dot superlattices for optoelectronics at telecommunication wavelengths*, J. Appl. Phys. **100**, 044326 (2006).
16. G. Cywiński, C. Skierbiszewski, A. Feduniewicz, M. Siekacz, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, P. Prystawko, M. Kryško, S. Grzanka, I. Grzegory, A. Presz, J. Z. Domagała and S. Porowski *Growth of thin AlInN/GaInN quantum wells for applications to high-speed intersubband devices at telecommunication wavelengths*, J. Vac. Sci. Technol. **B 24** (3), p.1505, (2006).
17. S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, M. Mosca, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, F. H. Julien, M. Ilegems, and N. Grandjean, *Indium surfactant effect on AlN/GaN heterostructures grown by metal-organics vapour phase epitaxy: applications to intersubband transitions*, Appl. Phys. Lett. **88**, 151902 (2006).
18. A. Vardi, N. Akopian, G. Bahir, L. Doyennette, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, *Room temperature demonstration of GaN/AlN quantum dot intraband infrared photodetector at fiber-optics communication wavelength*, Appl. Phys. Lett. **88**, 143101 (2006).
19. S. Nicolay, J.-F. Carlin, E. Feltin, R. Butté, M. Mosca, N. Grandjean, M. Ilegems, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, and F. H. Julien, *Mid-infrared intersubband absorption in lattice-matched AlInN/GaN multiple-quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **87**, 111106 (2005).

Actes de colloques avec comité de lecture :

1. **L. Nevou**, F. H. Julien, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Sarigiannidou, E. Monroy, *Near-infrared intersubband emission from GaN/AlN quantum dots and quantum wells*, Physica Status Solidi (c) **5**, 2120-2122 (2008)
2. N. Kheirodin, **L. Nevou**, H. Machhadani, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. H. Julien, P. Crozat, L. Meignien, E. Warde, L. Vivien, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *Electro-optical intersubband modulators at telecommunication wavelengths based on GaN/AlN quantum wells*, Physica Status Solidi (a) **5**, 1093-1095 (2008)
3. M. Tchernycheva, C. Sartel, G. Cirlin, L. Travers, G. Patriarche, L. Largeau, O. Mauguin, J.-C. Harmand, Le Si Dang, J. Renard, B. Gayral, **L. Nevou**, F. Julien, *GaN/AlN free-standing nanowires grown by molecular beam epitaxy*, Physica Status Solidi (c) **5**, 1556-1558 (2008)
4. R. Kudrawiec, M. Motyka, G. Cywinski, M. Siekacz, C. Skierbiszewski, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, J. Misiewicz, *Contactless electroreflectance spectroscopy of inter- and intersub-band transitions in AlInN/GaInN quantum wells*, Physica Status Solidi (c) **5**, 503 (2008)
5. **L. Nevou**, M. Raybaut, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Monroy, F. Julien, A. Godard, and E. Rosencher, *Intersubband resonant enhancement of second-harmonic generation in GaN/AlN quantum wells*, AIP Conf. Proc. **893**, 483 (2007)
6. Francois H. Julien, Fabien Guillot, Maria Tchernycheva, Laetitia Doyennette, **Laurent Nevou**, Alon Vardi, Eva Monroy, Gad Bahir, Anatole Lupu, Elias Warde, and Edith Bellet-Amalric, *GaN/AlN Quantum Wells and Quantum Dots for Unipolar Devices at Telecommunication Wavelengths*, AIP Conf. Proc. **893**, 525 (2007)
7. F. H. Julien, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, R. Colombelli, E. Warde, F. Guillot, E. Monroy, *Nitride intersubband devices: prospects and recent developments*, Physica Status Solidi (a) **204**, pp.1987–1995 (2007)
8. M. Mosca, S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, R. Butté, M. Ilegems, N. Grandjean, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, and F. H. Julien, *Nitride-based heterostructures grown by MOCVD for near- and mid-infrared intersubband transitions*, Physica Status Solidi (a) **204**, pp.1100–1104 (2007)
9. M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, A. Lupu, E. Warde, F. Guillot, E. Monroy, A. Vardi, G. Bahir, *Unipolar optoelectronics using group III-nitride quantum wells and quantum dots* Proc. of Nanostructures : Ioffe Institute 2006, p 234-235.
10. L. Doyennette, A. Vardi, F. Guillot, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, R. Colombelli, G. Bahir, E. Monroy, F. H. Julien, *GaN/AlN quantum dot photodetectors at 1.3-1.5 μm* , Superlattices and Microstructures Vol **40**, Issues 4-6, p. 262-267 (Oct 2006).
11. **L. Nevou**, M. Tchernycheva, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Warde, R. Colombelli, F. Guillot, S. Leconte, E. Monroy, T. Remmele, and M. Albrecht, *New developments for nitride*

- unipolar devices at 1.3-1.5 μm wavelengths*, Superlattices and Microstructures Vol **40**, Issues 4-6, p. 412-417 (Oct 2006).
12. F. Guillot, B. Amstatt, E. Bellet-Amalric, E. Monroy, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, Le Si Dang, *Effect of Si doping on GaN/AlN multiple-quantum-well structures for intersubband optoelectronics at telecommunication wavelengths*, Superlattices and Microstructures Vol **40**, Issues 4-6, p. 306-312 (Oct 2006).
 13. L. Doyennette, A. Vardi, F. Guillot, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, R. Colombelli, G. Bahir, E. Monroy, F. H. Julien, *Intraband photodetection at 1.3-1.5 μm in self-organized GaN/AlN quantum dots*, phys. stat. sol. (b), **243**, No. 15, 3993–3997 (2006)
 14. E. Monroy, F. Guillot, S. Leconte, E. Bellet-Amalric, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, L. Doyennette, F. H. Julien, T. Remmele, and M. Albrecht, *MBE growth of nitride-based photovoltaic intersubband detectors*, Superlattices and Microstructures, Vol **40**, Issues 4-6, p. 418-425 (Oct 2006).
 15. F. Guillot, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, E. Monroy, F. H. Julien, Le Si Dang, T. Rammele, M. Albrecht, T. Shibata, M. Tanaka, *Si-doped GaN/AlN quantum dot superlattices for optoelectronics at telecommunication wavelengths*, Physica Status Solidi (a) **203**, pp.1754–1758 (2006)
 16. M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele and M. Albrecht, *Optical and theoretical study of strong electron coupling in double GaN/AlN quantum wells*, Physica status solidi (b) **243**, pp. 1630-1633 (June 2006)
 17. C. Skierbiszewski, G. Cywiński, M. Siekacz, A. Feduniewicz, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, J. Smalc, P. Prystawko, M. Kryśko, S. Grzanka, I. Grzegory, J. Z. Domagała, T. Remmele, M. Albrecht and S. Porowski – *Growth and characterization of AlInN/GaN quantum wells for highspeed intersubband devices at telecommunication wavelengths*, Gallium Nitride Materials and Devices, edited by Cole W. Litton James G. Grote, Hadis Morkoc, Anupam Madhukar, Proc. of SPIE, Vol. **6121**, 612109 (2006)
 18. G. Cywiński, C. Skierbiszewski, A. Feduniewicz-Żmuda, **L. Nevou**, L. Doyennette, F.H. Julien, P. Prystawko, M. Kryśko, S. Grzanka, I. Grzegory and S. Porowski, *Crack Free GaInN/AlInN Multiple Quantum Wells Grown on GaN with Strong Intersubband Absorption at 1.55 μm* , Acta Physica Polonica A, vol. **110**, 175, (2006)
 19. E. Monroy, F. Guillot, S. Leconte, E. Bellet-Amalric, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F.H. Julien, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, Le Si Dang, *III-Nitride Nanostructures for Infrared Optoelectronics*, Acta Physica Polonica A **110**, pp.295-302 (2006)

Conférences:

1. (Oral) **L. Nevou**, F. H. Julien, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Monroy, *Near-infrared intersubband emission from GaN/AlN quantum dots and quantum wells*, 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS7) Las Vegas, USA, Sept. 2007
2. (Oral) N. Kheirodin, **L. Nevou**, H. Machhadani, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. H. Julien, P. Crozat, L. Meignien, E. Warde, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *Electro-optical intersubband modulator based on electron tunneling between GaN/AlN coupled quantum wells*, 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS7) Las Vegas, USA, Sept. 2007
3. (Oral) M. Tchernycheva, C. Sarteel, G. Cirlin, L. Travers, G. Patriarche, L. Largeau, O. Mauguin, J.-C. Harmand, Le Si Dang, J. Renard, B. Gayral, **L. Nevou** and F. Julien, *GaN free-standing nanowires by plasma-assisted molecular beam epitaxy: growth, structural and optical properties*, 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS7) Las Vegas, USA, Sept. 2007
4. (Oral) S. Nicolay, E. Feltin, J.F. Carlin, **L. Nevou**, F.H. Julien, N. Grandjean, *Interface instability in GaN/AlN multiple quantum wells*, 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS7) Las Vegas, USA, Sept. 2007
5. (Oral) Sylvain Nicolay, Amélie Dussaigne, **Laurent Nevou**, François. H. Julien, Nicolas Grandjean, *Telecom Range Intersubband Transitions in GaN/AlN Multiple Quantum Wells Grown by Ammonia Molecular Beam Epitaxy*, 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS7) Las Vegas, USA, Sept. 2007
6. (Poster) Eva Monroy; Fabien Guillot; Esther Baumann; Fabrizio Giorgetta; Daniel Hofstetter; **Laurent Nevou**; Maria Tchernycheva; Francois Julien; Thilo Remmele; Martin Albrecht, *High-Speed Al(Ga)N/GaN-Based Intersubband Photodetectors at Telecommunication Wavelengths*, 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS7) Las Vegas, USA, Sept. 2007
7. (Poster) **L. Nevou**, M. Raybaut, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Monroy, F. Julien, A. Godard, E. Rosencher, *Second-harmonic generation of $\lambda \sim 1 \mu\text{m}$ enhanced by intersubband transitions of GaN/AlN quantum wells*, 9th International Conference on Intersubband Transitions in Quantum Well (ITQW'07), Ambleside, U. K. Sept. 2007
8. (Oral) **L. Nevou**, F. H. Julien, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Monroy, *Intraband emission at $\lambda = 1.5 \mu\text{m}$ of GaN quantum dots at $\lambda = 1.5 \mu\text{m}$ via resonant Raman scattering*, 9th International Conference on Intersubband Transitions in Quantum Well (ITQW'07), Ambleside, U. K. Sept. 2007
9. (Oral) **L. Nevou**, F. H. Julien, M. Tchernycheva, F. Guillot, and E. Monroy, *Room-temperature Intersubband Emission from GaN/AlN Quantum Wells at $\lambda \sim 2 \mu\text{m}$* , 9th International Conference on Intersubband Transitions in Quantum Well (ITQW'07), Ambleside, U. K. Sept. 2007
10. (Oral) N. Kheirodin, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, F. H. Julien, A. Lupu, P. Crozat, L. Meignien, E. Warde, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *Intersubband spectroscopy of electron tunneling in GaN/AlN coupled quantum wells*, 9th International Conference on Intersubband Transitions in Quantum Well (ITQW'07), Ambleside, U. K. Sept. 2007
11. Paraire N., Benachour Y., **Nevou L.**, *Observation of Band Structure and Reduced Group Velocity Area in SOI 2D Planar Photonic Crystals*, OSA Slow and Fast Light Topical Meeting, Salt Lake City, USA, July 2007
12. (Oral invited) **L. Nevou**, F. H. Julien, M. Tchernycheva, F. Guillot, and E. Monroy, *Room-temperature Intersubband luminescence at 2.1-2.3 μm from GaN/AlN Quantum Wells*, Conference on Mid-Infrared Optoelectronics : Materials and Devices (MIOMD-VIII) Bad Ischl, Austria, May 2007
13. (Poster) N. Kheirodin, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, F. H. Julien, P. Crozat, L. Meignien, E. Warde, G. Pozzovivo, S. Golka, G. Strasser, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *Electro-optical intersubband modulator based on electron tunneling between GaN/AlN coupled quantum wells*, Conference on Mid-Infrared Optoelectronics : Materials and Devices (MIOMD-VIII) Bad Ischl, Austria, May 2007
14. (Oral invited) F. H. Julien, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, R. Colombelli, E. Warde, F. Guillot, E. Monroy, *Nitride intersubband devices: prospects and recent developments*, International Workshop on Nitride Semiconductors IWN 2006, Kyoto, Japan (Oct 2006)
15. (Oral) S. Nicolay, E. Feltin, J.F. Carlin, N. Grandjean, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F.H Julien, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, *MOVPE growth of nitride based heterostructures for ISBT*, International Workshop on Nitride Semiconductors IWN 2006, Kyoto, Japan (Oct 2006)
16. (Oral) Doyennette L., Lupu A., **Nevou L.**, Tchernycheva M., Colombelli R., Julien F. H., Vardi A., Bahir G., Guillot F., Monroy E., *GaN/AlN quantum dot intraband photodetectors at 1.3-1.5 microns*, 3rd International Conference on Materials Science and Condensed Matter Physics, Chisinau, Moldavie, October 2006
17. (Oral) Nicolay S., Carlin J., Feltin E., Grandjean N., **Nevou L.**, Julien F., Baumann E., Giorgetta F., Hofstetter D., *MOVPE growth of Nitride Based Heterostructures for Intersubband Transitions*, European Workshop on III-Nitride Semiconductor Materials and Devices, Heraklion, Grece. September 2006
18. (Oral) M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, A. Lupu, R. Colombelli, E. Warde, F. H. Julien, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, F. Guillot, S. Leconte, E. Sarigiannidou, E. Bel let-Amalric, E. Monroy, S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, M. Mosca, N. Grandjean, G. Cywinski, C. Skierbiszewski, I. Grzegory, A. Feduniewicz, M. Siekacz, M. Krysko, P. Perlin, M. Leszczynski, S. Porowski, S. Golka, C. Pflügl, W. Schrenk, G. Strasser, T. Remmele, M. Albrecht, Le Si Dang, *Nitride Intersubband Devices at Telecommunication Wavelengths*:

an overview of the NITWAVE project achievements, European Workshop on III-Nitride Semiconductor Materials and Devices, Heraklion, Grece. September 2006

19. (Oral) E. Monroy, F. Guillot, S. Leconte, E. Sarigiannidou, E. Bellet-Amalric, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F.H. Julien, E. Baumann, F.R. Giorgetta, and D. Hofstetter, *III-nitride nanostructures for Intersubband Optoelectronics*, European Workshop on III-Nitride Semiconductor Materials and Devices, Heraklion, Grece. September 2006
20. (Poster) F. Guillot, E. Bellet-Amalric, E. Monroy, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Baumann, F. Giorgetta, and D. Hofstetter, *GaN/AlN nanostructures for intersubband optoelectronics at telecommunication wavelengths*, TNT2006 "Trends in Nanotechnology", Grenoble, France. September 2006
21. S. Nicolay, E. Feltin, J.F. Carlin, N. Grandjean, M.Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F.H Julien, E.Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, "*MOVPE growth of nitride based heterostructures for intersubband transitions*", Summer School & Topical Meeting on Wide Bandgap Semiconductor Quantum Structures, Monte Verità, Switzerland, 27.8–1.9.2006
22. (Oral) S. Nicolay, F. Morier-Genoud, E. Feltin, N. Grandjean, Y.Cordier, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, and F.H. Julien, *GaN/AlN multiple quantum wells grown by ammonia molecular beam epitaxy for intersubband transition applications*, MBE 2006, Tokyo, September 2006
23. E. Monroy, F. Guillot, S. Leconte, E. Bellet-Amalric, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, L. Doyennette, F. H. Julien, T. Remmele, and M. Albrecht, *MBE growth of nitride-based photovoltaic intersubband detectors*, Fall Meeting of the European Materials Research Society, Warsaw, Poland, September 3-8, 2006
24. (Oral) F. H. Julien, F. Guillot, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, E. Monroy, A. Vardi, G. Bahir, A. Lupu, E. Warde, E. Bellet-Amalric, *GaN/AlN multiple-quantum-well structures for intersubband optoelectronics at telecommunication wavelengths*, 28th International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS'2006), Vienna, Austria, July 24-28, 2006
25. (Poster) **L. Nevou**, M. Raybaut, M. Tchernycheva, F. Guillot, E. Monroy, F. Julien, A.Godard, E. Rosencher, *Resonant second-harmonic generation in GaN/AlN quantum wells at 1 μm wavelength*, 28th International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS'2006), Vienna, Austria, July 24-28, 2006
26. Tchernycheva M., **Nevou L.**, Doyennette L., Julien F. H., Lupu A., Warde E., Guillot F., Monroy E., Vardi A., Bahir G., *Unipolar optoelectronics using group III-nitride quantum wells and quantum dots*, 14th International Symposium NANOSTRUCTURES: Physics and Technology, St Petersburg, Russia, 26-30 June 2006
27. G. Cywiński, C. Skierbiszewski, A. Feduniewicz-Żmuda, M. Siekacz, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, P. Prystawko, M. Kryško, S. Grzanka, I. Grzegory and S. Porowski, *Crack Free GaInN/AlInN MQWs Grown on GaN with Strong Intersubband Absorption at 1.55 μm*, XXXV International School on the Physics of Semiconducting Compounds "Jaszowiec 2006", Ustroń-Jaszowiec (June 17 - 23, 2006)
28. (Oral invited) C. Skierbiszewski, G. Cywiński, M. Siekacz, A. Feduniewicz, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, J. Smalc, P. Prystawko, M. Kryško, S.Grzanka, I. Grzegory, J. Z. Domagała, T. Remmele, M. Albrecht and S. Porowski, *Growth and characterization of AlInN/GaN quantum wells for highspeed intersubband devices at telecommunication wavelengths*, Photonics West (2006)
29. (Oral) **L. Nevou**, M. Tchernycheva, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Warde, R. Colombelli, F. Guillot, S. Leconte, E. Monroy, S. Nicolay, E. Feltin, J.F Carlin, N. Grandjean, T. Remmele, M. Albrecht, *New developments for nitride unipolar devices at 1.3-1.5 μm wavelengths*, E-MRS Spring Meeting 2006, Nice, France, May 2006
30. (Oral) L. Doyennette, A. Vardi, F. Guillot, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, R. Colombelli, G. Bahir, E. Monroy, F. H. Julien, *GaN/AlN quantum dot photodetectors at 1.3-1.5 μm*, E-MRS Spring Meeting 2006, Nice, France, May 2006
31. (Oral) F. Guillot, **L. Nevou**, L. Doyennette, E. Bellet-Amalric, F. Julien, E. Monroy, *Effect of Si dopant position in GaN/AlN superlattices for intersubband optoelectronics at telecommunication wavelengths*, E-MRS Spring Meeting 2006, Nice, France, May 2006
32. (Oral) E. Monroy, F. Guillot, S. Leconte, E. Bellet-Amalric, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, L. Doyennette, F. H. Julien, *MBE growth of nitride-based photovoltaic intersubband detectors*, E-MRS Spring Meeting 2006, Nice, France, May 2006
33. (Poster) F. Guillot, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, E. Bellet-Amalric, E. Monroy, F. H. Julien, Le Si Dang, T. Shibata, M. Tanaka, *GaN/AlN quantum dot superlattices for intersubband devices in the near infrared*, 4th International Conference on Quantum Dots, Chamonix-Mont Blanc, France, May 2006
34. (Poster) L. Doyennette, A. Vardi, F. Guillot, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, R. Colombelli, G. Bahir, E. Monroy, F. H. Julien, *Intraband photodetection at 1.3-1.5 μm in self-organized GaN/AlN quantum dots*, 4th International Conference on Quantum Dots, Chamonix-Mont Blanc, France, May 2006
35. (Oral invited) E. Monroy, F. Guillot, E. Bellet-Amalric, M. Tchernycheva, L. Doyennette, **L. Nevou**, F. H. Julien, Le Si Dang, E. Baumann, F. Giorgetta, D. Hofstetter, *III-Nitride Based Heterostructures for Infrared Optoelectronics*, International Workshop on Heterostructure Technology (HETECH'05), Smolenice, Slovakia. October 2005
36. G. Cywiński, C. Skierbiszewski, A. Feduniewicz, M. Siekacz, **L. Nevou**, L. Doyennette, M. Tchernycheva, F. H. Julien, P. Prystawko, M. Kryško, S. Grzanka, I. Grzegory, A. Presz, J. Z. Domagała and S. Porowski, *Growth of thin AlInN/GaN quantum wells for applications to high-speed intersubband devices at telecommunication wavelengths*, 23rd North American Conference on Molecular Beam Epitaxy - NAMBE 2005.
37. S. Nicolay, J.-F. Carlin, E. Feltin, N. Grandjean, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F.H. Julien, *AlN/GaN quantum wells for intersubband transitions*, EPFL photonics days, Lausanne, September 2005.

38. (Poster) L. Doyennette, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, R. Colombelli, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *GaN/AlN quantum dot intraband photodetectors based on in-plane transport with peak wavelengths in the range 1.3-1.5 μm* , 8th Int. Conf. on Intersubband Transitions in Quantum Wells (ITQW), Cape Cod, USA, 11.-16.9.2005
39. (Oral) M. Tchernycheva, L. Doyennette, **L. Nevou**, F. H. Julien, E. Warde, R. Colombelli, A. Lusson, F. Guillot, E. Monroy, S. Nicolay, E. Feltin, N. Grandjean, T. Remmele, M. Albrecht, *Prospects for nitride unipolar devices at telecommunication wavelengths*, 8th Int. Conf. on Intersubband Transitions in Quantum Wells (ITQW), Cape Cod, USA, 11.-16.9.2005
40. (Oral) M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, R. Colombelli, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, Le Si Dang, T. Shibata, and M. Tanaka, *Intraband absorption of doped GaN/AlN quantum dots at telecommunication wavelengths*, 8th Int. Conf. on Intersubband Transitions in Quantum Wells (ITQW), Cape Cod, USA, 11.-16.9.2005
41. S. Nicolay, J.-F. Carlin, E. Feltin, M. Mosca, R. Butté, N. Grandjean, M. Ilegems, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, F.H. Julien, *AllInN based quantum wells for intersubband transitions*, Conf. Euro MOVPE, Lausanne (juin 2005)
42. (Oral) L. Doyennette, **L. Nevou**, M. Tchernycheva, A. Lupu, F. Guillot, E. Monroy, R. Colombelli, F. H. Julien, *GaN/AlN quantum dot intraband photodetector at telecommunication wavelengths*, 6th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS6), Bremen, Germany, August 2005
43. (Poster) M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, F. H. Julien, F. Guillot, E. Monroy, T. Remmele, M. Albrecht, *Optical and theoretical study of strong electron coupling in double GaN/AlN quantum wells*, 6th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS6), Bremen, Germany, August 2005
44. (Oral) S. Nicolay, J.-F. Carlin, E. Feltin, R. Butté, M. Mosca, N. Grandjean, M. Ilegems, M. Tchernycheva, **L. Nevou** and F.H. Julien, *AllInN/GaN quantum wells for intersubband transitions*, 6th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS6), Bremen, Germany, August 2005
45. (Oral) M. Mosca, S. Nicolay, E. Feltin, J.-F. Carlin, R. Butté, M. Ilegems, N. Grandjean, M. Tchernycheva, **L. Nevou** and F. H. Julien, *Nitride-based heterostructures grown by MOCVD for near- and mid-infrared intersubband transitions*, 6th International Symposium on Compound Semiconductors (ICNS6), Bremen, Germany, August 2005.
46. (Oral) F. Guillot, M. Tchernycheva, **L. Nevou**, L. Doyennette, E. Monroy, F. H. Julien, Le Si Dang, T. Rammele, M. Albrecht, T. Shibata, M. Tanaka, *Si-doped GaN/AlN quantum dot superlattices for optoelectronics at telecommunication wavelengths*, 6th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS6), Bremen, Germany, August 2005