



HAL
open science

Réalisation et étude de nanostructures de (Ga)InAs épitaxiées sur un substrat d'InP

Sylvain Pierre Claude Fréchengues

► **To cite this version:**

Sylvain Pierre Claude Fréchengues. Réalisation et étude de nanostructures de (Ga)InAs épitaxiées sur un substrat d'InP. Matière Condensée [cond-mat]. INSA RENNES, 1998. Français. NNT : . tel-02288228

HAL Id: tel-02288228

<https://theses.hal.science/tel-02288228>

Submitted on 14 Sep 2019

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

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

INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE RENNES

Année 1998

N° attribué par la bibliothèque

|||||

THESE

Pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'I.N.S.A. DE RENNES
Discipline : Physique et opto-électronique

Présentée et soutenue publiquement
par

Sylvain FRECHENGUES
Ingénieur INSA

le 27 novembre 1998

Titre:

**Réalisation et étude de nanostructures de (Ga)InAs
épitaxiées sur un substrat d'InP.**

Directeur de Thèse:
Bertrand LAMBERT

JURY

M. GENDRY	Chargé de recherche	Rapporteur
J.Y. MARZIN	Directeur de recherche	Rapporteur
V. DROUOT	Ingénieur Hewlett-Packard	Examinatrice
G. JEZEQUEL	Professeur	Examineur
A. PONCHET	Chargée de recherche	Examinatrice
B. LAMBERT	Professeur	Directeur de Thèse

A ma douce Anne,

A mes parents

Monsieur Michel Gendry, Chargé de recherche au LEAME-CNRS de l'Ecole Centrale de Lyon ainsi que Monsieur Jean-Yves Marzin, Directeur du laboratoire de microstructures et de microélectronique (L2M), ont accepté d'être les rapporteurs de ce travail. Je les en remercie pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette étude.

J'adresse également mes remerciements à Monsieur Guy Jezequel, Professeur à la faculté des sciences de Rennes et à Mademoiselle Anne Ponchet, Chargée de recherche au CEMES-CNRS à Toulouse, avec qui nous avons entretenu une collaboration étroite et fructueuse, pour leur participation à ce jury.

Pour mettre au point un programme de traitement d'images je me suis adressé au laboratoire ARTIST de l'INSA de Rennes. Olivier Déforges et Kidyo Kpalma ont réalisé ce programme et résolu les problèmes de conversion de fichiers. Je les remercie pour leur disponibilité et leur aide précieuse.

J'ai eu la chance d'effectuer ma thèse sous la direction de Monsieur Lambert, Directeur du laboratoire de physique et opto-électronique de l'INSA de Rennes. Il m'a accordé sa confiance, son soutien et une grande autonomie dans mes travaux de recherche et je l'en remercie.

Par sa disponibilité et sa patience, Virginie Drouot m'a apporté un soutien chaleureux et efficace tout au long de cette thèse et notamment au cours de la rédaction de ce manuscrit. Je tiens à lui exprimer toute ma gratitude. Toute ma reconnaissance va également à Nicolas Bertru, Hervé Folliot et Shinichi Hinooda pour leur aide et leur sympathie.

Je veux également remercier Monsieur Lemoine, qui a accompagné mes premiers pas en microscopie à force atomique, ainsi que Monsieur Loualiche. Cette thèse a démarré avec l'aide précieuse d'Alain Le Corre et d'Hélène L'Haridon, tous deux du CNET-Lannion B, qui ont fourni les premiers échantillons de cette étude et m'ont fait profiter de leurs idées originales. Je les en remercie.

Je ne saurais oublier Christine Picard qui m'a encouragé et soutenu au début de ma thèse, Jean-Claude Chabreyron pour les clivages d'échantillons et le maintien en forme, Yves Bouffort qui fait de si jolis dessins, Gérard Huet, Jean-Yves Morigneau et Jean-Yves Perreault. Merci encore à Françoise Thoumyre et Georges Doucelin pour leur aide en salle blanche. Merci aussi aux anciens thésards, Olivier Castaing et Olivier Rousière avec qui j'ai fait mes premiers pas en terre bretonne.

Je remercie également le centre des ressources informatiques de l'INSA et notamment Marcel Legavre, Alain Dalibot et Alain Raboutou pour leur aide, leur disponibilité et leur patience toutes les fois où je me suis adressé à eux.

Je voudrais enfin remercier l'ensemble du personnel du laboratoire pour son accueil et sa sympathie ainsi que toutes les personnes qui m'ont apporté leur soutien durant ces trois années.

SOMMAIRE

Introduction	1
Chapitre I: Dans quel but réaliser des îlots quantiques semiconducteurs?	7
1. Les îlots quantiques à base de semiconducteurs III-V.	7
2. Applications des îlots quantiques et cahier des charges.	10
2.1. Les boîtes quantiques à 0D pour diodes lasers.	10
2.2. Les îlots quantiques comme pièges à porteurs.	15
2.2.1. Dans la zone active d'un laser.	16
2.2.2. Dispositifs pour la commutation optique.	16
Chapitre II: Techniques expérimentales	23
1. L'épitaxie par jets moléculaires	23
2. La caractérisation in situ par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED).	26
2.1. Principe.	26
2.2. La reconstruction de la surface.	26
2.3. Croissance et morphologie des couches.	29
3. La photoluminescence continue.	30
4. La microscopie électronique en transmission	34
5. La microscopie à force atomique.	36
5.1. Principe de mesure.	36
5.2. Les différents modes d'observation.	38
5.3. Calibrations de l'appareil.	40
5.4. L'effet de la pointe.	43
5.5. Le traitement et l'analyse des images.	44

Chapitre III : îlots quantiques cohérents obtenus par épitaxie: état de l'art. _____ **49**

1. Modèle thermodynamique de croissance épitaxique.	50
2. La relaxation élastique dans le système (Ga)InAs/GaAs.	54
2.1. Epaisseur critique, couche de mouillage et densité des îlots.	54
2.2. Taille et forme des îlots.	54
2.3. Caractérisation optique.	55
2.4. Influence des conditions de croissance.	55
2.5. Substrats d'indice élevé.	56
3. Modèles et scénarios décrivant la relaxation élastique.	57
3.1. Modèle énergétique.	57
3.2. Nucléation d'îlots et nucléation de dislocations.	62
3.3. Evolution des îlots.	63
3.4. Limitation et distribution des tailles des îlots.	64
3.5. Conclusion.	67
4. Le système InAs/InP.	68

Chapitre IV: Etude des îlots quantiques InAs déposés sur substrat InP orienté (100). _____ **77**

1. La révélation d'îlots enterrés par attaque chimique sélective: une nouvelle méthode de caractérisation.	78
2. La relaxation élastique de InAs sur InP(001).	81
2.1. Conditions de croissance: figure 3.	81
2.2. Le processus de relaxation élastique.	81
3. Les îlots pour les photoréfractifs.	86
3.1. Epaisseur critique.	86
3.2. Observation des îlots sur substrat InP.	88
3.2.1. Îlots encapsulés.	88
3.2.2. Îlots non recouverts.	90
3.2.3. Effet du recouvrement des îlots.	92

3.3. Observation des îlots sur une couche tampon de Q1.18.	93
3.3.1 Résultats de microscopie à force atomique.	93
3.3.2 Influence de la température.	96
3.3.3 Effet d'une faible pression d'arsenic.	96
3.4. Influence de la couche tampon.	98
3.5. Corrélation des propriétés structurales et optiques d'îlots d'InAs.	100
3.6. Couches en compression de GaInAs.	104
3.6.1 Croissance à 500 °C.	105
3.6.2 Croissance à 540 °C.	109
4. Contrôler l'évolution des plateaux.	112
5. Discussion et conclusion du chapitre.	114
Chapitre V: îlots de (Ga)InAs sur substrat InP orienté (113)B.	121
1. L'épitaxie suivant l'orientation cristalline (113)B.	122
2. Les îlots d'InAs et de (Ga)InAs : comparaison (001)-(113)B.	123
2.1. Îlots d'InAs.	123
2.2. Couches de $GaxIn_{1-x}As$.	127
2.3. Conclusion.	132
3. Etude des îlots d'InAs.	133
3.1. Etude en fonction de l'épaisseur nominale déposée.	133
3.1.1. Observations par microscopie à force atomique d'îlots non recouverts.	133
3.1.2. Photoluminescence.	136
3.2. Influence des paramètres de croissance.	142
3.2.1. Interruption de croissance sous As_2 .	142
3.2.2. Interruption de croissance sous P_2 .	148
3.3. Synthèse des résultats.	151
4. Discussion.	152
Conclusion	159
Liste des publications	163

INTRODUCTION

La transmission de données par fibre optique à base de silice s'est répandue, depuis la fin des années 80, pour les communications longue distance et a pris le pas sur les liaisons radio par satellite^{Desurvire.97}. Elle permet de communiquer à des débits de plus en plus importants de 2.5 Gbit/s actuellement et bientôt 10 Gbit/s, grâce à des impulsions lumineuses injectées dans la fibre à la longueur d'onde de 1.55 μm pour laquelle l'atténuation est minimale. L'avènement des hauts débits nécessite le développement de nouveaux dispositifs de multiplexage qui consistent à transporter sur un même support physique (une même fibre) les signaux destinés à un grand nombre d'abonnés. Au départ le multiplexage était temporel, ce qui revient à superposer les informations des différents abonnés en les décalant légèrement dans le temps les uns par rapport aux autres. Actuellement, avec l'accroissement des débits, il est fréquentiel et consiste à envoyer plusieurs signaux de longueurs d'onde différentes (en anglais: Wavelength-Division Multiplexing). Ainsi plusieurs canaux autour de 1.55 μm sont utilisés simultanément.

La course vers les hauts débits nécessite de travailler en "tout optique", pour augmenter la fréquence de transmission des données. Il est donc nécessaire de développer des dispositifs de commutation pour le multiplexage en longueur d'onde^{P.A.98} ainsi que des diodes laser ayant un spectre d'émission élargi autour de 1.55 μm permettant d'injecter dans une fibre optique des signaux à différentes longueurs d'onde. Les diodes lasers actuelles émettant autour de 1.55 μm sont réalisées par croissance épitaxiale de GaInAsP et GaInAs sur substrats d'InP.

L'épitaxie est utilisée pour réaliser des structures semiconductrices faites par superposition de couches très minces de matériaux de compositions différentes. La croissance épitaxiale a d'abord été étudiée pour des couches en accord de maille, puis élargie aux couches contraintes, présentant un désaccord paramétrique avec le substrat. Dans ce dernier cas la croissance est bidimensionnelle jusqu'à une épaisseur critique au delà de laquelle la couche relaxe, généralement en créant des défauts tels que les dislocations. La relaxation des couches contraintes a été très étudiée, de nombreuses études ayant eu pour but de la retarder.

Pour pousser plus loin les performances des dispositifs électroniques et opto-électroniques et ouvrir de nouveaux champs d'application des composants semi-conducteurs, la réalisation de fils et boîtes quantiques est envisagée. Parmi les différentes voies explorées

pour la réalisation de telles structures, une des plus prometteuse est née d'observations faites sur des couches très contraintes réalisées par épitaxie^{Goldstein.85, Guha.90, Eaglesham.90}. En effet ces différentes équipes ont observé la réorganisation de ces couches minces contraintes, en îlots de petites dimensions exempts de défauts, ouvrant de nouvelles possibilités pour la réalisation de nanostructures par épitaxie. La relaxation élastique serait la force motrice de la formation de ces îlots, par opposition à la relaxation plastique qui se fait par introduction de défauts linéaires ou plans. L'étude de la croissance d'îlots d'InAs sur GaAs et leur utilisation dans des composants lasers sont très avancées. Les résultats récents sur les lasers à îlots sont très prometteurs^{Maximov.98}. Ils doivent permettre d'aller au delà des performances actuelles des lasers à puits quantiques, en abaissant le courant de seuil, en augmentant le gain différentiel et en diminuant la dépendance en fonction de la température. Cependant la filière GaAs ne permet pas d'atteindre la longueur d'onde de 1.55 μm , pourtant primordiale pour l'industrie des télécommunications. La réalisation de composants à îlots fonctionnant à 1.55 μm passe donc par la filière InP^{Regreny.97}. Les choses sont cependant moins avancées dans le contrôle de la formation d'îlots répondant aux exigences des applications laser.

L'objectif de cette étude est la réalisation d'îlots ou de fils de dimensions quantiques sur substrat InP, leurs propriétés électroniques et optiques devant répondre à un cahier des charges défini pour la réalisation d'un laser à 1.55 μm et de dispositifs opto-électroniques pour les télécommunications.

Nous réalisons et étudions des couches de (Ga)InAs fortement contraintes (2 à 3 % de désaccord paramétrique) sur substrat d'InP. La technique de croissance des couches est l'épitaxie par jets moléculaires à sources gazeuses. Nous étudions en particulier la relaxation élastique de ces couches ainsi que leurs propriétés optiques. L'effet des conditions de croissance épitaxique sur la morphologie et les propriétés des couches doit donc être étudié et exploité pour répondre à ces différents cahiers des charges. Il est dans ces conditions nécessaire de diversifier les moyens de caractérisation des couches de manière à déterminer leurs propriétés structurales et optiques, ainsi qu'à les corréler. La diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante a été utilisée comme caractérisation in situ de la surface au cours de l'épitaxie. L'analyse des propriétés structurales des îlots par microscopie à force atomique a été mise en œuvre au laboratoire: c'est une technique de caractérisation rapide et qui donne des informations statistiques sur les tailles et la répartition des îlots. La luminescence a été utilisée pour les propriétés optiques des couches. Nous avons travaillé en collaboration avec Anne Ponchet et Denis Lacombe du CEMES à Toulouse qui ont réalisé les

observations par microscopie électronique en transmission pour une description plus précise des îlots. En effet cette dernière technique est utilisée pour mesurer l'épaisseur et la morphologie des couches et renseigne aussi sur la présence de défauts.

Ce mémoire est organisé de la façon suivante:

Le premier chapitre introduit le sujet des îlots quantiques obtenus à partir de matériaux semiconducteurs III-V ainsi que leurs applications. Il donne le cahier des charges pour différentes applications envisagées: lasers et structures photoréfractives rapides, et présente l'avancement actuel des travaux sur les lasers à îlots quantiques.

Le deuxième chapitre est consacré à la description des techniques expérimentales de croissance et de caractérisation des structures qui ont été employées pour cette étude. Nous présentons d'abord l'épitaxie par jets moléculaires, et plus précisément le cas particulier d'un bâti utilisant des sources gazeuses pour les éléments V. Au cours de la croissance épitaxiale, la surface est caractérisée in situ par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante, dont le principe fait l'objet de la deuxième partie de ce chapitre. La troisième partie est consacrée à la photoluminescence, et à l'interprétation des spectres dans le cas de puits 2D, de fils 1D ou de boîtes 0D. Dans la quatrième partie nous présentons la technique de microscopie électronique en transmission. Enfin le principe et l'utilisation de la microscopie à force atomique pour l'observation des îlots sont développés dans la cinquième partie.

Le troisième chapitre présente les principaux résultats expérimentaux et théoriques qui ont permis de mieux comprendre les phénomènes qui gouvernent la croissance des îlots.

- ◆ Nous débutons par une présentation du modèle thermodynamique de Wulf qui permet de prévoir les trois modes de croissance épitaxiale observés expérimentalement.
- ◆ La deuxième partie est une revue des résultats expérimentaux concernant la relaxation élastique en îlots dans le système (Ga)InAs/GaAs, qui a été le plus étudié parmi les systèmes semi-conducteurs III-V.
- ◆ Les résultats obtenus pour (Ga)InAs/GaAs et Ge/Si ont inspiré différents modèles qui sont présentés dans la troisième partie.
- ◆ Enfin nous présentons une revue des différentes études menées dans le système (Ga)InAs/InP.

Le quatrième chapitre est dédié à la description du scénario de croissance 3D de (Ga)InAs sur InP(001) et à la corrélation des propriétés structurales et optiques des îlots. Cette étude détaillée nous a permis d'explorer plusieurs voies pour la réalisation de dispositifs opto-électroniques.

- ◆ Dans une première partie nous présentons une nouvelle technique d'observation de couches encapsulées que nous avons mise au point et utilisée au laboratoire. Elle permet de caractériser une couche d'îlots d'abord par photoluminescence puis par microscopie à force atomique après attaque chimique sélective de la couche d'encapsulation des îlots.
- ◆ La deuxième partie décrit le phénomène de relaxation élastique d'une couche d'InAs, et nous comparons nos observations avec celles obtenues pour le système InAs/GaAs pour lequel le désaccord paramétrique est deux fois plus élevé.
- ◆ La troisième partie est consacrée à l'étude de plans d'îlots d'InAs et de (Ga)InAs destinés à servir de pièges à porteurs dans une structure photoréfractive rapide.
- ◆ Enfin dans la quatrième partie est étudiée l'influence des conditions de croissance sur la relaxation élastique pour réaliser des plateaux d'InAs émettant à 1.55 μm .

Dans le cinquième chapitre, notre objectif est de réaliser des îlots de petites dimensions et homogènes, émettant à 1.55 μm , et qui pourront être utilisées comme zone active d'un laser. Nous nous sommes intéressés à l'effet de l'orientation cristalline du substrat sur la formation et les propriétés des îlots. Nous avons étudié des couches de (Ga)InAs déposées sur InP(113)B et comparé les résultats avec ceux obtenus sur l'orientation (001).

- ◆ Ce chapitre débute par une présentation de la surface (113)B de la structure Zinc-Blende dans laquelle cristallisent les composés semi-conducteurs III-V.
- ◆ Dans une deuxième partie nous étudions des couches de (Ga)InAs et observons l'effet du désaccord paramétrique suivant l'orientation (113)B comparativement à (001).
- ◆ La troisième partie est consacrée à des couches de InAs. Comparée à (001), l'orientation (113)B favorise la relaxation élastique des couches en îlots plus petits et plus nombreux. Nous avons ensuite étudié l'effet de différents paramètres de croissance pour ajuster l'énergie de la luminescence.
- ◆ Enfin nous présentons une synthèse des résultats et nous décrivons le phénomène de relaxation élastique suivant (113)B, en utilisant les modèles présentés dans le chapitre III.

- Desurvire.⁹⁷ E.Desurvire et J.Chesnoy, "Des millions de conversations dans une fibre optique.", *La Recherche* 297, pp.64-71 (avril 1997).
- Eaglesham.⁹⁰ D.J.Eaglesham and M.Cerullo, "Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si (100)", *Phys.Rev.Lett.* 64(16), pp.1943-1946 (1990).
- Goldstein.⁸⁵ L.Goldstein, F.Glas, J.Y.Marzin, M.N.Charasse and G.Le Roux, "Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices", *Appl.Phys.Lett.* 47, pp.1099-1101 (1985).
- Guha.⁹⁰ S.Guha, A.Madhukar and K.C.Rajkumar, "Onset of incoherency and defect introduction in the initial stages of molecular beam epitaxial growth of highly strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ on GaAs(100).", *Appl.Phys.Lett.* 57(20), pp.2110-2112 (1990).
- Maximov.⁹⁸ M.V.Maximov, Yu.M.Shernyakov, A.F.Tsatsul'nikov et al., "High-power continuous-wave operation of a InGaAs/AlGaAs quantum dot laser.", *J.Appl.Phys.* 83, pp.5561-5563 (1998).
- P.A.⁹⁸ P.A., "Le multiplexage en longueur d'onde optique va se banaliser.", *Electronique International* 302, p.26 (avril 1998).
- Regreny.⁹⁷ P.Regreny, "Préparation et évaluation de substrats d'InP adaptés à différents types d'épitaxie.", Thèse (1997).

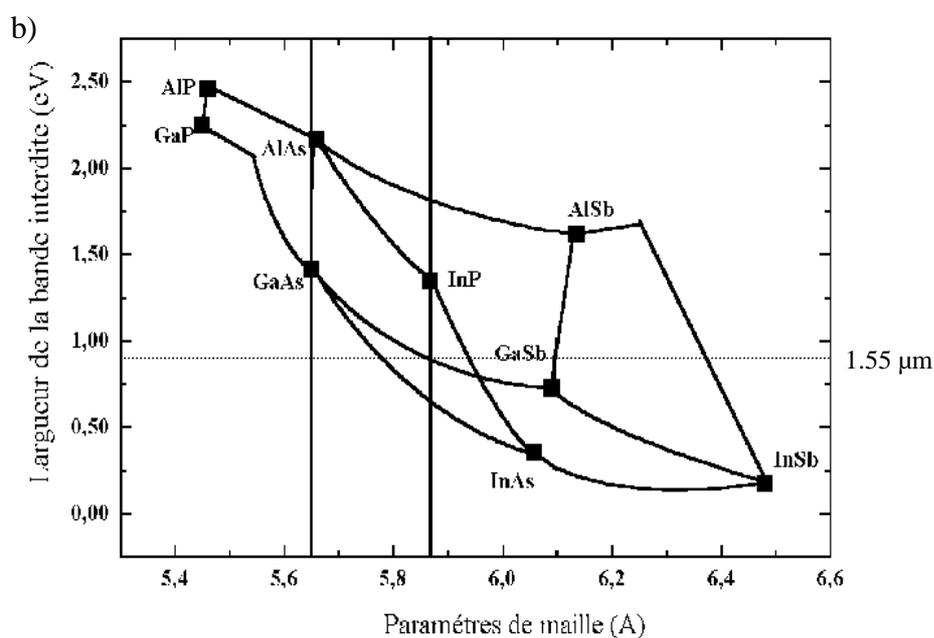
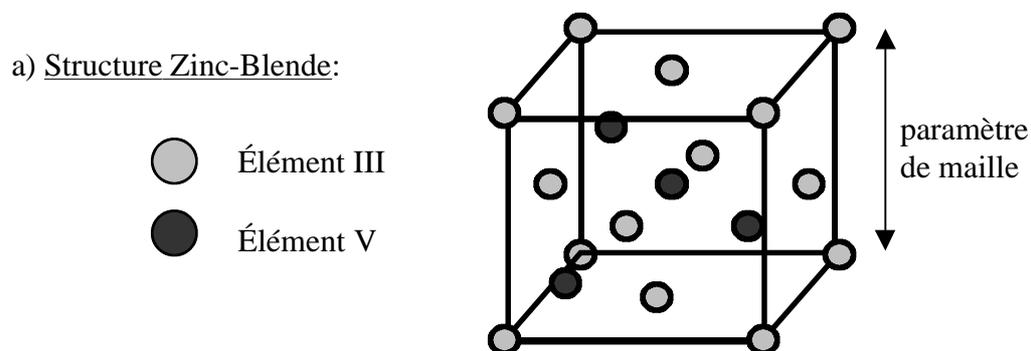
Chapitre I: Dans quel but réaliser des îlots quantiques semiconducteurs?

1. Les îlots quantiques à base de semiconducteurs III-V.

L'intérêt de la physique pour les objets de basses dimensionnalités a pris un essor considérable tant dans le but de réaliser des études fondamentales que d'exploiter leurs propriétés nouvelles pour les applications^{Arakawa.82, Kash.90, Weisbuch.93}. Les techniques d'épitaxie par jets moléculaires et d'épitaxie en phase vapeur aux organométalliques ont notamment permis la réalisation de structures à base de puits quantiques, utilisées dans des dispositifs hyperfréquence tels que les transistors à haute mobilité d'électrons ou des dispositifs opto-électroniques comme les lasers à base de puits quantiques utilisés dans les télécommunications par fibre optique. L'objectif est maintenant de réduire les dimensions dans plusieurs directions de l'espace pour fabriquer des fils quantiques (confinement dans deux directions) ou des boîtes quantiques (confinement dans trois directions). Ces nano-structures font l'objet de recherches actives. C'est par exemple le cas des fils et boîtes quantiques réalisés par nanolithographie à partir de couches épitaxiées. Cette technique présente cependant quelques problèmes: une grande complexité de mise en œuvre, une résolution insuffisante de la lithographie par électrons et la formation de défauts pendant la gravure.

Un nouveau champ d'investigation s'est ouvert pour la réalisation de fils et boîtes de dimensions nanométriques, dits auto-assemblés, qui se forment spontanément au cours de la croissance par épitaxie d'une couche contrainte. Le processus de "rugosification" de la surface d'une couche épitaxiée réduit l'énergie élastique due à la contrainte emmagasinée dans la couche et relâche ainsi partiellement cette contrainte au prix d'une augmentation de la surface libre. Cette relaxation élastique se produit, contrairement à la relaxation plastique, sans nucléation de dislocations qui nuisent généralement aux caractéristiques des dispositifs que l'on veut réaliser. Ce phénomène présente un espoir pour la réalisation d'objets quantiques de très petites dimensions, tels que les îlots quantiques, mais nécessite une étude approfondie pour comprendre leur formation spontanée et tenter de contrôler dimensions et homogénéité de ces objets. Cette étude s'est largement développée depuis le début des années 90 sur des systèmes à semiconducteurs III-V. Grâce à leurs propriétés optiques et au savoir-faire qui s'est développé en épitaxie de ces matériaux, leur utilisation est largement répandue pour la fabrication de dispositifs opto-électroniques.

Les semiconducteurs III-V cristallisent dans la structure Zinc-Blende représentée figure 1a. La figure 1b représente la "carte du ciel" donnant l'énergie de bande interdite en fonction du paramètre de maille pour les matériaux binaires et les composés ternaires. Elle permet d'identifier les différentes filières de matériaux III-V. Chaque filière regroupe les matériaux dont la maille cristalline est égale ou proche de celle d'un substrat donné, InP ou GaAs et qu'il est possible d'épitaxier sur ce substrat. Les différents matériaux définissent à leur tour une gamme de longueurs d'onde pour laquelle ils pourront être utilisés dans les dispositifs. La gamme 1.3-1.55 μm des télécommunications optiques nécessite l'utilisation de la filière InP alors qu'autour de 0.8 μm on utilise la filière GaAs et dans l'infrarouge lointain ($> 2 \mu\text{m}$) les antimoniures. Le composé binaire InAs a un paramètre de maille supérieur à ceux d'InP et GaAs et sa faible énergie de bande interdite permet un confinement important des porteurs. Les systèmes InAs/GaAs et InAs/InP sont donc des candidats intéressants pour la réalisation d'îlots (voir tableau figure 1c).



c)

	Paramètre de maille (Å)	Energie de bande interdite à 300 K (eV)
GaAs	5.6533	1.43
InP	5.8688	1.3
InAs	6.0584	0.35

Figure 1: a) structure cristalline Zinc-Blende.

b) "carte du ciel" des différents semiconducteurs III-V. En abscisse le paramètre de maille et en ordonnée la largeur de bande interdite.

c) tableau des valeurs de paramètre de maille et de l'énergie de bande interdite à 300 K des semiconducteurs binaires GaAs, InP et InAs.

2. Applications des îlots quantiques et cahier des charges.

Cette partie décrit un cahier des charges des propriétés électroniques et optiques des îlots quantiques destinés à deux types d'applications: les lasers et les dispositifs photoréfractifs rapides. Nous étudions ces derniers dans le cadre d'un contrat avec le Centre National d'Etudes et Télécommunications (C.N.E.T. – France Télécom) de Lannion.

2.1. Les boîtes quantiques 0D pour diodes lasers.

Les propriétés originales des structures de basse dimensionnalité constituent un espoir pour la réalisation de nouveaux dispositifs micro et opto-électroniques plus performants. Les diodes lasers semi-conductrices à base de puits quantiques ont ainsi permis de gagner un facteur 3 à 4 sur le courant de seuil et sur le gain^{Bensoussan.94} par rapport aux lasers à semiconducteurs massifs. Arakawa et Sakaki^{Arakawa.82} avaient prédit dès 1982 qu'une diminution de la dimensionnalité du système réduit la variation du courant de seuil d'un laser avec la température. Celle-ci est théoriquement éliminée pour une structure à base de boîtes quantiques. L'origine de ces propriétés très attractives des lasers à boîtes quantiques se situe dans le confinement possible suivant les trois directions de l'espace qui entraîne un changement de la densité des états électroniques.

La figure 2 schématise la structure de bande d'un puits quantique 2D et d'une boîte quantique 0D^{Gérard.95}. Dans le premier cas il y a un continuum d'états dans les bandes de valence et de conduction alors que dans le second les niveaux d'énergie sont discrétisés. La figure 2a représente le remplissage des niveaux d'énergie au seuil de transparence du laser et la figure 2b au-delà de ce seuil. Le seuil de transparence est atteint lorsque la probabilité pour les électrons d'être en haut de bande de valence et celle d'être en bas de bande de conduction sont égales: l'absorption et l'émission stimulée se compensent. Dans le cas d'un puits 2D la densité d'états est telle que les recombinaisons bande à bande sont importantes ce qui nécessite d'injecter un grand nombre de porteurs pour atteindre le seuil de transparence: le courant de seuil du laser est "élevé". Par comparaison, une seule paire électron-trou est nécessaire pour atteindre le seuil de transparence dans une boîte quantique. Au-delà du seuil de transparence les paires électron-trous créées dans les bandes ne participent pas directement au gain du laser dans le cas d'un puits 2D. Dans le cas des boîtes quantiques, toutes les paires électron-trou créées se retrouvent en bas de bande. Le gain différentiel du laser est donc beaucoup plus important. Si la différence d'énergie entre le premier et deuxième niveau est supérieure à kT alors la densité de population des niveaux d'un îlot ne change pas avec la

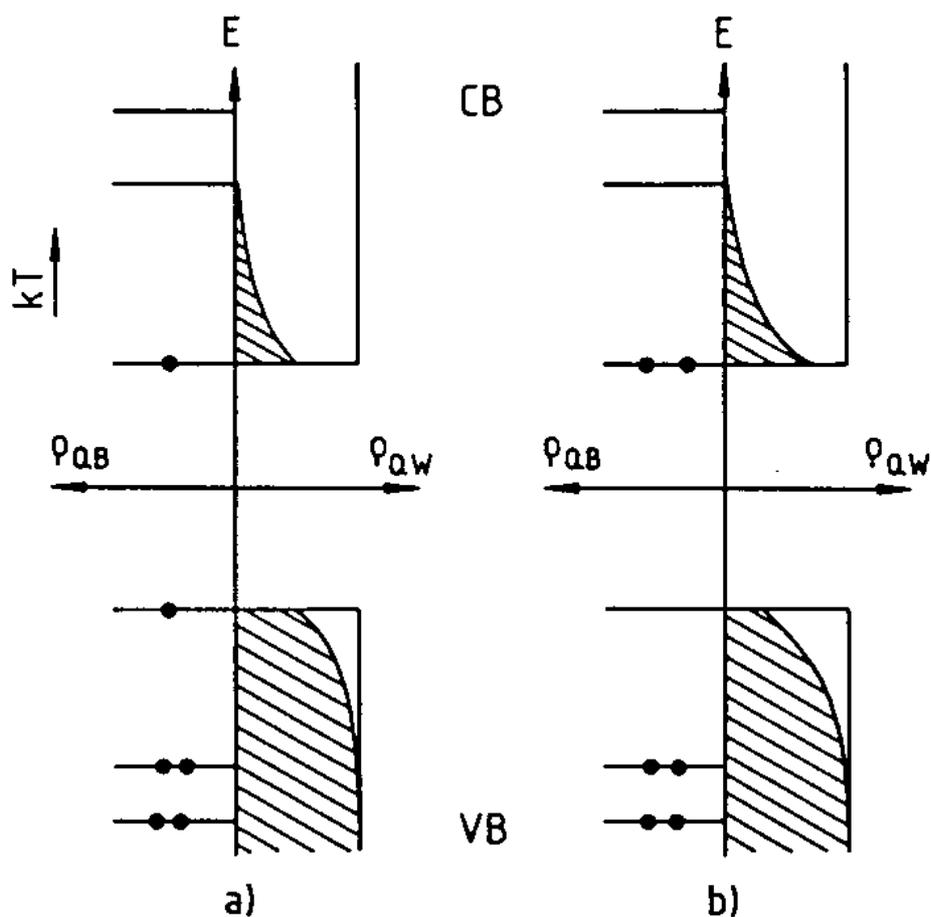


Figure 2: Densité d'états de la bande de conduction (CB) et de la bande de valence (VB) pour un système 2D idéal (Γ_{QW}) et pour un îlot quantique (Γ_{QB}). La densité d'états occupés est représentée par la zone hachurée pour le puits et par les points noirs ("électrons") pour les îlots. Gérard.95

(a) seuil de transparence: la probabilité pour un électron d'être en haut de la bande de valence ou en bas de la bande de conduction sont égales.

(b) au-delà du seuil de transparence.

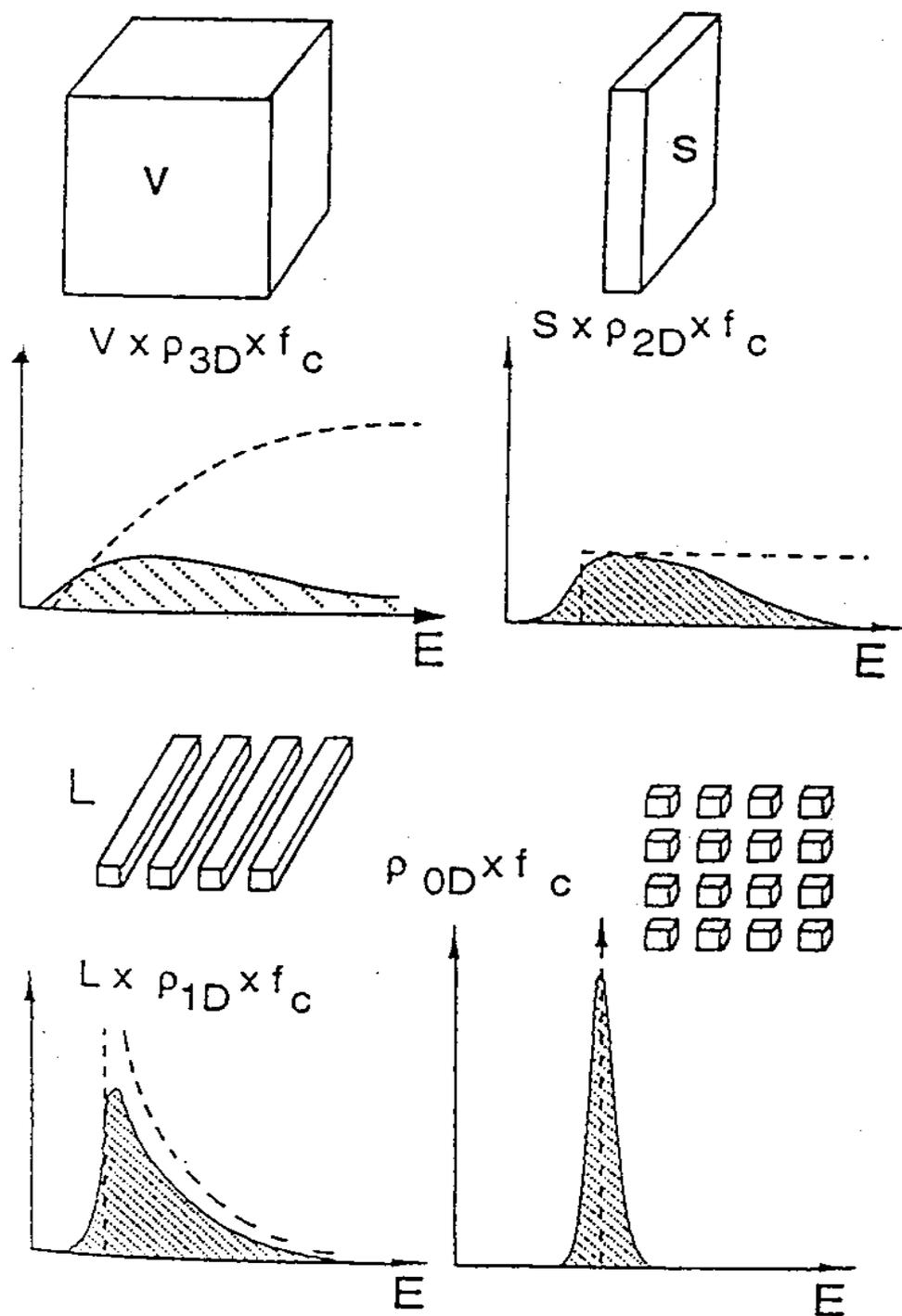


Figure 3 : Schéma de la densité d'états 3D, 2D, 1D et 0D. La courbe en pointillés correspond à la densité d'états théorique et la courbe en trait plein au gain optique d'une structure "réelle". Weisbuch.93

température. Le gain du laser est alors indépendant de la température, et le problème de la température critique T_0 du laser à puits quantique est ainsi évité.

Comme nous venons de le montrer à partir de la figure 2, le gain optique dépend de la forme de la densité d'états. Sur la figure 3 sont représentées les densités d'états de systèmes 3D, 2D, 1D et 0D idéaux ainsi que le gain optique d'une structure réelle pour chaque dimensionnalité^{Weisbuch.93}. Pour les dispositifs opto-électroniques l'objectif est d'obtenir le gain le plus élevé possible à une énergie bien définie: on constate que ces exigences sont d'autant mieux remplies que la dimensionnalité est réduite.

Pour atteindre une densité d'états 0D les îlots doivent être inférieurs à quelques centaines d'angströms dans les trois directions^{Ledentsov.97}. En général les îlots quantiques auto-assemblés dans les systèmes à semiconducteurs III-V ont des hauteurs de l'ordre de quelques dizaines d'angströms. Par contre les tailles latérales peuvent atteindre plusieurs centaines ou milliers d'angströms. Sur la figure 4 est calculée l'énergie de confinement dans un fil quantique d'InAs dans une matrice d'InP en fonction de son diamètre. On constate qu'il devient significatif, c'est à dire supérieur à $kT = 25$ meV à température ambiante, pour des diamètres de l'ordre de 300 \AA et inférieurs, ce qui est du même ordre de grandeur que pour le système InAs/GaAs^{Marzin.94-2}. L'obtention d'une densité d'états qualifiée de "0D" nécessite donc des tailles latérales inférieures à 300 \AA .

Une des difficultés majeures de la croissance spontanée de ces îlots quantiques est le contrôle de la distribution des tailles. En effet l'énergie des porteurs dans les îlots dépend de leurs dimensions: une partie seulement des îlots émettent donc à la longueur d'onde du laser. Pour comparer le gain d'un laser à puits ou boîtes quantiques il faut comparer la densité des états à l'énergie d'émission du laser, qui dépend de la densité et de la dispersion des tailles dans le cas d'un plan d'îlots. J.M.Gérard^{Gérard.95} a estimé que, pour obtenir un gain différentiel plus élevé pour un plan d'îlots que pour un puits 2D, la dispersion des tailles devait être inférieure à 15 % pour une densité maximale des îlots.

Par rapport aux puits, les îlots présentent une dispersion en hauteur qui élargit le signal de luminescence. Il est possible de tirer profit de cet élargissement du signal émis dans les lasers accordables. Il serait possible d'accorder la longueur d'onde d'émission des lasers autour de $1.55 \mu\text{m}$, ce qui présente un intérêt considérable pour la technique de multiplexage en longueur d'onde (WDM).

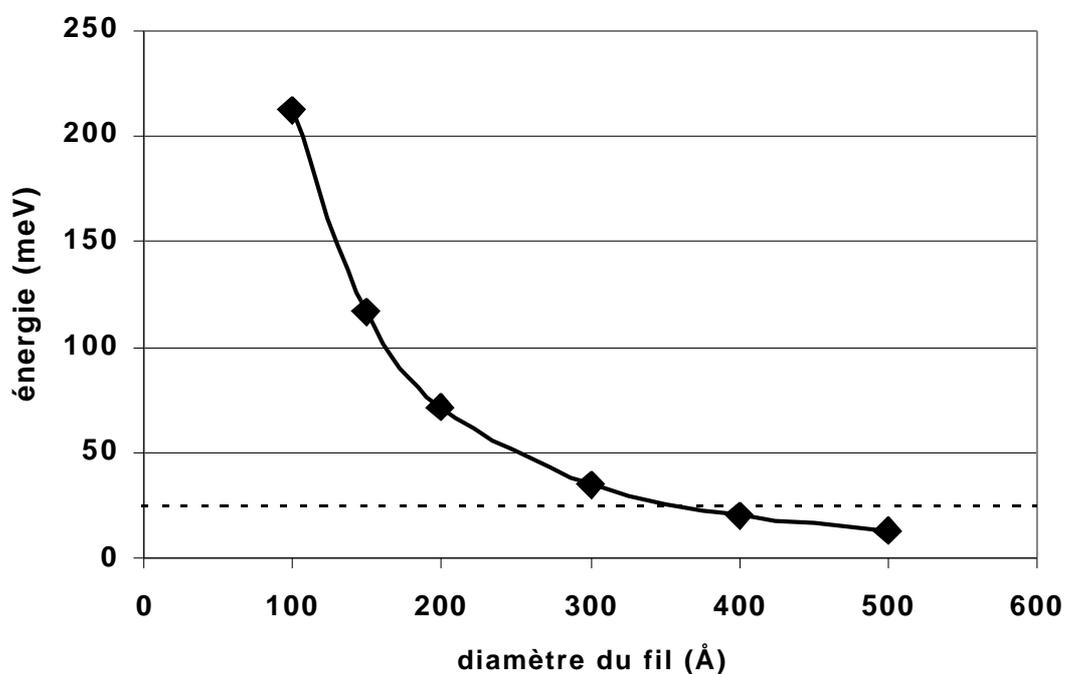


Figure 4: Énergie de confinement des électrons dans un fil quantique d'InAs dans une matrice InP (trait plein). Le calcul a été fait par la méthode de la matrice de propagation. En trait pointillé, énergie $kT = 25$ meV à température ambiante. [S.Hinoda, communication privée].

$\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ est le système le plus étudié actuellement^{Ledentsov.97}. Le premier laser réalisé est constitué d'un seul plan d'îlots d'InAs, et émet à $0.95 \mu\text{m}$ à la température de l'azote liquide^{Kirstaedter.94}. L'utilisation de couches ternaires $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$, moins contraintes et plus épaisses, a permis d'atteindre le seuil d'émission d'un laser à température ambiante^{Mirin.96}, pour un courant de seuil de 500 A/cm^2 . L'empilement de plusieurs plans d'îlots a été l'étape suivante. Les recherches ont été menées dans deux directions. La première est un empilement de plans d'îlots indépendants, c'est à dire sans couplage vertical des îlots. Cependant, de la dispersion des tailles des îlots résulte une émission laser à différentes longueurs d'onde^{Harris.98}, une partie seulement des îlots participe donc à chaque pic d'émission. Le gain du laser se répartit alors entre ces différents pics.

L'autre axe de recherche est l'empilement de plans d'îlots avec une faible épaisseur de la barrière séparant les différents plans. Ce type d'empilement a été largement étudié: différents groupes ont montré que les îlots des plans successifs s'alignent verticalement et sont couplés électroniquement. Les structures obtenues sont alors proches de fils orientés suivant la direction de croissance, réduisant ainsi l'effet de la dispersion des tailles des îlots. Grâce à ces structures le seuil d'émission laser à température ambiante a été abaissé à 100 A/cm^2 ^{Ustinov.97}. Une puissance supérieure à 1 W par facette a été atteinte à température ambiante^{Maximov.98}.

Nous nous intéressons dans ce mémoire au système $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$, permettant d'atteindre la longueur d'onde de $1.55 \mu\text{m}$. Un premier laser a été réalisé à partir de trois plans d'îlots d'InAs couplés^{Ustinov.98-2}, réalisés sur InP(001). L'émission laser, à la longueur d'onde de $1.9 \mu\text{m}$, est obtenue à 77 K pour un courant de seuil de 11.4 A/cm^2 . Un second laser, comprenant sept plans d'îlots d'InAs et émettant à une longueur d'onde comprise entre 1.1 et $1.4 \mu\text{m}$ toujours à 77 K , a été réalisé sur substrat orienté (113)B^{Nishi.98}, le courant de seuil étant cependant supérieur à 1000 A/cm^2 .

2.2. Les îlots quantiques comme pièges à porteurs.

En dehors de la possibilité de réaliser des boîtes quantiques 0D, les îlots quantiques présentent la caractéristique de localiser les porteurs. Ce rôle de piège ne nécessite pas des dimensions quantiques. Si les niveaux de confinement dans les îlots sont suffisamment profonds pour que les porteurs restent localisés à température ambiante, le piégeage peut être également exploité dans les composants opto-électroniques. Nous exposons ici l'avantage d'utiliser ces îlots-pièges dans la zone active du laser ou dans les zones de piégeage de

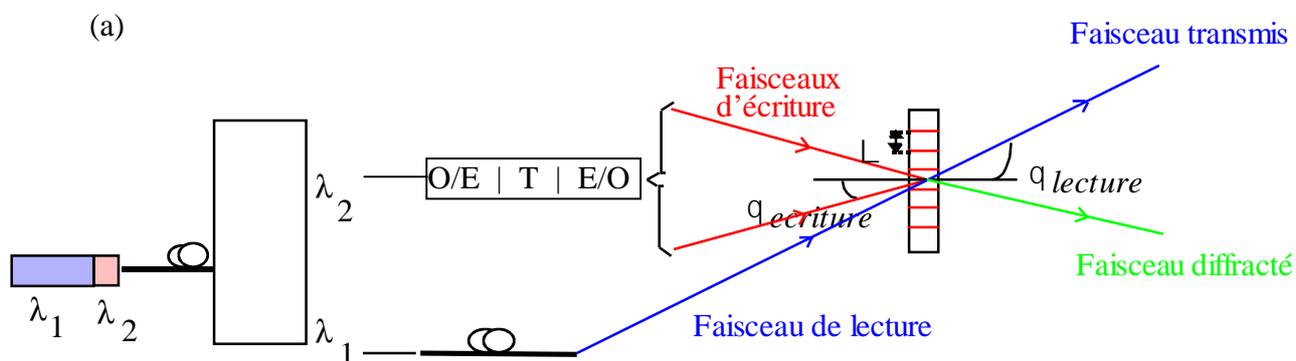
dispositifs photoréfractifs à multipuits quantiques pour la commutation optique. Imamura et col.^{Imamura.95} ont aussi réalisé des mémoires optiques utilisant des îlots d'InAs/GaAs.

2.2.1 Dans la zone active d'un laser.

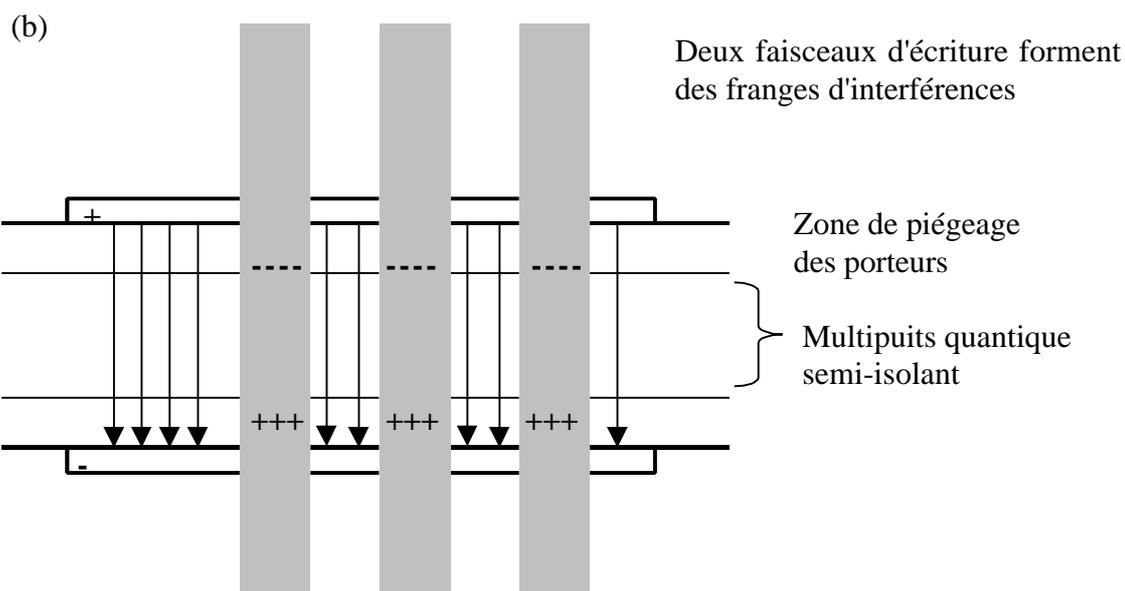
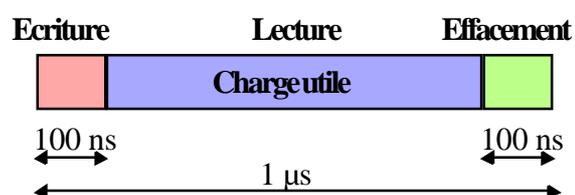
On observe une chute de luminescence d'un puits quantique lorsqu'on augmente la température de 2 à 300 K. Ce phénomène est observé en particulier dans les puits quantiques GaInAs/GaInAsP qui constituent la zone active des lasers émettant à 1.55 μm . A basse température, les porteurs relaxent et restent localisés par les fluctuations de compositions ou d'épaisseurs des puits d'où ils se recombinaient. Lorsque la température augmente, ils acquièrent une énergie qui leur permet de s'extraire de ces zones et d'être mobiles dans le plan du puits quantique. Lors de ces déplacements latéraux dans la couche, les porteurs ont une probabilité plus importante de rencontrer des centres de recombinaisons non radiatives tels que les défauts structuraux. Ces pertes de porteurs entraînent une diminution du gain optique dans une structure laser. Les îlots permettraient d'éviter ce phénomène grâce à la localisation des porteurs, jusqu'à température ambiante, qui diminue leur probabilité de rencontrer des défauts non radiatifs. Cette idée a été exploitée par J.M.Gérard pour la réalisation de lasers InAs/GaAs sur substrat silicium^{Gérard.96}.

2.2.2 Dispositifs pour la commutation optique.

Les dispositifs actuels utilisés pour la commutation des données optiques sont électroniques, ce qui limite les vitesses de transmission et de traitement des données. Les recherches se portent actuellement sur des dispositifs "tout optique" qui permettraient d'atteindre des fréquences de transmission de l'ordre du GHz. L'une des voies explorées pour le "tout optique" est la commutation optique en espace libre basée sur l'utilisation d'un dispositif photoréfractif présenté figure 5a. Le paquet optique est constitué d'un en-tête qui contient l'information sur l'adresse que doivent prendre les données de la charge utile. L'en-tête peut être traité à basse fréquence, le débit des paquets étant de l'ordre du MHz. Le débit de la charge utile n'est pas défini a priori et peut atteindre le GHz (haut débit). La séparation de l'en tête et de la charge utile qui peuvent être à deux longueurs d'onde différentes simplifie le système. Les deux sont séparés à l'aide d'un monochromateur. L'en tête commande le faisceau d'écriture qui permet la déflexion du faisceau de lecture qui porte la charge utile à l'aide d'un dispositif photoréfractif utilisé pour réaliser un réseau d'indice.



Principe de commutation de paquets optiques en espace libre



*Figure 5: (a) Dispositif de commutation en tout optique.
(b) principe d'une structure photoréfractive à multipuits quantiques.*

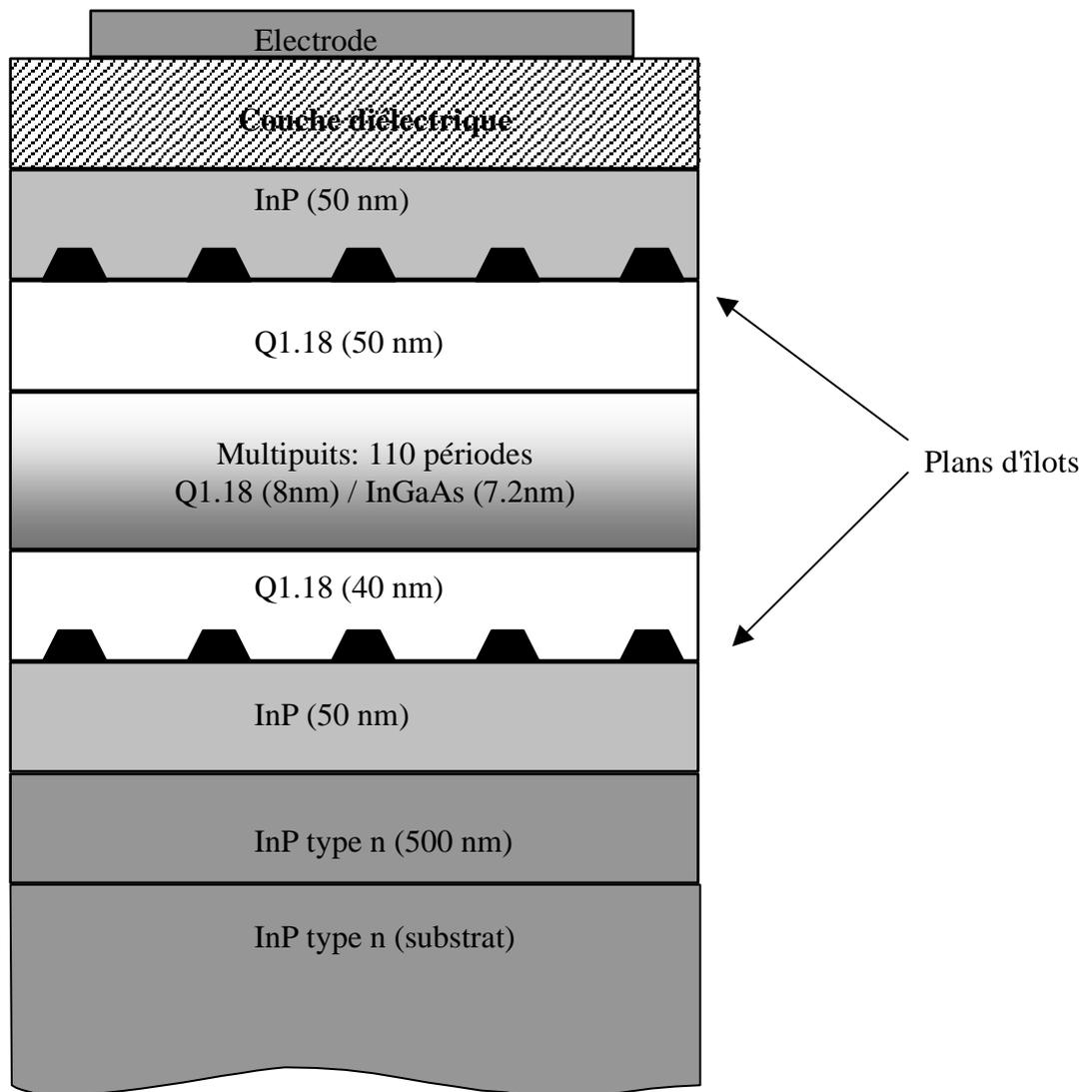


Figure 6: Schéma d'une structure photoréfractive. Les deux plans d'îlots constituent les zones de piégeage des porteurs photo-crées. ^{Le Corre.97}

Pour réaliser ce réseau d'indice (figure 5b), une des possibilités est d'utiliser l'effet Stark confiné quantiquement dans un multipuits^{Partovi.95}. Ce multipuits est placé dans une jonction p-n polarisée en inverse. Le champ électrique appliqué à la structure décale le seuil d'absorption vers les basses énergies par la courbure des bandes dans le multipuits et modifie ainsi l'indice complexe. Deux faisceaux lasers en phase sont alors utilisés pour créer des franges d'interférences (zones sombres et claires représentées figure 5b). Dans les zones claires, des porteurs sont photo-crés et diffusent verticalement vers des zones de piégeage sous l'effet du champ électrique appliqué. Les électrons et les trous se déplacent dans des directions opposées et vont se piéger de part et d'autre du multipuits. Ces charges accumulées induisent un champ électrique qui écranterait alors dans les zones claires le champ appliqué et rétablirait le seuil d'absorption de bande plate. Ceci induit donc une différence d'indice entre franges claires et franges sombres. Un faisceau transmis peut alors être diffracté dans une direction donnée en fonction du pas de ce réseau d'indices. Ce système permet de commuter les paquets optiques vers différents canaux.

La zone de piégeage peut être constituée de couches de quaternaire GaInAsP dans des barrières d'InP fortement dopées avec des pièges profonds Fe et Ti^{De Matos.96}. La définition du pas du réseau d'indice est limitée par la diffusion latérale des porteurs créés dans les zones claires pendant leur transfert vers les zones de piégeage et dans les zones de piégeage elles-mêmes. L'utilisation de plans d'îlots comme zone de piégeage^{Pelekanos.95} a été proposée comme solution pour diminuer la diffusion latérale une fois les porteurs piégés. Ces plans d'îlots permettraient ainsi de limiter l'épaisseur de ces zones de piégeage et donc de diminuer l'épaisseur totale de la structure: la tension appliquée à la structure pour obtenir le même champ électrique dans le multipuits est alors moins élevée que dans une structure classique. La figure 6 présente une telle structure réalisée sur substrat InP et utilisant des îlots d'InAs pour le piégeage des porteurs^{Le Corre.97}.

Les caractéristiques des îlots, utilisés pour piéger les porteurs, diffèrent donc de celles nécessaires à la réalisation d'un laser. Il n'y a pas de contrainte forte sur l'homogénéité des tailles, mais les îlots doivent posséder un coefficient de capture élevé et doivent permettre le piégeage d'un grand nombre de porteurs. Pour ce faire de "gros" îlots, de dimensions non quantiques, sont nécessaires.

- Arakawa.⁸² Y.Arakawa and H.Sakaki, "Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current.", *Appl.Phys.Lett.* 40, pp.939-941 (1982).
- Bensoussan.⁹⁴ M.Bensoussan, "Les nouvelles technologies photoniques." dans "Les communications optiques", *mémento technique* N° 3, CNET- France télécom, p.43 (juin 1994).
- De Matos.⁹⁶ C.De Matos, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, J.Pleumeekers and S.Gosselin, "Photorefractive *p-i-n* diode quantum well operating at 1.55 μm .", *Appl.Phys.Lett.* 68, pp.3576-3578 (1996).
- Gérard.⁹⁵ J.M.Gérard, "Confined electrons and photons, new physics and applications", eds C.Weisbuch and E.Burstein, NATO ASI Series, Plenum, New York (1995).
- Gérard.⁹⁶ J.M.Gérard, O.Cabrol and B.Sermage, "InAs quantum boxes: highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si.", *Appl.Phys.Lett.* 68(22), pp.3123-3125 (1996).
- Harris.⁹⁸ L.Harris, D.J.Mowbray, M.S.Skolnick, M.Hopkinson and G.Hill, "Emission spectra and mode structure of InAs/GaAs self-organized quantum dot lasers.", *Appl.Phys.lett.* 73, pp.969-971 (1998).
- Imamura.⁹⁵ K.Imamura, Y.Sugiyama, Y.Nakata, S.Muto and N.Yokoyama, "New optical memory structure using self assembled quantum dots.", *Jpn.J.Appl.Phys.* 34, pp.L1445-L1447 (1995).
- Kash.⁹⁰ K.Kash, "Optical properties of III-V semiconductor quantum wires and dots", *J. of Luminescence* 46, 69-82 (1990).
- Kirstaedter.⁹⁴ N.Kirstaedter, N.N.Ledentsov, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, S.S.Ruminov, M.V.Maximov, P.S.Kop'ev, Zh.I.Alferov, U.Richter, P.Werner, U.Gösele and J.Heydenreich, "Low threshold, large T_0 injection laser emission from (InGa)As quantum dots.", *Electron.Lett.* 30, pp.1416-1417 (1994).
- Le Corre.⁹⁷ A.Le Corre, C.De Matos, H.L'Haridon, S.Gosselin and B.Lambert, "Photorefractive multiple quantum well device using quantum dots as trapping zones.", *Appl.Phys.Lett.* 70, pp.1575-1577 (1997).
- Ledentsov.⁹⁷ N.N.Ledentsov, N.Kirstaedter, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, I.V.Kochnev, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Three-dimensional arrays of self-ordered quantum dots for laser applications.", *Microelectronics Journal* 28, pp.915-931 (1997).
- Marzin.⁹⁴⁻² J.Y.Marzin and G.Bastard, "Calculation of the energy levels in InAs/GaAs quantum dots", *Solid State Comm.* 92, pp.437-442 (1994).

- Maximov.⁹⁸ M.V.Maximov, Yu.M.Shernyakov, A.F.Tsatsul'nikov et al., "High-power continuous-wave operation of a InGaAs/AlGaAs quantum dot laser.", *J.Appl.Phys.* 83, pp.5561-5563 (1998).
- Mirin.⁹⁶ R.Mirin, A.Gossard and J.Bowers, "Room temperature lasing from InGaAs quantum dots", *Electron.Lett.* 32, pp.1732-1734 (1996).
- Nishi.⁹⁸ K.Nishi, M.Yamada, T.Anan, A.Gomyo and S.Sugou, "Long-wavelength lasing from InAs self-assembled quantum dots on (311) B InP.", *Appl.Phys.Lett.* 73, pp.526-528 (1998).
- Partovi.⁹⁵ A.Partovi, "Photorefractive multiple quantum well materials and applications to signal processing", *Optical Materials* 4, pp.330-338 (1995).
- Pelekanos.⁹⁵ N.T.Pelekanos, B.Deveaud, C.Guillemot, J.M.Gérard, P.Gravey, B.Lambert, A.Le Corre and J.E.Viallet, "Fast photorefractive materials using quantum wells.", *Optical Materials* 4, pp.348-353 (1995).
- Ustinov.⁹⁷ V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, A.R.Kovsh et al., "Low-threshold injection lasers based on vertically coupled quantum dots.", *J.Cryst.Growth* 175/176, pp.689-695 (1997).
- Ustinov.⁹⁸⁻² V.M.Ustinov, A.E.Zhukov, A.Yu.Egorov et al., "Low threshold quantum dot injection laser emitting at 1.9 μm .", *Electron.Lett.* 34, pp.670-672 (1998).
- Weisbuch.⁹³ C.Weisbuch, "Fundamental research and device applications of molecular beam epitaxy grown heterostructures", *J.Vac.Sci.Technol. A* 12(4), pp.1191-1200 (1994).

Chapitre II: Techniques expérimentales

1. L'épitaxie par jets moléculaires

L'épitaxie consiste à déposer une couche monocristalline dont l'orientation cristalline est fixée par un substrat monocristallin. L'épitaxie par jets moléculaires (EJM) a été développée au début des années 1970 aux laboratoires Bell par A.Cho et J.Arthur^{Cho.75}. La croissance s'effectue sous ultra vide, la pression résiduelle étant de 10^{-9} à 10^{-10} Pa, sur un substrat monocristallin porté à une température telle que les flux atomiques ou moléculaires des éléments constituant les matériaux à épitaxier interagissent (figure 1). Les flux atomiques ou moléculaires proviennent de la sublimation (évaporation) des éléments solides (ou liquides) contenus dans des creusets chauffés par effet Joule et sont ainsi projetés directement sur le substrat dans la chambre d'épitaxie sous ultra vide. L'arrêt de croissance se fait instantanément en interposant un cache qui interrompt le flux d'atomes en direction du substrat. Un contrôle précis des flux de différents éléments envoyés simultanément sur la surface permet d'élaborer des alliages ternaires et quaternaires.

L'épitaxie des matériaux semiconducteurs III-V est basée sur la méthode des trois températures proposée par K.Günter en 1958. La température du substrat T_s est comprise entre la température d'évaporation des éléments III, T_{III} et des éléments V, T_V : $T_{III} > T_s > T_V$. Les atomes d'éléments III se condensent alors sur le substrat et leur ré-évaporation est quasiment nulle. Les atomes d'élément V sont envoyés en excès et ne se collent sur la surface que pour assurer la stœchiométrie, en se liant à des éléments III. L'épaisseur des couches est donc contrôlée par le flux des éléments III.

Les échantillons ont été élaborés au laboratoire sur un bâti d'épitaxie par jets moléculaires à sources gazeuses (GSMBE : Gaz Source Molecular Beam Epitaxy) RIBER présenté figure 1. Les chambres d'introduction et de transfert servent à entrer et sortir les échantillons sans remettre l'enceinte d'élaboration à la pression atmosphérique. L'échantillon est situé au centre de la chambre d'épitaxie, face aux différentes cellules. Il est maintenu sur un porte-substrat tournant de manière à obtenir une bonne homogénéité des couches. Les cellules sont obturées par des écrans. Pendant la croissance, on contrôle la température du substrat à l'aide d'un thermocouple en contact avec l'arrière du porte substrat et d'un pyromètre optique visant la surface de l'échantillon. La qualité des couches peut être estimée par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED) grâce à un système

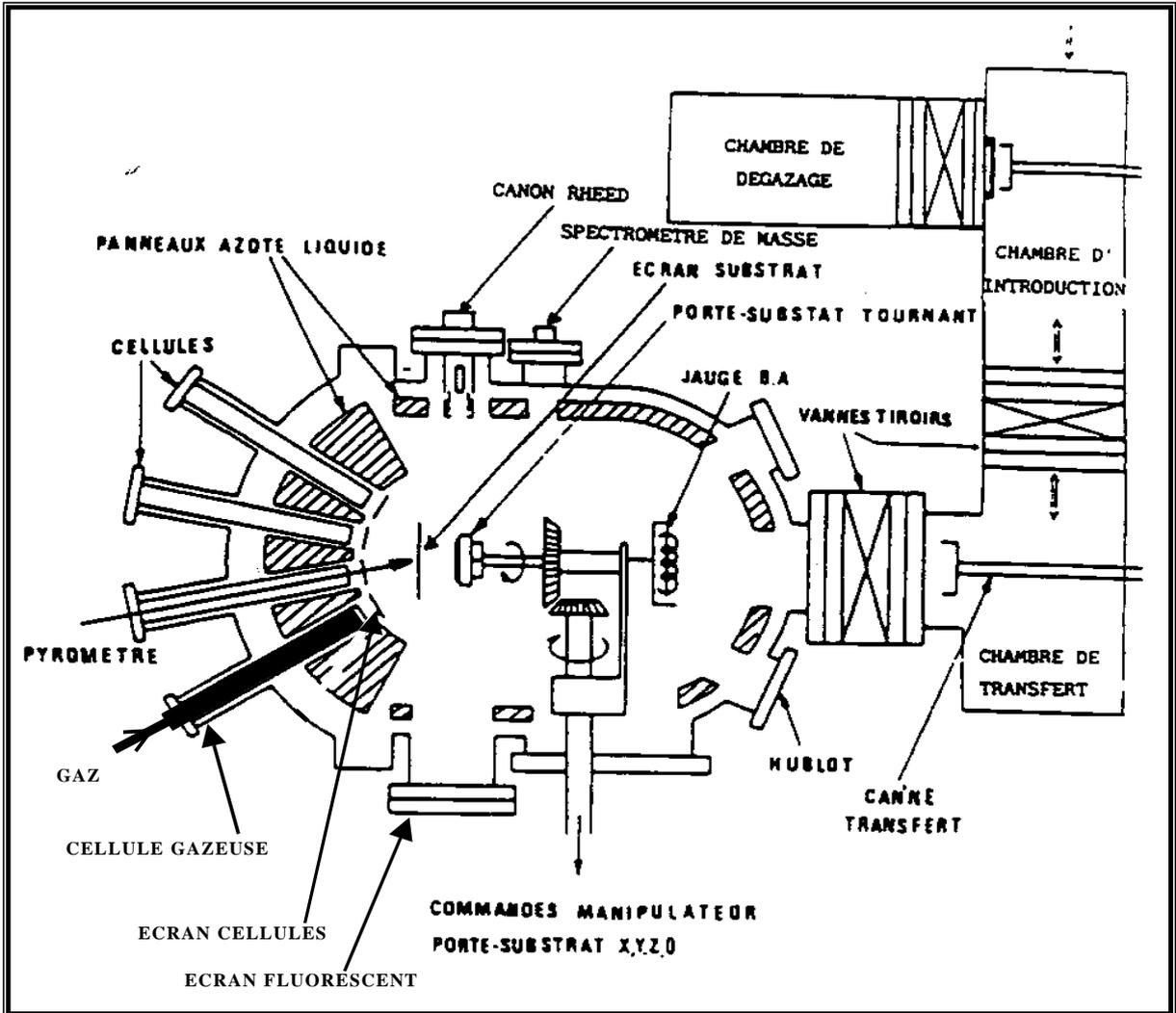


Figure 1: Schéma du bâti d'épitaxie par jets moléculaires à sources gazeuses de l'INSA.

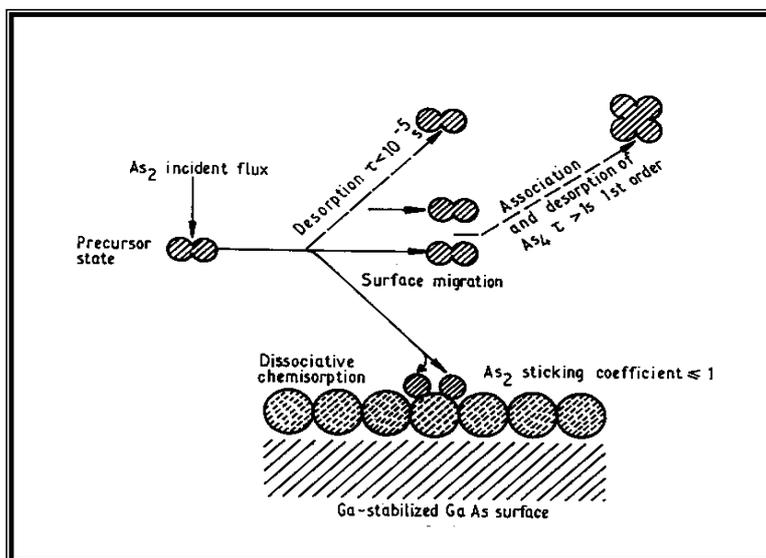


Figure 2: Mécanismes mis en jeu au cours de la croissance Parker.85.

composé d'un canon à électrons et d'un écran fluorescent (figure 1). On enregistre en temps réel (au cours de la croissance) les diagrammes de RHEED à l'aide d'un caméscope.

Les dopants sont obtenus par sublimation de sources solides et les éléments III gallium et indium par évaporation d'une source liquide. Contrairement à l'EJM classique, les éléments V phosphore et arsenic proviennent de sources gazeuses sous la forme de gaz phosphine et arsine, PH_3 et AsH_3 "craqués" sur un filament chauffant ($800\text{ }^\circ\text{C}$). Après craquage, on obtient des flux de dimères de phosphore et d'arsenic qui sont envoyés sur la surface comme indiqué sur la figure 2. Une partie des molécules est dissociée en créant des liaisons avec les éléments III. Les molécules en excès s'évaporent de la surface sous forme de dimères et de tétramères (ces mécanismes sont présentés figure 2) ^{Panish.85}.

Les principaux alliages utilisés dans cette étude sont les ternaires $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.47$ pour l'accord de maille cristalline sur InP) et le quaternaire $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$ (Q1.18 : pour cette composition le quaternaire est accordé en maille sur InP et émet à $1.18\text{ }\mu\text{m}$ à température ambiante). La croissance se fait généralement à une température du substrat proche de $500\text{ }^\circ\text{C}$.

Principaux avantages de l'épitaxie par jets moléculaires:

- ◆ Une faible vitesse de croissance de l'ordre de $1\text{ }\mu\text{m/h}$ ou encore d'une monocouche moléculaire ($3\text{ }\text{Å}$ pour InP) par seconde. Elle permet un contrôle des épaisseurs déposées à la fraction de monocouche.
- ◆ Une interruption rapide des flux permettant la réalisation d'interfaces abruptes.
- ◆ La caractérisation in situ des couches par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED: Reflection High Energy Electron Diffraction).

Caractéristiques de l'épitaxie par jets moléculaires à sources gazeuses.

- ◆ Il n'est pas nécessaire d'ouvrir le bâti pour renouveler les éléments V, ce qui limite le nombre d'ouvertures et les périodes d'étuvage qui suivent.
- ◆ Les molécules dimères ont un meilleur coefficient de collage que les molécules tétramères As_4 et P_4 obtenues par évaporation de sources solides dans le cas de l'EJM.
- ◆ Le système de pompage est renforcé pour évacuer la surpression d'hydrogène ($1 \times 10^5\text{ Pa}$) provenant de la décomposition de l'arsine et de la phosphine.
- ◆ Système de sécurité performant, l'arsine et la phosphine étant des gaz très toxiques. Un système de détection de fuite et de retraitement des effluents est nécessaire.

2. La caractérisation in situ par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED).

2.1. Principe.

Le RHEED permet la caractérisation in situ et en temps réel des couches épitaxiées ^{Lagally.⁹³}. Le diagramme de diffraction RHEED donne à tout instant une image dans l'espace réciproque du réseau cristallin de surface. Il fournit des informations quantitatives (paramètre de maille, reconstruction de surface) et qualitatives (rugosité, morphologie) de la couche en croissance.

Un faisceau d'électrons monoénergétiques d'énergie 10 keV est réfléchi sur la surface en incidence rasante (figure 3). Les électrons sont diffusés élastiquement par le cristal sur une profondeur d'une dizaine d'angströms. Ils interfèrent ensuite et constituent le diagramme de diffraction qui est visualisé sur un écran fluorescent. Ce diagramme est l'intersection dans l'espace réciproque entre la sphère d'Ewald caractéristique du faisceau incident et le réseau réciproque de la surface de l'échantillon. La tache centrale correspond au faisceau réfléchi ou faisceau spéculaire. On observe la périodicité de la surface dans la direction du plan d'incidence des électrons. Elle est donnée par les raies ou les points de diffraction (figure 3).

2.2. La reconstruction de la surface.

Dans la chambre d'épitaxie, l'ultravide permet de préparer des surfaces non polluées de très bonne qualité. Cette surface coûte de l'énergie du fait des liaisons atomiques non satisfaites (dites liaisons pendantes) du dernier plan d'atomes qui constitue la surface. Pour minimiser leur coût en énergie les atomes de surface se réarrangent (figure 5) et conduisent à une périodicité de surface qui est différente de celle du volume. On parle de reconstruction $[n \times m]$ lorsque la maille du réseau de surface est multipliée par n suivant $[1\bar{1}0]$ et m suivant $[110]$ pour une surface orientée (001).

Les différentes reconstructions de la surface (001) de l'InP sont représentées figure 4 en fonction de la température et des pressions en éléments III et V. Les reconstructions $[2 \times 1]$ ou $[2 \times 4]$ (figure 5) sont observées dans les conditions de croissance épitaxiale. L'apparition de la reconstruction $[2 \times 4]$ au cours de la montée en température du substrat précédant la croissance est un critère d'élimination de l'oxyde de protection de la surface de l'InP dit "prêt à l'emploi". L'élimination de cet oxyde de protection est nécessaire pour la prise de croissance épitaxiale.

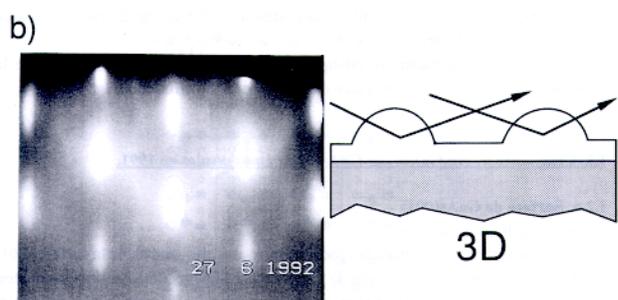
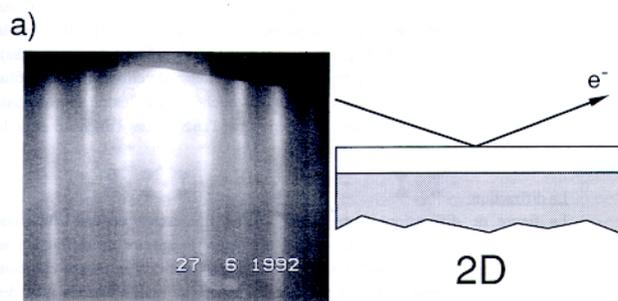
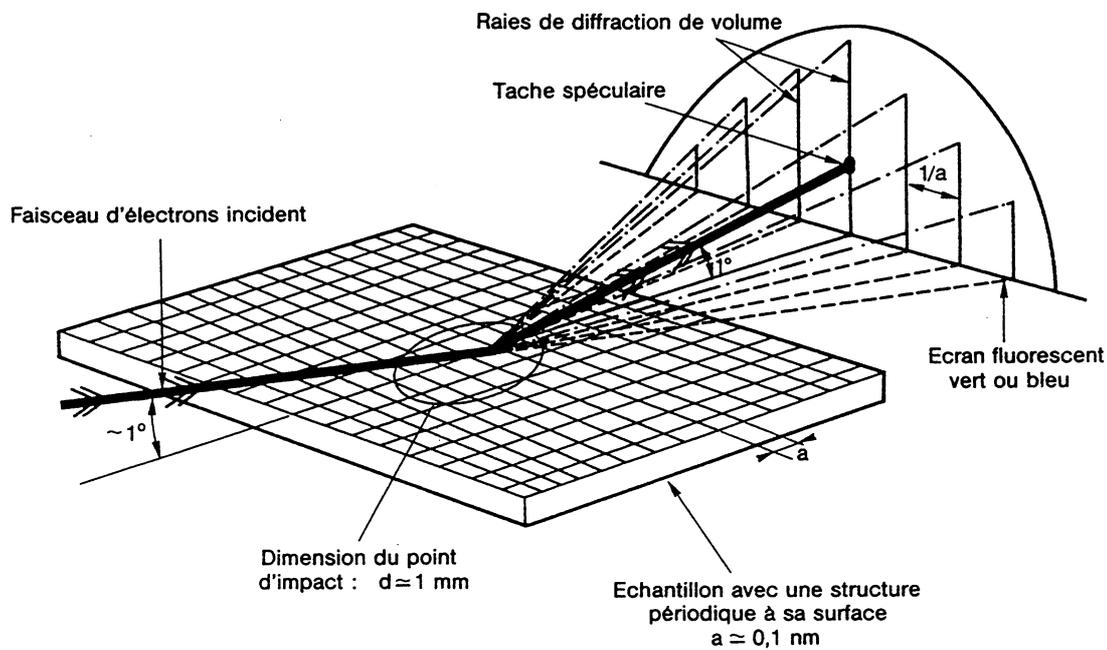


Figure 3: Schéma de la technique d'analyse in situ: le RHEED. Au dessous, diagramme de RHEED: a) pour une surface 2D (tache spéculaire et raies de diffraction). b) pour une surface 3D (taches de diffraction). D'après N. Grandjean, Thèse (1994). Grandjean.94

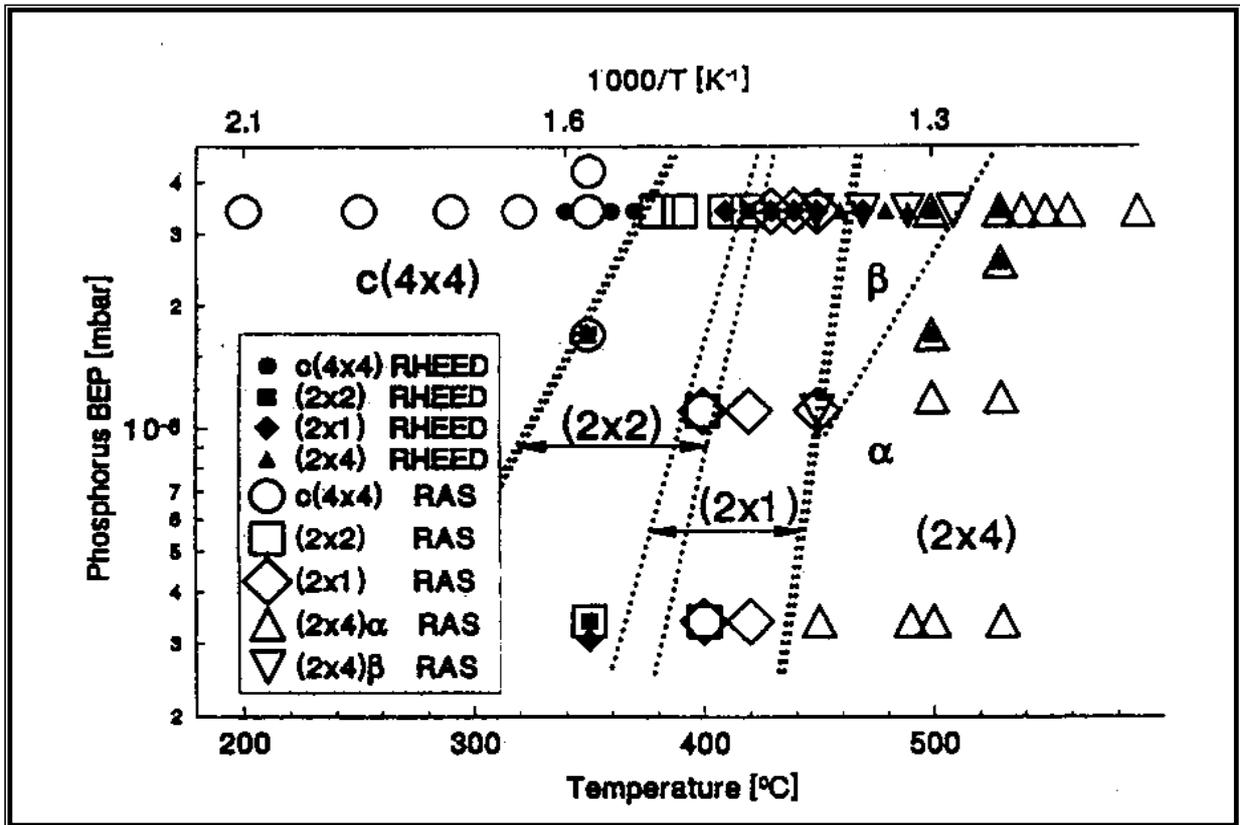


Figure 4: Diagramme de phase de la surface de InP(001) dans les conditions de croissance épitaxiale en fonction de la température du substrat et de la pression de phosphore. Les symboles pleins et ouverts proviennent respectivement de résultats de RHEED et de spectroscopie d'anisotropie de réflexion (RAS). Les lignes pointillées séparent les domaines d'observation des deux reconstructions $[2 \times 1]$ et $[2 \times 4]$. Ozanyan.97

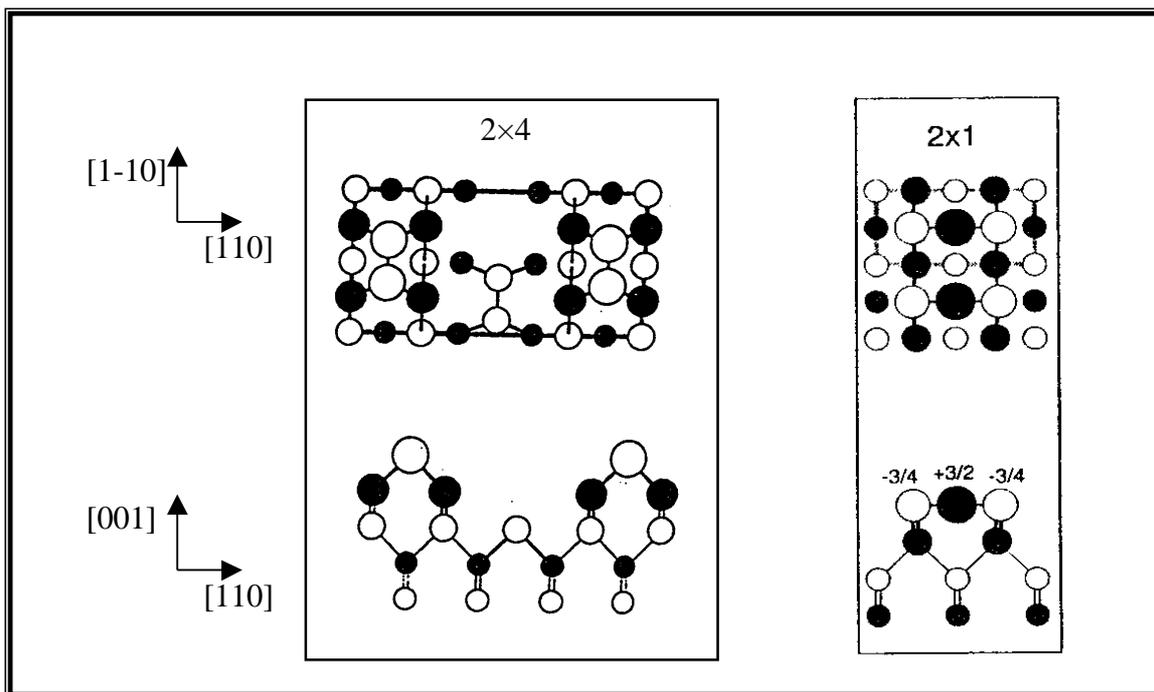


Figure 5: Déplacements atomiques correspondant aux reconstructions de surface $[2 \times 4]$ et $[2 \times 1]$.

Le RHEED est très sensible à la surface du fait de la faible profondeur de pénétration du faisceau. Il permet donc l'observation précise de ces reconstructions. En effet la super-maille [$n \times m$] se traduit par l'apparition de lignes supplémentaires entre les lignes principales sur le diagramme de diffraction.

2.3. Croissance et morphologie des couches.

La croissance d'un matériau accordé en maille est bidimensionnelle dans le cas d'une énergie d'interface faible et se fait au premier ordre monocouche atomique par monocouche atomique. Le maximum de rugosité correspond alors à une demi monocouche et le minimum à une couche complète. On a donc une oscillation de l'amplitude de la rugosité au cours du dépôt d'une monocouche. Cette oscillation est observée en RHEED sur l'intensité de la tâche centrale^{Neave.83}. Si le diagramme est enregistré au cours du temps, on peut en déduire la vitesse de croissance qui est d'une monocouche par période de l'oscillation RHEED.

Le diagramme de diffraction d'une surface épitaxiée réelle de bonne qualité (faible rugosité) est un réseau de lignes parallèles (ou raies de diffraction) obtenu après réflexion du faisceau d'électrons sur la surface. Dans le cas d'une couche fortement rugueuse ou dont le mode de croissance est 3D le faisceau électronique traverse les aspérités de la surface. On observe alors un réseau de taches de Bragg correspondant au diagramme en transmission du matériau (diffraction en volume). Deux diagrammes de RHEED caractéristiques d'une couche 2D et d'une couche 3D sont présentés figure 3. Ainsi le RHEED permet d'observer la transition 2D-3D lors de la relaxation d'une couche contrainte de InAs déposée sur substrat InP. Cette transition s'accompagne aussi d'une diminution de l'intensité du faisceau spéculaire^{Gendry.92}. La caractérisation se faisant in situ et en temps réel, elle peut donner des informations sur la cinétique d'un phénomène tel que la relaxation élastique d'une couche contrainte.

Par ailleurs, grâce à l'analyse fine de la distance entre les lignes en fonction du temps, on peut obtenir l'évolution du paramètre de maille moyen en surface au cours d'un dépôt ou d'un recuit. Enfin, l'apparition de taches en "V" traduit la formation de facettes sur la surface.

Lagally.93, Lee.98

3. La photoluminescence continue.

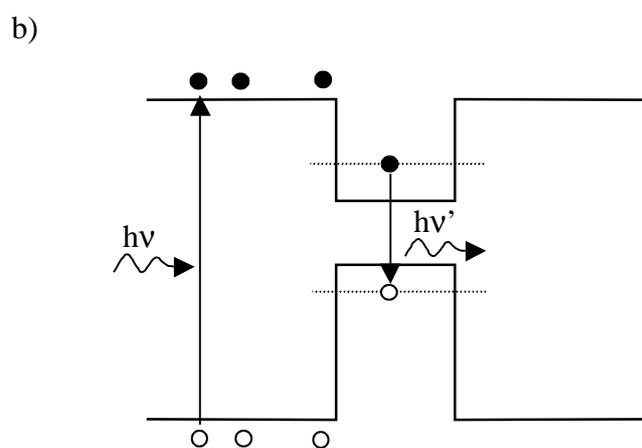
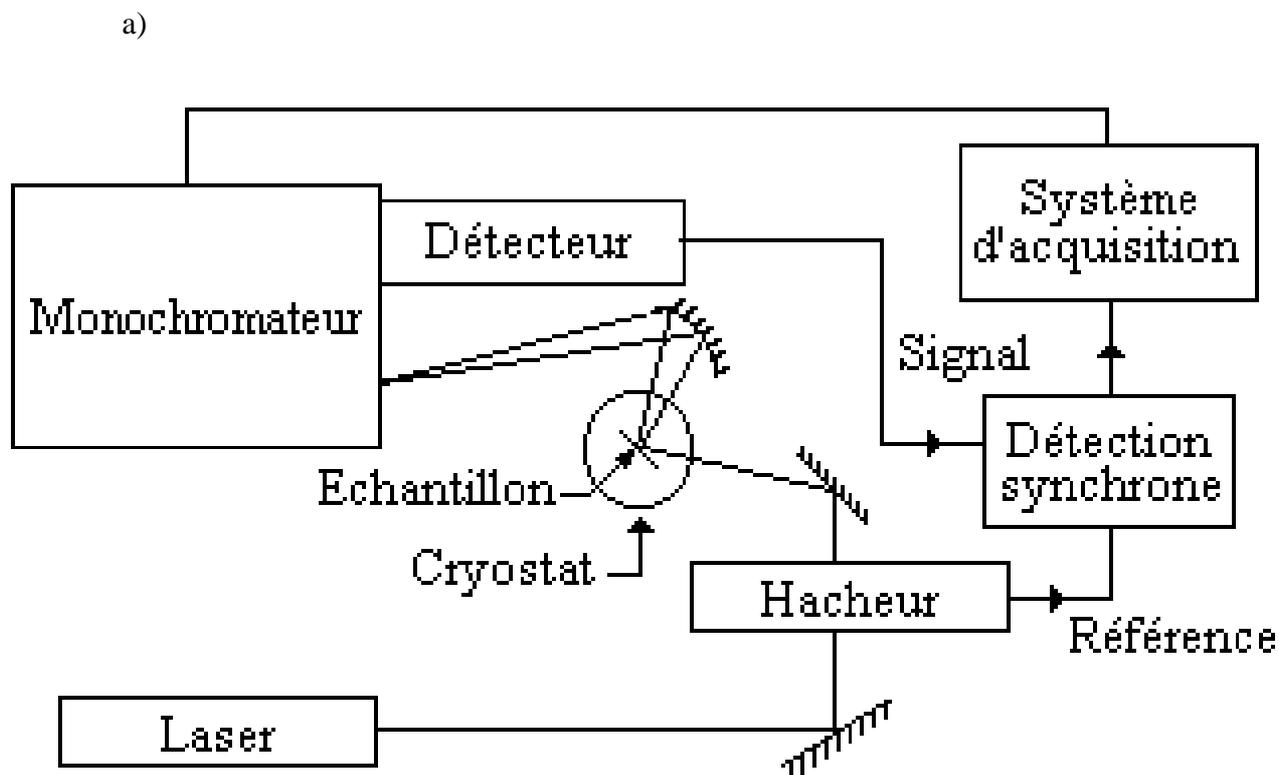
La luminescence est utilisée pour évaluer les propriétés optiques des semiconducteurs. Le schéma du montage que nous utilisons est présenté figure 6a. Un faisceau LASER à 647 nm de longueur d'onde, de puissance 100 W/cm^2 (sauf précision contraire dans le texte) est envoyé sur un échantillon situé à l'intérieur d'un cryostat (température entre 4 K et l'ambiante). Cette excitation optique provoque une luminescence de l'échantillon qui est collectée à l'aide d'un miroir elliptique. Elle est alors renvoyée vers un détecteur à travers un monochromateur. Pour diminuer le bruit, le faisceau LASER est modulé par un hacheur et le signal détecté est filtré par une détection synchrone. On obtient le spectre d'intensité de luminescence en fonction de la longueur d'onde.

La luminescence d'un puits quantique.

La lumière excitatrice est absorbée et crée des paires électrons-trous. La luminescence de l'échantillon provient ensuite de la recombinaison radiative des porteurs. Pour un matériau volumique ou une couche d'épaisseur supérieure à 1000 \AA et en l'absence de défauts et d'impuretés dans le matériau, l'énergie de luminescence correspond à l'énergie de bande interdite. Dans un puits quantique (2D), le premier niveau des électrons et celui des trous sont confinés et se décalent vers les hautes énergies. L'énergie de luminescence est alors supérieure à l'énergie de bande interdite du matériau constituant le puits et augmente lorsque l'épaisseur de ce puits diminue (figure 6b). A basse température (2 K) les recombinaisons se font en bas de bande. La largeur du pic de luminescence dépend alors de la qualité de la couche: homogénéité de la composition, épaisseur constante. A température ambiante le pic de luminescence s'élargit du côté des hautes énergies sous la forme d'une exponentielle: $\exp(-E/kT)$, la densité d'états ayant la forme d'une marche (figure 7). Dans les puits tels que GaInAs/GaInAsP/InP l'intensité de luminescence chute, typiquement d'un facteur 40. Ceci est dû à la diffusion des porteurs dans le puits vers des centres de recombinaison non radiative.

Comparaison avec la luminescence d'îlots quantiques.

Si la dimensionnalité du système est inférieure (confinement quantique dans deux directions -fils 1D- ou trois directions -îlots 0D-) le confinement quantique augmente et le pic de luminescence se décale vers les hautes énergies. La figure 7 donne une comparaison de la densité d'états, et de la densité des porteurs pour un puits quantique et un ensemble d'îlots ainsi que la fonction de Fermi-Dirac qui ne dépend que de la température. La densité d'états



*Figure 6: a) Schéma du montage de la photoluminescence continue.
b) Principe de la photoluminescence pour un puits quantique.*

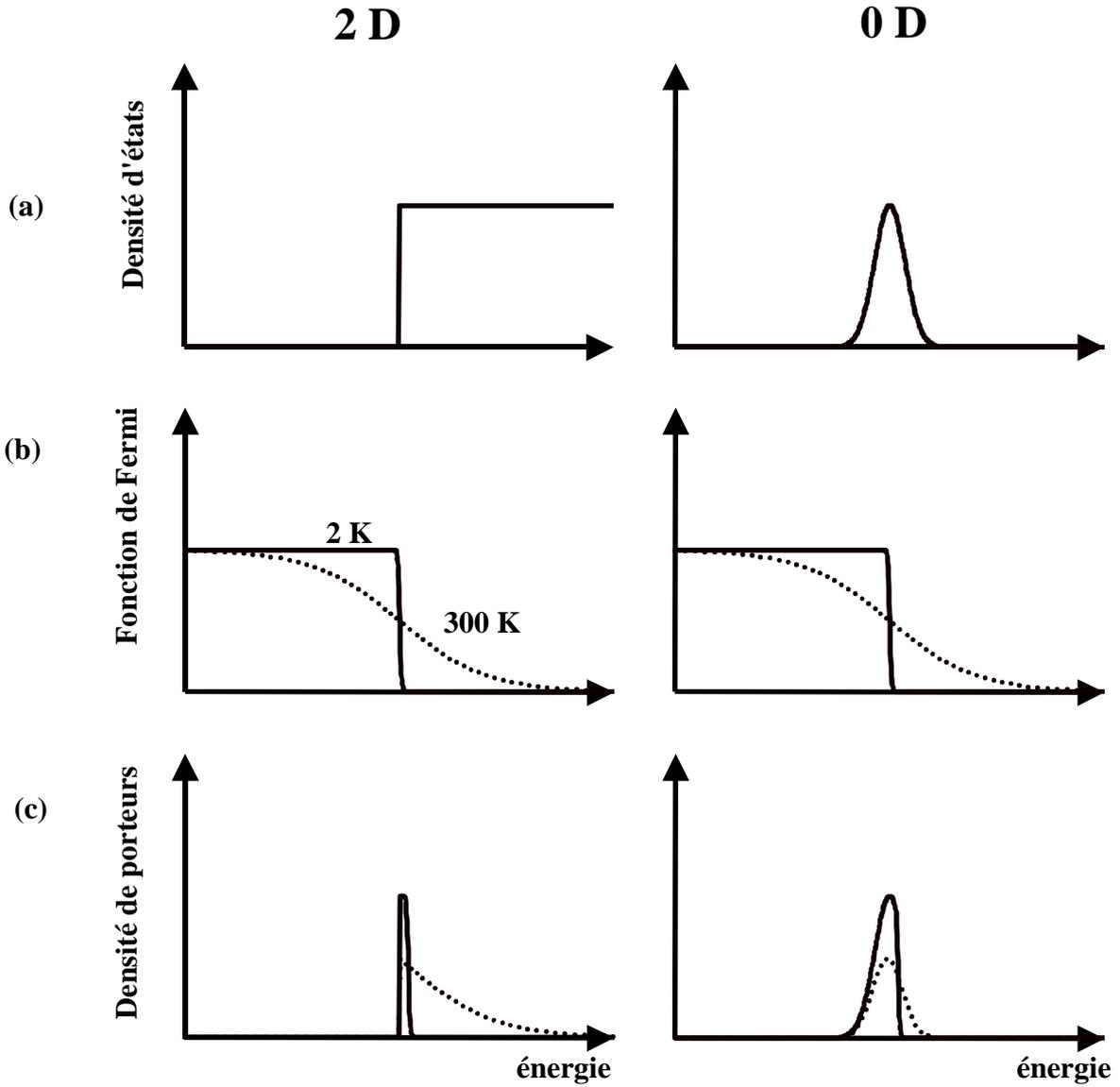


Figure 7: a) densités d'états 2D et 0D.

b) probabilité d'occupation des états quantiques -fonction de Fermi-Dirac $f(E)$ -.

$$f(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - E_F}{kT}\right)}$$

c) densité des porteurs dans un puits (2D) et un îlot (0D) semiconducteurs. C'est le produit de la densité d'états par la probabilité d'occupation des états quantiques .

en fonction de l'énergie est une marche pour un puits 2D et une fonction delta pour une boîte quantique 0D. La densité d'états "élargie" d'une collection d'îlots est due à leur distribution des tailles. C'est la somme des densités d'état (fonction delta) de chaque îlot. En multipliant la densité d'états par la fonction de Fermi on obtient la densité de porteurs dans les bandes. L'intensité de luminescence est proportionnelle à la densité des porteurs dans les bandes. Celle-ci dépend à la fois de la densité des états quantiques et de leur probabilité d'occupation.

A basse température la luminescence dépend de la qualité de la couche. Pour un plan d'îlots la largeur du pic de luminescence provient de l'inhomogénéité des tailles. A haute température l'élargissement du pic de luminescence est moins important que celui d'un puits quantique à cause de la densité d'états. On suppose en effet que la séparation des niveaux d'énergie dans les îlots est supérieure à kT ^{Ledentsov.97}. La luminescence provient alors du premier niveau. De plus, les porteurs étant piégés latéralement, ils ne diffusent pas vers les centres de recombinaison non radiative ce qui doit limiter la chute d'intensité de luminescence lorsqu'on augmente la température (voir figure 8)^{Lambert.98}.

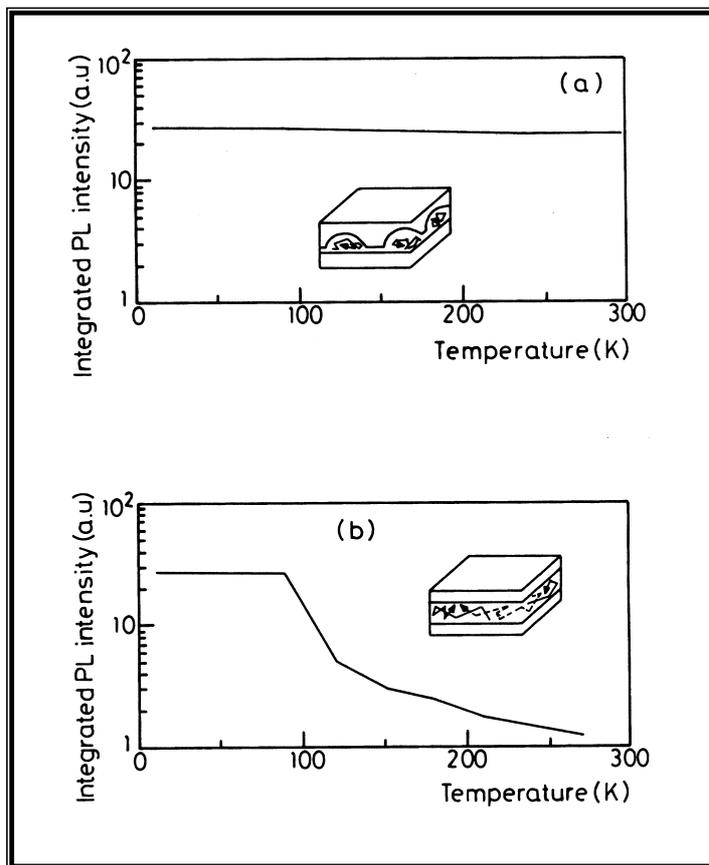


Figure 8: Intensité de photoluminescence intégrée en fonction de la température pour une couche d'îlots et un puits 2D.

4. La microscopie électronique en transmission

La microscopie électronique en transmission (figure 9) est basée sur l'interaction entre un réseau périodique d'atomes et un faisceau électronique monocinétique qui le traverse. Le faisceau d'électrons est créé à partir d'un filament. Une différence de potentiel de 200 ou 300 kV accélère les électrons. Le faisceau électronique est mis en forme et condensé sur l'échantillon à l'aide de bobines ou aimants appelés lentilles par analogie avec l'optique. Une deuxième série de lentilles et de diaphragmes utilisent le faisceau transmis pour former une image ou un cliché de diffraction de l'échantillon.

Pour que le faisceau d'électrons soit observable après la traversée de l'échantillon il est nécessaire de préparer des lames très minces d'échantillon, d'épaisseur inférieure à 2000 Å. Cette préparation est longue et délicate. L'échantillon est aminci mécaniquement et subit ensuite un usinage ionique jusqu'à l'obtention d'un trou dont les bords peuvent être étudiés.

La microscopie électronique basse résolution est bien adaptée à l'étude des hétérostructures élaborées par épitaxie. La section efficace de diffusion élastique des électrons est proportionnelle au carré du numéro atomique des atomes. On observe ainsi un contraste entre des couches de compositions différentes. Ce contraste est aussi modifié par la contrainte éventuelle des couches.

Dans le cas d'îlots quantiques, l'observation en vue plane permet la mesure de leur diamètre, que nous comparerons à celui observé par microscopie à force atomique. La présence de défauts est aussi mise en évidence: le contraste des îlots qui ne sont pas relaxés présente deux lobes, un blanc et l'autre noir. Les îlots relaxés plastiquement, avec création de dislocations, sont identifiés par la présence de moirés. Ce contraste, dû à la superposition de deux réseaux périodiques distincts, indique que l'îlot a pris un paramètre de maille différent de celui du substrat. La mesure de la période des moirés donne la différence des distances inter-réticulaires dans une direction définie par la configuration de l'observation. On peut en déduire le désaccord de maille entre les deux matériaux. En section transverse on observe le profil des îlots, ainsi que la présence éventuelle de dislocations.

La microscopie électronique haute résolution est plus délicate à mettre en œuvre. En effet la résolution à atteindre est inférieure à la distance entre plans observés. De plus, les zones d'observations de l'échantillon doivent être encore plus minces qu'en microscopie électronique classique. Cette technique est utilisée pour des échantillons en section transverse et permet d'observer le réseau cristallin, le contraste de l'image correspondant dans ce cas à la

périodicité des colonnes atomiques suivant la direction du faisceau électronique. Il est alors possible de mesurer les distances entre atomes et d'en déduire le champ des déplacements réels dans l'îlot.

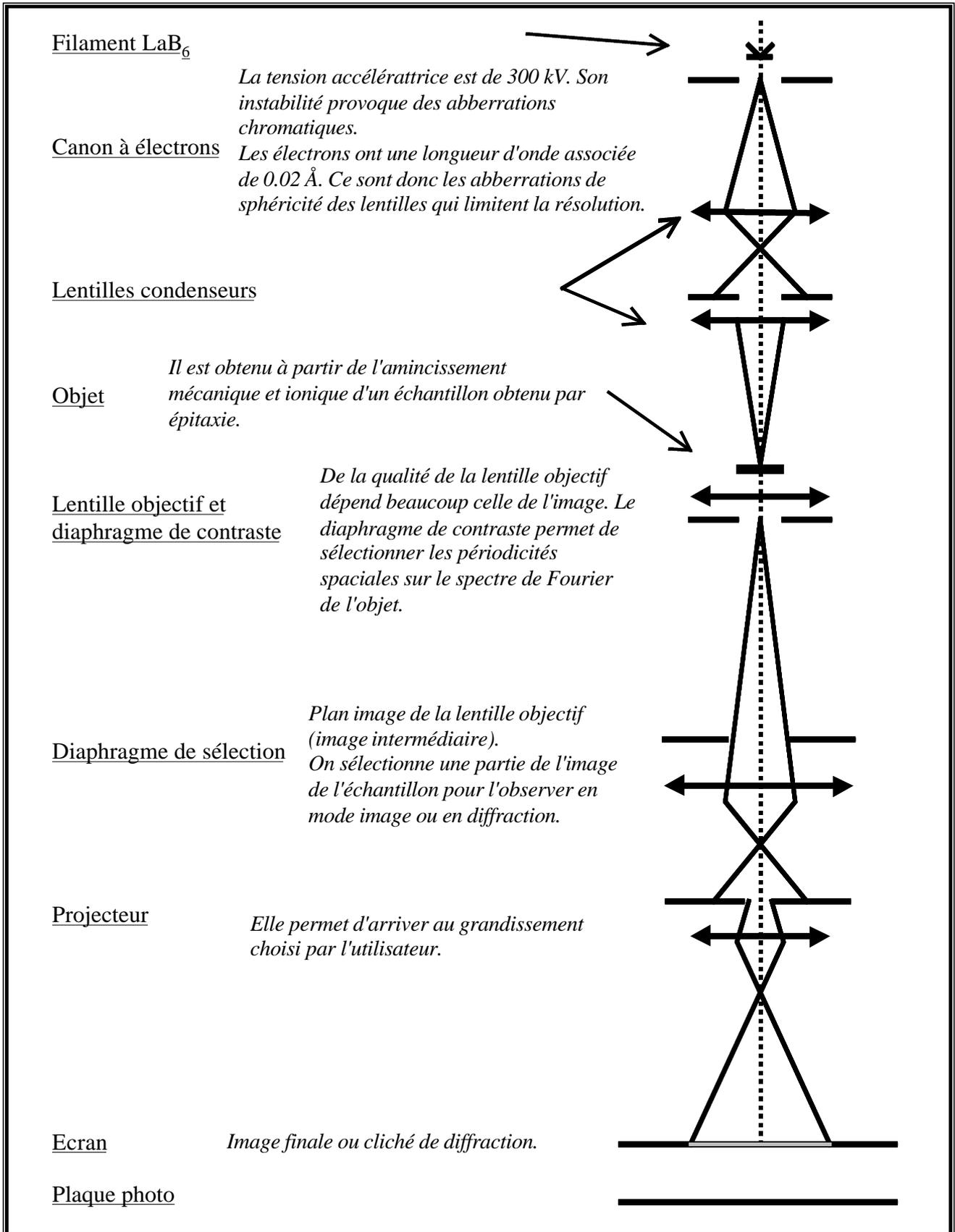


Figure 9: Schéma de principe d'un microscope électronique en transmission.

5. La microscopie à force atomique.

La microscopie à force atomique est beaucoup moins lourde à mettre en œuvre que la microscopie électronique en transmission et elle apporte des informations statistiques sur la taille des îlots car elle permet de sonder des zones de quelques centaines d'angströms à quelques μm de côté.

5.1. Principe de mesure.

Le schéma de principe d'un microscope à force atomique est donné figure 10. Les différents éléments constitutifs sont un tube piézoélectrique qui déplace l'échantillon sous la pointe de mesure, un système de détection composé d'une diode laser et de deux diodes de détection. L'asservissement du microscope et l'acquisition des images sont informatisés.

L'échantillon est monté sur un tube piézo-électrique. Celui-ci est utilisé pour balayer la surface (déplacement suivant les directions x et y) étudiée à l'aide d'une pointe fixe. Il est aussi utilisé pour déplacer l'échantillon suivant z de manière à conserver une distance constante entre la surface et la pointe.

La pointe est fixée sur un microlevier. Conserver une distance pointe-surface constante se fait en travaillant avec un fléchissement constant du microlevier, dû à la force entre la pointe et la surface. On suppose en effet que l'interaction pointe-surface est constante sur l'échantillon, et ne dépend pas de la composition de la couche étudiée. Le fléchissement est mesuré par une différence de signal entre deux diodes A et B après réflexion d'un faisceau laser sur le microlevier.

En chaque point de l'image un système de détection mesure le déplacement de la pointe à la surface de l'échantillon et envoie un signal retour vers le tube piézo-électrique. Celui-ci déplace l'échantillon de façon à corriger la distance pointe-échantillon et la maintenir constante (figure 11a). Ainsi pour construire l'image, la pointe se déplace suivant x ou y sur une ligne en suivant le profil de l'échantillon point après point. C'est la direction de balayage rapide. Après chaque aller-retour la pointe se décale suivant la direction de balayage lent (figure 11b). Toutes les images présentées ici comptent 256 points par ligne. La résolution latérale dépend donc de la taille de l'image: pour une image de $1 \mu\text{m}$ de côté la distance entre deux points est de 39.0 \AA .

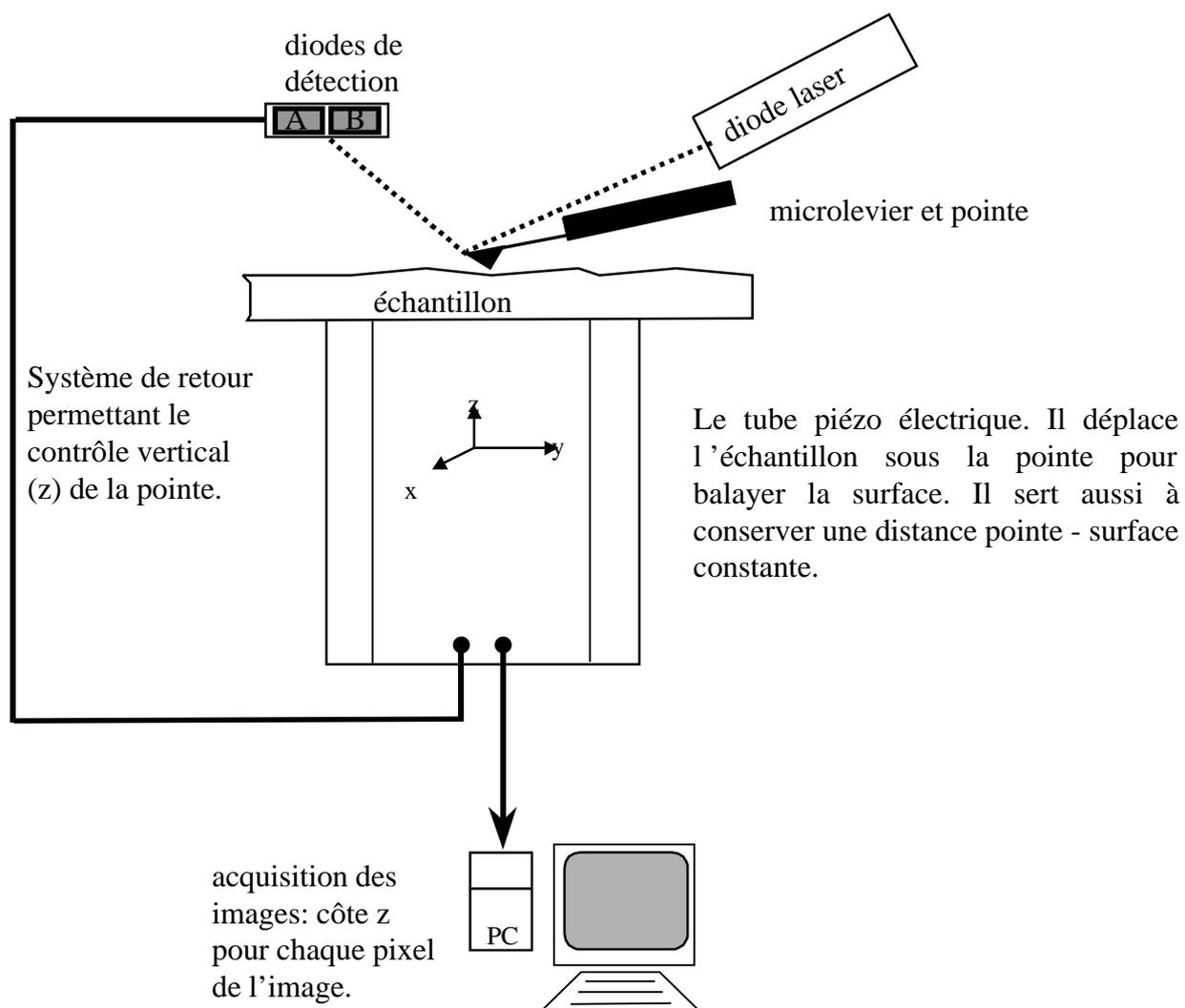


Figure 10: Schéma de principe du microscope à force atomique.

5.2. Les différents modes d'observation.

La figure 12 montre la variation de la force entre la pointe et la surface en fonction de la distance. Il existe deux plages de distance pointe-surface sur lesquelles la force varie de façon monotone et suffisamment rapidement avec la distance. Chacun de ces domaines correspond à un mode de fonctionnement du microscope. Il s'agit du mode contact lorsque la pointe est la plus proche de la surface. La distance pointe-surface est de l'ordre de quelques Å. Dans ce mode interviennent des forces répulsives à courte portée dues à l'interaction des nuages électroniques de la pointe et de la surface. Elles sont exprimées en fonction de la distance, notée d , sous la forme: $F \propto 1 / d^n$ avec $n \geq 8$ et sont comprises entre 10^{-6} et 10^{-8} N. Le fléchissement du levier est alors assez important (en comparaison avec le deuxième mode), ce qui permet la mesure directe de la différence de signal A-B entre les deux diodes. On utilise pour cela un microlevier souple dont la constante de force est comprise entre 0.26 et 2.1 N / m. Dans ce mode, la pointe est proche de l'échantillon. L'interaction pointe-surface étant importante, il y a donc peu de bruit sur les images. Cependant le risque d'altérer la pointe est important et la taille des images ne doit pas dépasser quelques μm pour que la différence de hauteur entre deux points reste faible.

Le mode non-contact est utilisé dans le deuxième domaine, présenté figure 12. La distance pointe surface est comprise entre 10 et 100 Å, ce qui donne une précision théorique plus faible que celle du mode contact. Les forces attractives de type Van der Waals sont mises en jeu. Elles sont de l'ordre de 10^{-12} N et donc beaucoup plus faibles que les forces répulsives qui interviennent dans le mode contact. La mesure de la distance pointe-surface est indirecte. On fait vibrer le microlevier à l'aide d'une cale piézo-électrique soumise à une tension sinusoïdale. La fréquence choisie est proche de la fréquence de résonance du microlevier comprise entre 80 et 320 kHz en fonction du type de levier. L'amplitude de la vibration change alors avec le gradient de la force et est mesurée sur les diodes de détection. Des leviers dont la constante de force est comprise entre 2.1 et 17 N / m sont utilisés. Le mode non-contact est donc destiné à des images de plus grande taille, sans risque important d'abîmer la pointe. Cependant la mesure de la distance entre la pointe et la surface étant indirecte, le rapport signal sur bruit est plus faible. Il est aussi plus délicat à utiliser, la fréquence de vibration ainsi que son amplitude doivent être ajustées avant d'observer l'échantillon. De plus la distance pointe-surface étant plus grande la précision est théoriquement inférieure. Nous n'avons cependant pas observé expérimentalement de différence notable.

Le tableau ci-dessous résume la comparaison de ces deux modes d'observation.

	contact	non-contact
précision	=	
bruit	<	
taille des images	<	

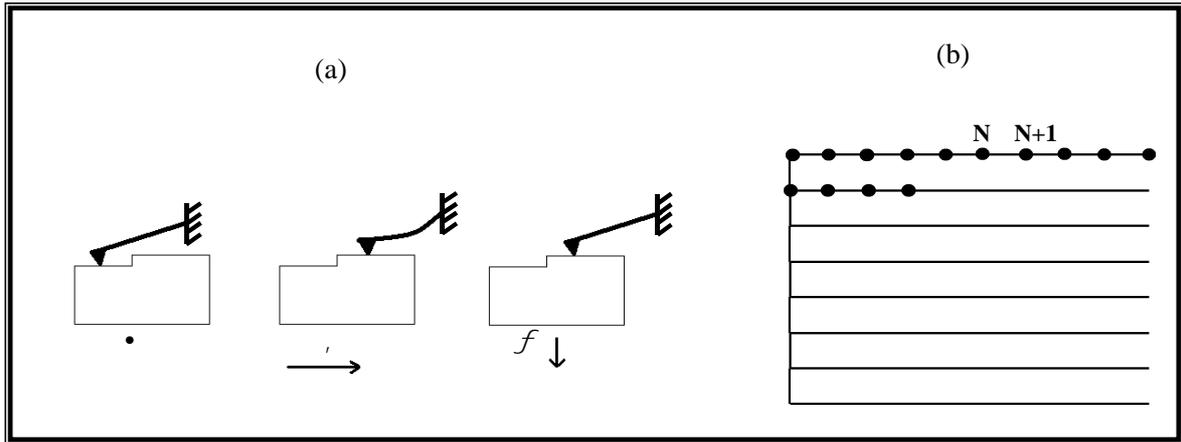


Figure 11: (a) • mesure de la côte z au point N de l'image.
 , déplacement de l'échantillon au point $N+1$.
 f correction en z : $Dz = z_{N+1} - z_N$. On se retrouve alors dans la situation • .
 (b) Balayage de la surface de l'échantillon par la pointe. En chaque point le microscope répète les étapes • , , et f .

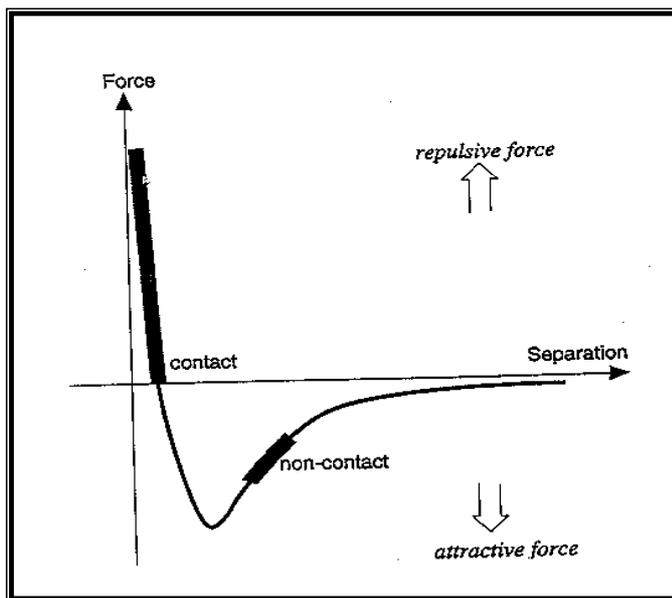


Figure 12: Utilisation des modes contact et non contact en microscopie à force atomique. La courbe représente la force qui s'exerce entre la pointe et la surface en fonction de la distance qui les sépare. Dans le mode contact la distance pointe-surface est d'une dizaine d'angströms et dans le mode non-contact de plusieurs dizaines d'angströms.

5.3. Calibrations de l'appareil.

Le microscope à force atomique donne des résultats quantitatifs sur la densité, la répartition et la géométrie dans le plan ainsi que la hauteur des îlots. Les déplacements se font à l'aide d'un scanner comme décrit précédemment. Au premier ordre le déplacement obtenu par le scanner est proportionnel à la tension appliquée au piézo-électrique. Il est cependant nécessaire de tenir compte des non-linéarités (cycle d'hystérésis). Les différents coefficients de l'effet piézo-électrique varient avec le temps et suivant l'utilisation du microscope. Il est donc nécessaire de calibrer périodiquement le tube piézo-électrique. Pour ce faire on suit une procédure spécifiée par le fabricant. Pour la calibration du déplacement suivant x et y , on utilise un réseau sinusoïdal de pas $1\ \mu\text{m}$ caractérisé par AFM (figure 13). La période mesurée suivant x et y est utilisée pour corriger les coefficients du premier ordre. On suppose que les autres coefficients (deuxième ordre et au-delà) varient peu.

Pour la calibration suivant z , la difficulté est de se procurer un échantillon présentant des motifs dont la hauteur suivant z est bien connue. La hauteur de ces motifs doit être du même ordre de grandeur que les objets que l'on veut caractériser. Nous avons utilisé des billes de latex de diamètres 88, 173 et 300 nm^{Li.91, Boisset.94} en solution dans de l'eau désionisée. La solution est déposée sur une surface de mica fraîchement clivée. On laisse ensuite l'eau s'évaporer à l'air libre. Les billes forment alors par endroits un réseau hexagonal d'une monocouche. La figure 14 montre une zone d'un échantillon de calibration observé par AFM. Les billes sont arrangées sur un plan de manière remarquable. Au centre il y a deux puis plusieurs monocouches de billes. La mesure de la hauteur entre le substrat et le sommet des billes est utilisée pour calibrer l'appareil suivant z comme indiqué figure 15.

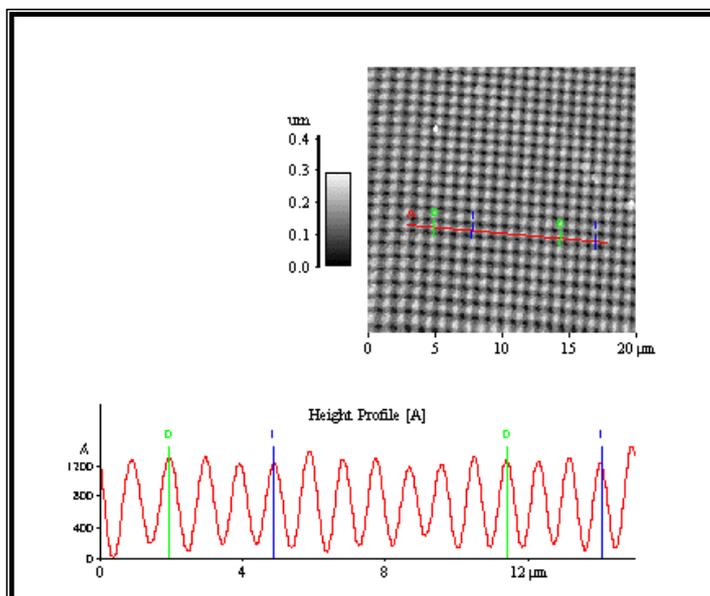


Figure 13: calibration du scanner 100 μm avec un réseau sinusoïdal de pas 1 μm fourni par le fabricant du microscope.

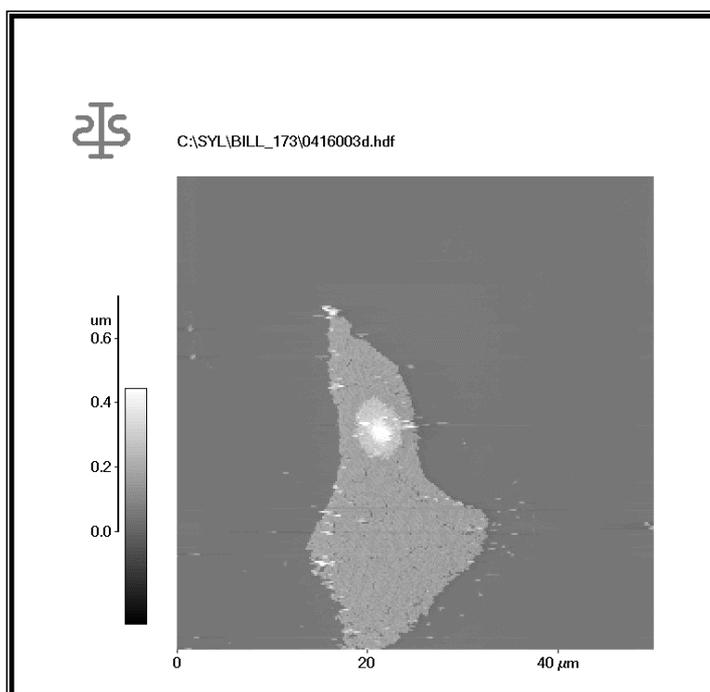


Figure 14: Monocouche de billes de LATEX de 173 nm de diamètre sur un substrat de mica. Au centre il y a un deuxième plan de billes (zone plus claire). La tâche blanche centrale est un agrégat de billes.

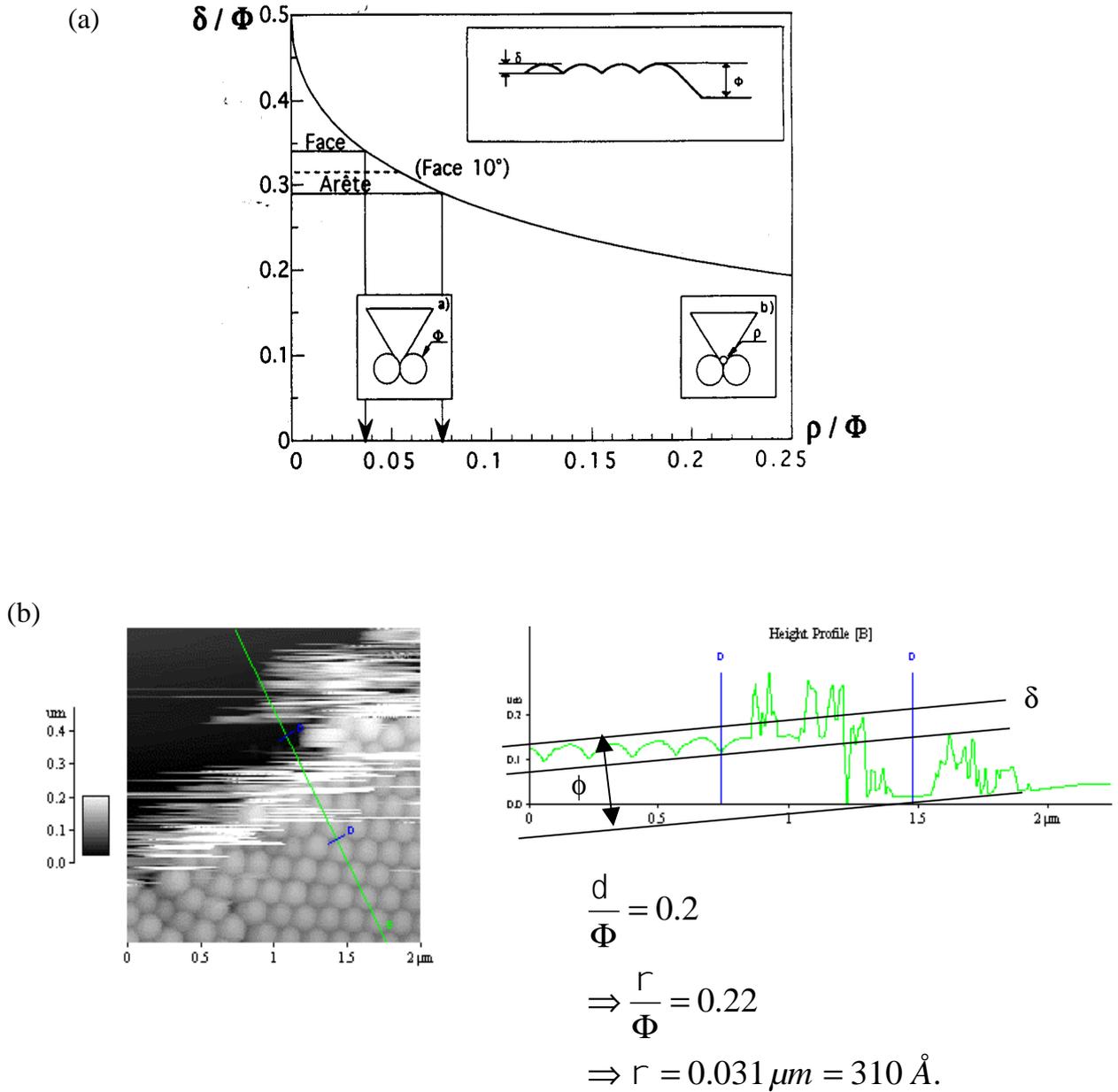


Figure 15: La mesure du diamètre Φ d'un réseau de billes permet la calibration du scanner suivant z . Il est aussi possible de donner une estimation du rayon de courbure (diamètre r) de la pointe à partir de la mesure du diamètre Φ des billes et de la profondeur d entre celles-ci.
 (a) A partir du profil d'un réseau de billes on peut calculer le diamètre de la pointe AFM. La figure représente la profondeur du profil des billes en fonction du diamètre de la pointe, les distances étant normalisées au diamètre des billes. ^{Boisset,94}
 (b) Image et profil suivant une ligne d'une zone de l'image précédente. On détermine le diamètre de la pointe égal ici à 310 Å.

5.4. L'effet de la pointe.

Une des principales difficultés de la microscopie à force atomique tient à l'influence de la pointe. En effet la mesure de la topologie d'un échantillon dépend fortement de la géométrie de la pointe ^{Keller.91, Grütter.92, Montelius.93}. Les images obtenues sont le résultat d'une convolution entre la pointe et la surface, représentée figure 16. Durant l'acquisition d'une image, la pointe peut être altérée, soit par une poussière, soit ébréchée par une rugosité abrupte de l'échantillon. Il est donc nécessaire de pouvoir contrôler l'état de la pointe. La méthode la plus directe consiste à utiliser un échantillon témoin connu et comparer les images avec celles obtenues grâce à une pointe de bonne qualité.

Il est aussi possible d'estimer le diamètre de la pointe à partir des images obtenues avec un réseau de billes de LATEX ^{Boisset.94}. Cette méthode a été utilisée à partir des images utilisées pour la calibration suivant z . Le profil présenté figure 15 permet de calibrer le microscope suivant z mais aussi d'estimer le diamètre moyen de la pointe à partir de la profondeur atteinte par la pointe entre les billes. Le graphe figure 15a représente le diamètre de la pointe en fonction du rapport (profondeur δ / diamètre) des billes. Nous avons mesuré des diamètres inférieurs à 30 nm, le fabricant ayant donné une borne supérieure de 50 nm.

L'effet de la pointe dépend du profil des îlots et devient important lorsque le rapport hauteur/diamètre augmente. Dans notre cas l'influence de la pointe est limitée, les objets étudiés étant généralement très plats (hauteur / diamètre < 0.2). Nous obtenons cependant une borne supérieure pour le diamètre des îlots, qu'il faut comparer aux valeurs mesurées par microscopie électronique en transmission.

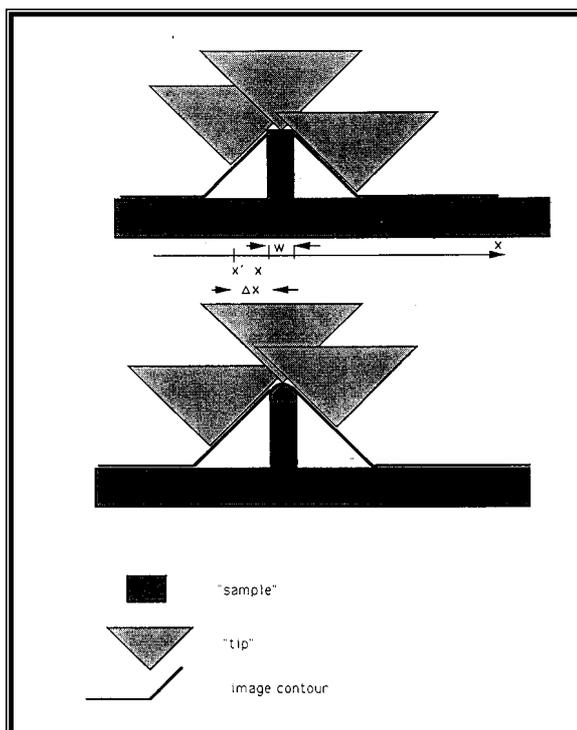


Figure 16: Représentation schématique de la convolution entre la pointe et la surface. w est la largeur du motif observé et Δx est la distance latérale entre le point de contact apparent x' et le point réel x . Le trait plein représente le profil mesuré par la pointe pour un plot carré et un plot arrondi.

5.5. Le traitement et l'analyse des images.

Les données recueillies par le microscope nous donnent la cote z d'une zone carrée en chaque point du balayage sur 256 lignes et 256 colonnes, soit 65536 mesures. On peut ainsi donner une image tridimensionnelle de la surface, soit en perspective soit en représentant la cote z par le niveau de gris. Concrètement les zones claires représentent les îlots, sur un fond sombre (figure 17).

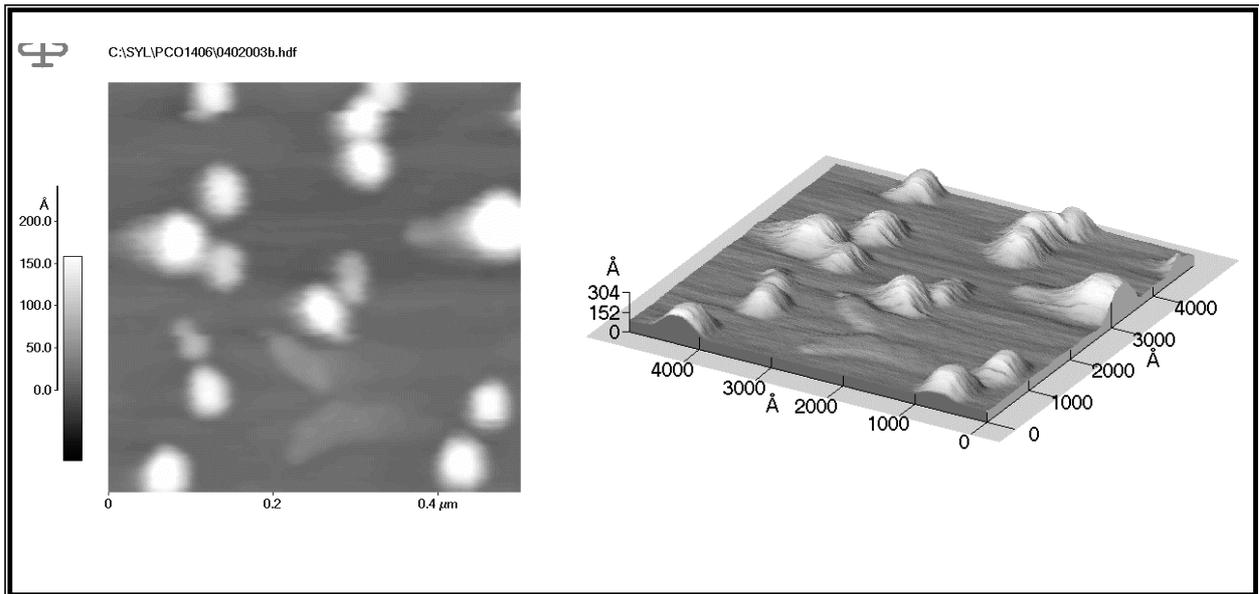


Figure 17: Représentation d'une image AFM en niveaux de gris et en perspective.

Traitement des images:

La première étape du traitement des images consiste à supprimer le fond. Il est dû pour partie à l'échantillon qui peut être incliné (1^{er} ordre) et à l'utilisation d'un tube piézo-électrique pour le balayage (2^{ième} et 3^{ième} ordre). Sur une image de plusieurs μm de côté on ajuste donc le fond par un polynôme de degré 3 pour les images de côté supérieur à 2 μm et de degré 2 pour celles de côté inférieur à 2 μm . Pour des images encore plus petites (inférieures ou égales à 0.5 μm) un polynôme de degré 1 (plan incliné) suffit.

L'analyse des images:

Nous avons mis au point en collaboration avec Olivier Déforges et Kidiyo Kpalma du laboratoire d'Architectures et de Traitement des Images Spatio-Temporelles (ARTIST) de l'INSA un programme de décomposition morphologique^{Déforges.97} qui permet de réaliser des analyses statistiques sur la densité et les dimensions des îlots. Je ne développerai pas ici le principe de cette méthode d'analyse utilisée en traitement d'images. A partir des résultats, il est possible d'établir des histogrammes des hauteurs et des diamètres des îlots. Cependant la

mesure du diamètre est délicate, elle dépend en effet de coefficients de détection qui diffèrent d'une image à l'autre. Je ne présenterai donc les mesures du diamètre qu'à titre indicatif. On peut dessiner une "carte du ciel" des îlots en les représentant par des points sur un graphe qui ont le diamètre pour abscisse et la hauteur pour ordonnée. On détermine aussi la densité des îlots, le pourcentage de la surface qu'ils occupent, et le volume qu'ils représentent.

La transformée de Fourier bidimensionnelle de l'image donne une carte des fréquences spatiales de l'image AFM. S'il n'y a pas d'organisation des îlots on obtient une tache blanche centrale. Dans le cas d'un arrangement en réseau apparaissent des taches satellites caractéristiques de la périodicité de l'image de départ. Sur la figure 18 sont représentées une image d'AFM d'une couche d'îlots (les points clairs) et la transformée de Fourier correspondante. Les quatre taches blanches que l'on distingue sur la transformée de Fourier proviennent d'une périodicité suivant des directions à 45° des côtés de l'image de départ. Cette double périodicité provient d'un alignement des îlots suivant ces deux directions. Les îlots sont donc organisés en un réseau carré.

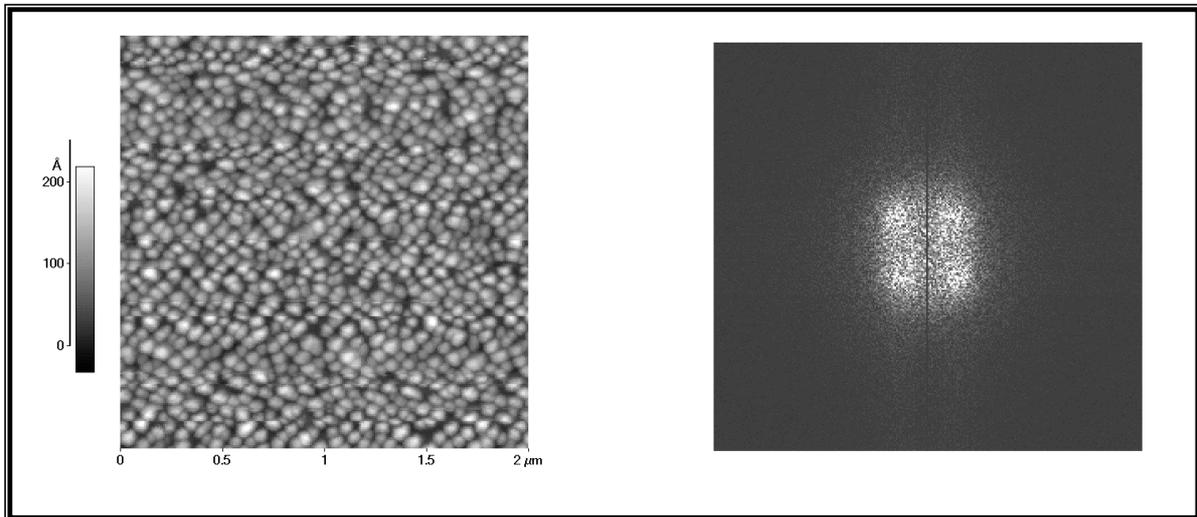


Figure 18: Image AFM représentée en niveaux de gris et la transformée de Fourier correspondante. On constate que le début de périodicité ou d'arrangement latéral des îlots se traduit par quatre taches caractéristiques d'un réseau carré.

Le tableau ci-dessous résume les avantages respectifs des deux techniques de microscopie utilisées pour cette étude pour l'observation des îlots.

Microscopie électronique en transmission	Microscopie électronique en transmission
- visualisation des dislocations	- facilité de mise en œuvre
- meilleure précision sur les dimensions et la forme des îlots	- rapidité d'acquisition des images
	- statistiques des tailles

- Boisset.⁹⁴ M.-C. Boisset et C. Frétigny, "Monocouche de billes de latex ou de silice: utilisation pour la calibration et pour le contrôle des pointes en AFM", *Microsc. Microanal. Microstruct.* **5** (1994), 71-77.
- Cho.⁷⁵ A.Y.Cho et J.R.Arthur, *Proc.Solid State Chem.* **10**, p.157 (1975).
- Déforges.⁹⁷ O.Déforges, N.Normand, *International Conf. On Image Processing '97*, Santa-Barbara (1997).
- Gendry.⁹² M.Gendry, V.Drouot, C.Santinelli and G.Hollinger, "Critical thicknesses of highly strained InGaAs layers grown on InP by molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* **60** (18), pp.2249-2251 (1992).
- Grandjean.⁹⁴ N.Grandjean, "Phénomènes de surface en croissance épitaxiale fortement contrainte de (In,Ga)As sur GaAs: relaxation élastique, transition 2D-3D, effet surfactant.", Thèse (1994).
- Grütter.⁹² P.Grütter et col., *Appl.Phys.Lett.* **60**, p.2741 (1992).
- Keller.⁹¹ D.Keller, *Surf.science* **253**, pp.353-364 (1991).
- Lagally.⁹³ M.G.Lagally and D.E.Savage, *MRS Bulletin*, Jan.1993.
- Lambert.⁹⁸ B. Lambert, A. Le Corre, V. Drouot, H.L'Haridon, and S. Loualiche, "High photoluminescence efficiency of InAs/InP self-assembled quantum dots emitting at 1.5-1.6 μm ", *Semicon. Sci. Technol.* **13**, pp. 143-145 (1998).
- Ledentsov.⁹⁷ N.N.Ledentsov, N.Kirstaedter, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, I.V.Kochnev, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Three-dimensional arrays of self-ordered quantum dots for laser applications.", *Microelectronics Journal* **28**, pp.915-931 (1997).
- Lee.⁹⁸ Hao Lee, R.Lowe-Webb, W.Yang and P.C.Sercel, "Determination of the shape of self-organized InAs/GaAs quantum dots by reflection high energy electron diffraction.", *Appl.phys.lett.* **72**(7), pp.812-814 (1998).
- Li.⁹¹ Y. Li and S. M. Lindsay, "Polystyrene latex particules as a size calibration for the atomic force microscope", *Rev. Sci. Instrum.* **62**, p. 2630 (1991).
- Montelius.⁹³ L.Montelius and J.O.Tegenfeldt, "Direct observation of the tip in scanning probe microscopy", *Appl.Phys.Lett.* **62**, pp.2628-2630 (1993).
- Neave.⁸³ J.H.Neave, B.A.Joyce, P.J.Dobson and N.Norton, *Appl.Phys.A* **31**, 1 (1983).
- Ozanyan.⁹⁷ K.B.Ozanyan, P.J.Parbrook et al., "*In situ* monitoring of the surface reconstructions on InP(001) prepared by molecular beam epitaxy.", *J.Appl.Phys.* **82**(1), pp.474-476 (1997).
- Panish.⁸⁵ M.B.Panish, H.Temkin and S.Sumski, *J.Vac.Sci.Technol. B* **3** (1985).
- Parker.⁸⁵ "The technology and physics of molecular beam epitaxy" edited by E.H.C.Parker, Plenum Press, New York (1985).

Chapitre III : îlots quantiques cohérents obtenus par épitaxie: état de l'art.

En 1985 Goldstein et coll.^{Goldstein.85} sont les premiers à observer dans des multipuits contraints InAs/GaAs une croissance 3D en îlots sans création de dislocations. Eaglesham et Cerullo^{Eaglesham.90} ont confirmé en 1990 que la nucléation d'îlots de Ge sur substrat Si précède l'apparition de dislocations. En effet la configuration 3D permet une relaxation élastique partielle de la contrainte (figure 1) et diminue ainsi l'énergie élastique stockée dans une couche contrainte. Les dislocations apparaissent dans les îlots au-delà d'une taille critique^{Eaglesham.90, Drucker.93}.

Les systèmes à fort désaccord paramétrique InAs/GaAs (7.2 %) et Ge/Si (4 %) ont ainsi été pressentis pour la fabrication par épitaxie de nanostructures cohérentes de petites dimensions par épitaxie. Les premières études structurales sur des couches épitaxiées de InAs^{Moison.94, Leonard.94} et de Ga_{0,5}In_{0,5}As^{Leonard.93, Oshinowo.94} déposées sur substrat GaAs ont montré une faible dispersion des tailles des îlots de l'ordre de 10 %, pour un diamètre mesuré de 120 à 300 Å suivant les équipes. Dans le cas d'InAs/GaAs la transition 2D-3D du mode de croissance survient au-delà d'une épaisseur critique de 1.5-1.8 MC. Elle peut avoir lieu lors d'un arrêt de croissance qui suit le dépôt d'InAs. Avant la transition on observe la photoluminescence caractéristique d'un puits d'InAs d'une ou deux monocouches. Après la transition, le spectre de photoluminescence se décale vers les basses énergies et s'élargit, les îlots de différentes tailles émettant à des longueurs d'onde différentes^{Leonard.93, Marzin.94}. Ces premières études structurales et optiques ont ouvert un nouveau champ d'investigation pour la réalisation de boîtes quantiques émettrices de lumière.

La possibilité d'exploiter les propriétés de ces boîtes dans des composants tels que les lasers a incité à vouloir contrôler le phénomène de formation spontanée des îlots et donc de s'appuyer sur des modèles pour comprendre leur formation. Historiquement la croissance épitaxiale de films minces a été classée en trois catégories: Frank-Van der Merwe (croissance bidimensionnelle ou 2D), Volmer-Weber (tridimensionnelle ou 3D) et Stranski-Krastanov (2D puis 3D)^{Kern.78}. Ces trois modes de croissance sont prévus et décrits par le modèle thermodynamique de Wulf présenté dans la première partie de ce chapitre. Il prévoit les formes d'équilibre d'un cristal A sur un substrat B en fonction des énergies de surface et d'interface de A et de B. La croissance d'îlots cohérents relève donc plus particulièrement du mode Stranski-Krastanov.

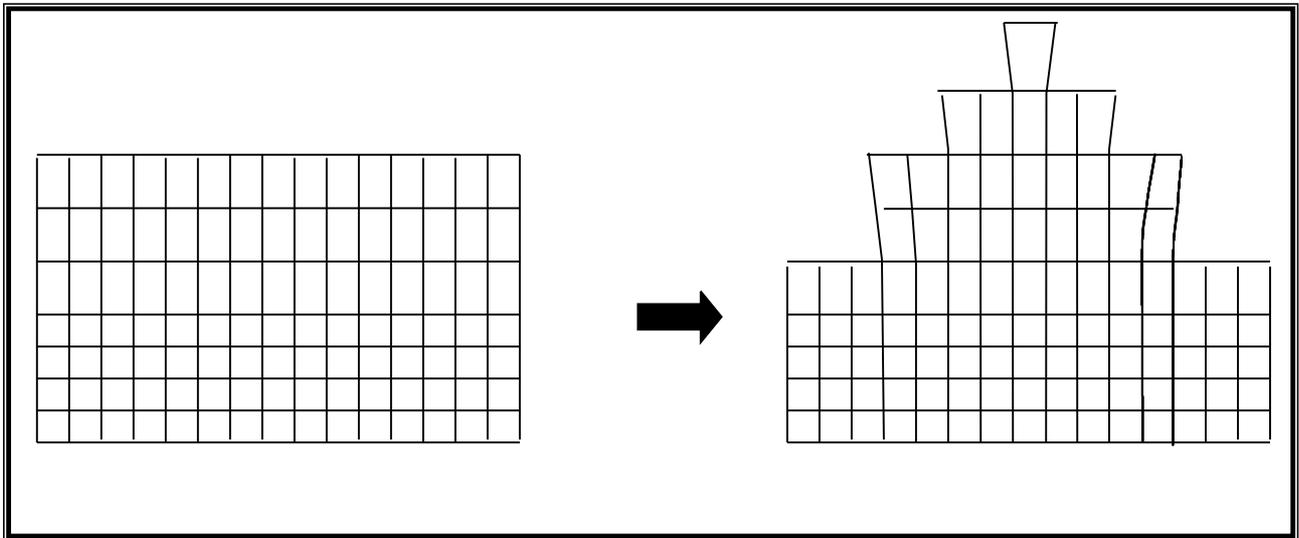


Figure 1: Relaxation élastique d'une couche contrainte en îlot.

1. Modèle thermodynamique de croissance épitaxiale.

Ce modèle permet de faire des prédictions générales sur les différents modes de croissance épitaxiale d'un matériau A sur un substrat B ^{Kern.78}. Trois modes différents sont identifiés: un mode de croissance bidimensionnelle (Frank-Van der Merwe), un mode dit "Stranski-Krastanov" dans lequel une croissance tridimensionnelle succède à une croissance bidimensionnelle, et enfin un mode de croissance tridimensionnelle pure baptisé Volmer-Weber.

Dans le modèle, sont tout d'abord considérées les formes d'équilibre d'un dépôt de matériau A sur un substrat B, sous pression d'une phase dispersée de A. $\Delta\mu$ est la variation du potentiel chimique entre une molécule de la phase dispersée de A et du dépôt et v le volume d'une molécule du cristal de A. Le cristal A est un polyèdre convexe défini par ses faces de surface S_i , situées à la distance h_i d'un point fixe (figure 2). Les différentes configurations (formes du cristal) représentées figure 2 sont fonction des enthalpies libres de surface, notée σ_i pour le matériau i . L'enthalpie libre de l'interface entre A et B est notée σ_{AB} . On note $\beta = \sigma_A + \sigma_B - \sigma_{AB}$, le travail isotherme réversible pour séparer le cristal A du substrat B jusqu'à l'infini. La minimisation de l'enthalpie libre définie à température, pression et nombre de particules constants se traduit par le théorème de Wulff:

$$\frac{S_i}{h_i} = \dots = \frac{S_A - b}{h_{AB}} = \frac{\Delta\mu}{2v} \quad (1)$$

- Lorsque $\beta=0$, $\sigma_{AB} = \sigma_A + \sigma_B$. L'enthalpie libre d'interface entre A et B est la somme des enthalpies libres de surface de A et de B. Il n'y a donc pas d'adhésion entre les deux

cristaux. Le dépôt croît comme en l'absence du substrat (figure 2a) et la croissance est donc tridimensionnelle.

- Dans le cas où $\beta > 0$ il y a adhésion de A sur B. D'après la formule (1), h_{AB} diminue lorsque β augmente (figure 2b). Lorsque β tend vers σ_A , h_{AB} tend vers zéro et l'équilibre correspond à un demi polyèdre. h_{AB} est négatif (voir figure 2c) pour $\sigma_A < \beta < 2\sigma_A$. Dans ce cas la croissance est toujours tridimensionnelle.
- $\beta = 2\sigma_A$ correspond à l'adhésion de A sur lui-même. On ne plus parler de polyèdre pour le cristal A car il n'y a plus de faces latérales. La croissance est dite bidimensionnelle (2D).
- Au-delà le modèle précédent n'est plus valide. Le cas $\beta \geq 2\sigma_A$ implique que l'on soit à sous-saturation $\Delta\mu < 0$. L'expression de l'enthalpie libre prend une nouvelle forme correspondant au cas de la croissance bidimensionnelle ^{Kern.78}.

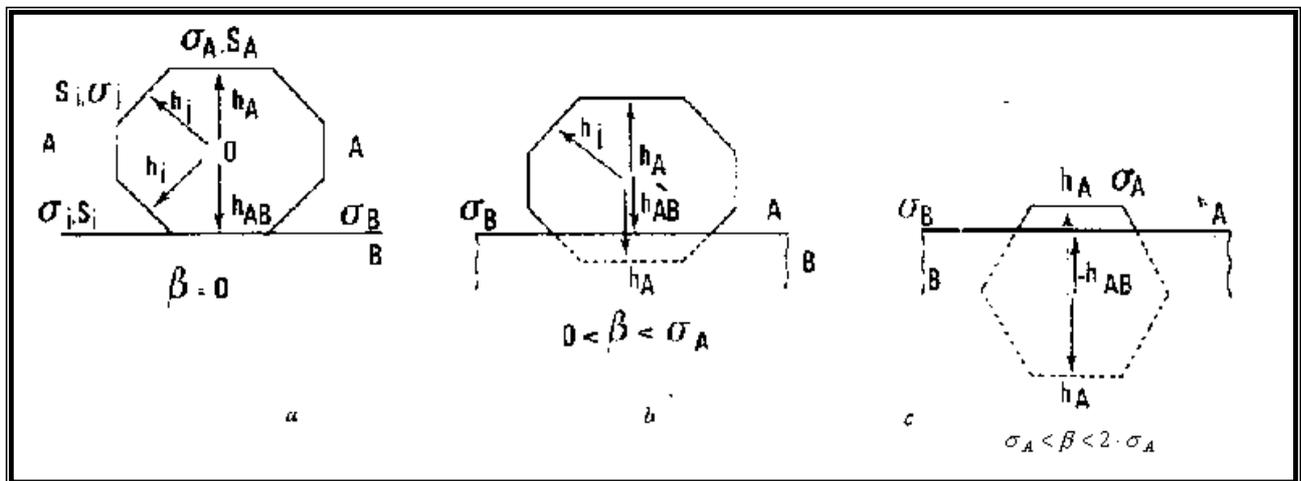


Figure 2: Formes d'équilibre d'un dépôt A sur un substrat B en fonction de l'adhésion b de A sur B. a) est le cas où le cristal A se forme en l'absence de substrat $b=0$. b) et c) où $b > 0$. [d'après R.Kern, "Croissance épitaxiale", Bull.Minéral. 101 (1978), p.202-233.]

Ce phénomène peut être compris intuitivement en faisant l'analogie avec le mouillage d'une goutte d'eau. Sur une surface hydrophobe la goutte d'eau est sphérique (vêtements imperméables) alors qu'elle prend la forme d'une calotte sphérique sur une surface hydrophile. Une surface de mica fraîchement clivée est très hydrophile. Dans ce cas une goutte d'eau déposée mouille entièrement la surface.

Une illustration concrète de la croissance épitaxiale est donnée par le modèle de Kossel considérant deux cristaux cubiques simples monoatomiques. On note Φ_{ij} l'énergie de liaison entre deux atomes. On a alors $\beta = \Phi_{AB}/a^2$, $\sigma_A = \Phi_{AA}/2a^2$, $\sigma_B = \Phi_{BB}/2a^2$, avec a^2 l'aire occupée par

un atome (voir figure 3). Pour la croissance bidimensionnelle, la condition ($\beta \geq 2\sigma_A$) est équivalente à $\Phi_{AB} \geq \Phi_{AA}$, c'est à dire que la liaison A-B est plus forte que la liaison A-A. La condition de croissance tridimensionnelle ($\beta < 2\sigma_A$) est quant à elle équivalente à $\Phi_{AB} < \Phi_{AA}$. Pour que ce modèle soit réaliste, l'interaction entre atomes au-delà du premier voisin est prise aussi en compte. On note $\Phi_{AB(i)}$ l'énergie d'interaction de la ième couche avec la matière sous-jacente.

Dans le cas de la croissance d'un matériau contraint, il faut aussi ajouter un terme d'énergie élastique. Les conditions de croissance bidimensionnelle peuvent se vérifier pour les premières couches. Le paramètre de maille du dépôt A varie progressivement pour les couches successives du paramètre du cristal B vers son paramètre de matériau massif. L'énergie élastique correspondante tend vers zéro à grande distance du substrat. L'éloignement du substrat et la relaxation élastique des couches entraînent alors un basculement dans le mode de croissance tridimensionnel: le mode de croissance est donc de type "Stranski-Krastanov" (figure 4).

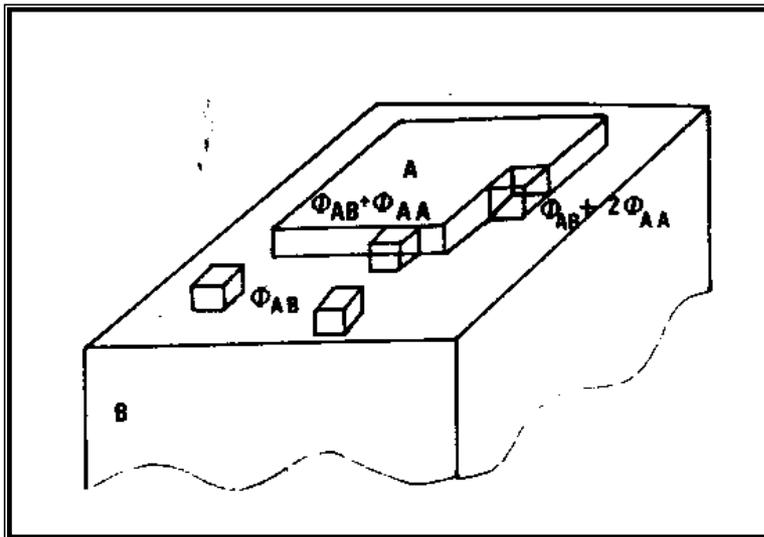


Figure 3: Modèle de Kossel d'un cristal A déposé sur un cristal B. Energie de liaison d'un atome isolé Φ_{AB} , d'un atome du bord d'un gradin $\Phi_{AB} + \Phi_{AA}$, d'un atome dans le pas répétable $\Phi_{AB} + 2\Phi_{AA}$. [d'après R.Kern, "Croissance épitaxiale", Bull.Minéral. 101 (1978), p.202-233.]

2. La relaxation élastique dans le système (Ga)InAs/GaAs.

2.1. Epaisseur critique, couche de mouillage et densité des îlots.

La croissance d'îlots d'InAs sur substrat GaAs orienté (001) fut parmi les premières à être étudiées. La relaxation élastique est observée au-delà d'une épaisseur nominale déposée Θ comprise entre 1.5 MC et 1.8 MC^{Moison.94, Leonard.94, Kobayashi.96}. L'étude par microscopie par effet tunnel (STM) des premiers stades de la croissance 3D montre l'apparition de plateaux ou de fils d'une monocouche de hauteur^{Snyder.91, Cirilin.95, Kitabayashi.95, Ramachandran.97} qui sont les précurseurs des îlots 3D. La formation de ces plateaux 2D provient de la relaxation élastique en bord de marche, cette dernière étant maximale pour une épaisseur nominale déposée égale à un nombre demi entier de monocouches^{Massies.93}. On peut la mettre en rapport avec la valeur de l'épaisseur critique de 1.5 à 1.8 MC mesurée pour la croissance de InAs sur GaAs.

La densité des îlots d'InAs au-delà de l'épaisseur critique Θ_c est proportionnelle à la quantité $(\Theta - \Theta_c)^x$ avec x proche de 1.75 d'après des études menées par Leon et coll.^{Leon.95} et Kobayashi et coll.^{Kobayashi.96}. Elle atteint 1000/ μm^2 pour 2 MC d'InAs déposées. L'épaisseur de la couche de mouillage après la formation des îlots est comprise entre 1 et 2 MC^{Nabetani.94, Leon.95, Ramachandran.97}.

2.2. Taille et forme des îlots.

Pour quelques dixièmes de monocouche au-delà de l'épaisseur critique la densité est de quelques dizaines d'îlots par μm^2 et leur diamètre est compris entre 200 et 300 Å. La dispersion des tailles mesurée expérimentalement est de l'ordre de $\pm 10\%$ ^{Leonard.94, Moison.94}. Différentes formes d'îlots ont été observées selon les équipes et les facettes identifiées à partir du RHEED in situ ou de clichés de microscopie à force atomique peuvent être: {113} ou {114}^{Nabetani.94, Hasegawa.98}, {110}^{Ruvimov.95} ou {136}^{Lee.98}. Le rapport hauteur sur diamètre est compris entre $\frac{1}{4}$ et $\frac{1}{2}$. A ce premier régime d'îlots succède un deuxième régime avec une densité plus importante pouvant atteindre 1000 îlots/ μm^2 ^{Nabetani.94}, les tailles latérales des îlots diminuant à 100-200 Å. Au-delà de 2-3 MC on observe l'apparition d'îlots beaucoup plus gros: il s'agit d'îlots relaxés plastiquement par création de dislocations. Ces dislocations se forment en bord d'îlot lorsque celui-ci atteint un volume critique^{Madhukar.94, Nabetani.94}, en dessous duquel les îlots sont tous cohérents. Suite à la création de ces dislocations, l'îlot peut grossir sans limitation de taille^{Madhukar.94, Sasaki.96}.

Dans le cas de $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{As}$, l'épaisseur critique est certes plus importante^{Ruvimov.95}, cependant la taille des îlots est similaire. Ce dernier résultat montrerait qu'il existe une taille optimale des îlots qui ne dépend pas de la contrainte^{Ruvimov.95, Seifert.96}. Cependant d'autres phénomènes comme la ségrégation de l'indium dans des îlots de GaInAs ^{Grandjean.97, Woggon.97, Rosenauer.97} doivent aussi être pris en considération pour expliquer la similitude des tailles des îlots d' InAs et de GaInAs déposés sur substrat GaAs . Remarquons que dans le cas de $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ le désaccord paramétrique, de l'ordre de 3 %, est proche de celui du système InAs/InP avec lequel nous établissons une comparaison dans le chapitre IV.

2.3. Caractérisation optique.

Lorsque l'épaisseur nominale déposée reste inférieure à l'épaisseur critique, la luminescence est celle d'un puits d' InAs ^{Gérard.95}. Juste au dessus de l'épaisseur critique, le pic de luminescence de la couche 2D subsiste, c'est à dire qu'il reste une couche de mouillage, alors qu'un deuxième pic plus large apparaît à plus basse énergie^{Gérard.95}. Pour des épaisseurs nominales plus importantes, le pic 2D disparaît et celui correspondant aux îlots se décale vers les basses énergies en s'élargissant^{Nabetani.94, Gérard.95, Ruvimov.95}. La largeur du pic de luminescence des îlots provient de leur distribution en taille. Le caractère 0D des îlots a été démontré en mesurant la luminescence provenant d'un seul îlot^{Marzin.94, Grundmann.95}. La largeur du pic de luminescence est inférieure au dixième de meV ce qui permet d'assimiler la densité d'états à une fonction delta.

Certaines équipes ont observé une anisotropie des îlots d' InAs ^{Nabetani.94} ou de GaInAs ^{Saito.97}. Dans les deux cas la base est rectangulaire, allongée suivant $[1\bar{1}0]$, avec des facettes latérales du type $\{113\}$ ou $\{114\}$. On observe alors une polarisation de la luminescence, l'intensité suivant $[1\bar{1}0]$ étant supérieure à celle suivant $[110]$. De telles structures peuvent être utilisées pour réaliser des sources de lumière polarisée.

2.4. Influence des conditions de croissance.

J.M.Gérard a étudié l'influence de la vitesse de croissance et du temps d'interruption après le dépôt d' InAs qui précède le recouvrement des îlots^{Gérard.95, Gérard.95-2}. La vitesse de croissance n'influe pas sur la valeur de l'épaisseur critique mais le pic de luminescence provenant des îlots se décale vers les basses énergies et s'élargit lorsque la vitesse de dépôt diminue. Pour les faibles vitesses de croissance, la nucléation des îlots est faible et les îlots formés au début du dépôt évoluent pendant la durée du dépôt alors que les derniers îlots nucléés sont encore petits, entraînant une dispersion des tailles. D'après cette étude^{Gérard.95}, la

nucléation d'un îlot est un phénomène brutal, d'une durée inférieure à 1s. Une fois formés, les îlots évoluent plus lentement et continuent à grossir. Ainsi, au cours d'un arrêt de croissance l'énergie du pic de luminescence se décale vers les basses énergies.

L'étude de (Ga)InAs/GaAs en fonction de la température de dépôt fait apparaître un effet sur la densité et la taille des îlots^{Oshinowo.94, Madhukar.94, Seifert.96}. Des densités maximales de 1000/ μm^2 sont observées à basse température, la taille des îlots étant alors minimale. Il semble donc y avoir une corrélation entre la vitesse de diffusion des atomes de surface et la densité des îlots^{Lee.97}. Cependant, la densité des îlots diminue lorsque la pression d'arsenic (As_4) augmente, ce qui semble en contradiction avec cette interprétation^{Madhukar.94}. Les phénomènes cinétiques qui gouvernent la relaxation 2D-3D ne sont pas pour l'instant clairement identifiés.

Solomon et coll.^{Solomon.95} ont mesuré le diamètre des îlots en fonction de la température de croissance. Ils ont observé une évolution exponentielle en fonction de l'inverse de la température (loi d'Arrhenius), ce qui tend à prouver que la croissance latérale des îlots est thermiquement activée.

2.5. Influence de l'orientation cristalline du substrat.

L'utilisation de substrats GaAs d'orientation cristallographique autre que (001) a aussi été envisagée pour réaliser des boîtes quantiques à partir d'une couche contrainte d'InAs^{Joyce.97} ou de GaInAs^{Nötzel.94, González.96, Nishi.96}. Joyce et coll. ont montré que, parmi les orientations de bas indices (001), (110) et (111)A, seule (001) permettait la nucléation d'îlots. González et coll.^{González.96} ont étudié optiquement des couches de $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{As}$ déposées sur des substrats d'indice élevé (11n)A/B pour n compris entre 1 et 7 ainsi que (001). Tous les échantillons présentent un pic de photoluminescence à plus basse énergie que celle d'un puits quantique d'épaisseur nominale, qui est attribué aux îlots. Ce pic de luminescence est le plus étroit pour l'orientation (113)B. Par ailleurs, une étude structurale par microscopie à force atomique de Nötzel et coll.^{Nötzel.94} a montré que l'uniformité des tailles d'îlots de GaInAs est optimale sur une surface orientée (113)B, parmi les orientations (11n)A/B pour n égal à 2, 3 et 5. Enfin, en comparant la luminescence d'îlots de GaInAs sur substrat orienté (001) et (113)B, Nishi et coll.^{Nishi.96} ont observé un pic de luminescence plus étroit et à plus haute énergie confirmant l'intérêt de cette orientation pour la réalisation d'îlots ayant une faible dispersion des tailles.

Le phénomène de relaxation élastique qui nous intéresse ici est un cas particulier du type de croissance Stranski-Krastanov pour une couche fortement contrainte. Pour une

description plus précise, il est nécessaire de connaître l'énergie élastique mise en jeu. Un calcul a été fait par Tersoff et coll.^{Tersoff.93} et est présenté dans la partie suivante, ainsi que des scénarios proposés pour décrire la cinétique de la relaxation élastique.

3. Modèles et scénarios décrivant la transition 2D-3D par relaxation élastique.

Cette partie débute par le modèle énergétique de Tersoff^{Tersoff.93}, publié dès 1993, et inspiré par les premières observations d'îlots contraints^{Eaglesham.90, Snyder.91}. Il montre qu'un plan d'îlots ou de trous sans dislocations peut être énergétiquement plus favorable qu'une couche 2D contrainte, sans qu'il existe cependant de configuration stable. Nous comparerons ensuite la nucléation d'îlots cohérents, dont l'expression est déduite du calcul précédent, et celle de dislocations, montrant que la première est favorisée pour les forts désaccords paramétriques.

La faible dispersion des tailles des îlots observée dans le système (Ga)InAs/GaAs ne peut être expliquée en l'absence d'une configuration d'équilibre de la couche d'îlots. Pour mieux décrire les résultats expérimentaux, de nouveaux modèles^{Priester.97} ont été proposés. Ils sont présentés ici, ainsi qu'un modèle original inspiré des observations faites dans le système Ge/Si^{Jesson.96, Jesson.96-2}.

3.1. Modèle énergétique.

J.Tersoff et coll.^{Tersoff.93} calculent la différence d'énergie entre une couche contrainte pseudomorphique (en accord de maille avec le substrat) et une couche relaxée élastiquement en îlots ou en trous. Pour cela, ils modélisent les îlots (ou les trous) par une pyramide tronquée comme présenté figure 5, les expressions de l'énergie totale étant équivalentes. Précisons cependant qu'un calcul prenant en compte des termes d'ordre supérieur montre que les trous sont favorisés, une condition nécessaire étant que l'épaisseur de la couche contrainte épitaxiée soit suffisante. Dans l'exposé du modèle de Tersoff nous nous contenterons cependant de citer les îlots. Ces îlots sont supposés indépendants, sans interactions entre eux. Le calcul se ramène donc à l'estimation de l'énergie d'un îlot isolé.

Deux contributions énergétiques principales sont en compétition: le coût en énergie de surface dû à la configuration 3D et le gain en énergie élastique grâce à la relaxation de l'îlot. D'une part l'énergie de surface qui est due à l'existence de liaisons pendantes dépend de l'orientation cristalline du substrat et des éventuelles reconstructions qui tendent à la minimiser. Elle est minimale pour une couche 2D. Lors de la transition vers des îlots, la surface totale croît, augmentant l'énergie de surface correspondante. Pour l'estimation de cette

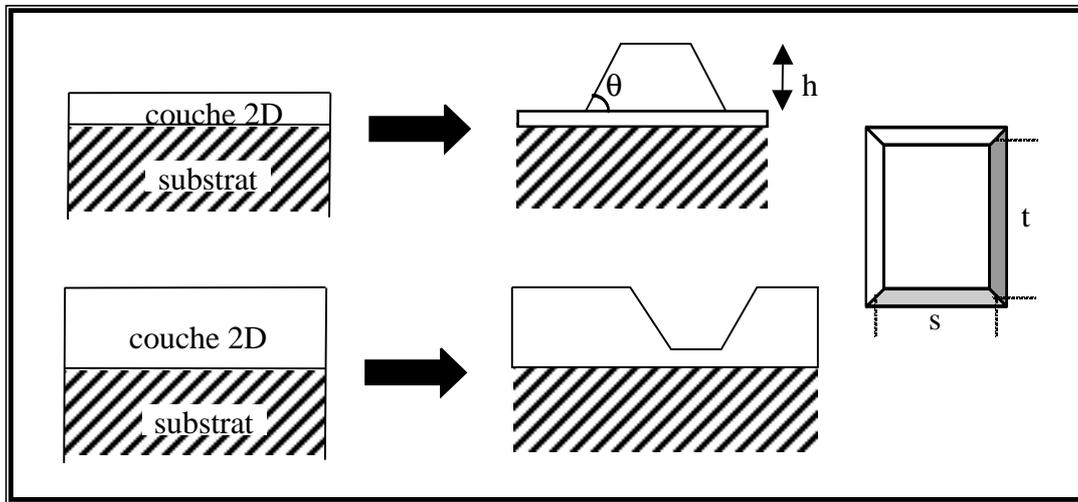


Figure 5: Modèle de Tersoff pour la transition d'une couche 2D en îlots ou en trous. φ est l'angle de mouillage; il définit la facette du bord de l'îlot. h est la hauteur de l'îlot, s et t sont respectivement la largeur et la longueur de la base.

énergie, Tersoff fait l'approximation suivante. Les différents termes d'énergie de surface sont pris en compte, mais l'énergie des arêtes et des coins est négligée. L'existence d'une couche de mouillage simplifie le terme de différence d'énergie d'interface entre l'îlot et la couche 2D. Cette couche a en effet été observée pour des îlots d'InAs sur substrat GaAs par microscopie électronique en transmission et photoluminescence^{Leon.95}.

D'autre part l'énergie élastique emmagasinée dans la couche 2D dépend du désaccord paramétrique. Elle est proportionnelle à l'épaisseur de la couche. Lorsque celle-ci adopte une configuration tridimensionnelle, l'énergie élastique diminue^{Eaglesham.90}. Deux phénomènes participent à la relaxation élastique:

- La contrainte locale du substrat diminue la contrainte dans les îlots. C'est ce phénomène qui est considéré ici. La contrainte locale dans l'îlot est supposée uniforme suivant la direction de croissance et proportionnelle à sa hauteur.

, N'est pas pris en compte dans le calcul présenté ici la relaxation élastique des îlots sur les bords, la maille cristalline pouvant s'étendre latéralement^{Massies.93} (voir figure 1).

On obtient alors une augmentation de l'énergie de surface^{Tersoff.93}:

$$E_s = 2 \cdot (s + t) \cdot h \cdot \Gamma \quad (2)$$

où s et t sont les dimensions latérales à mi-hauteur des îlots et h leur hauteur; $\Gamma = \gamma_e \cdot \csc(\varphi) - \gamma_s \cdot \cot(\varphi) > 0$ avec γ_e est l'énergie par unité de surface des cotés des îlots et γ_s est celle de la couche de mouillage.

L'énergie élastique diminue et sa variation entre la configuration 2D et les îlots est:

$$E_r = -2 \cdot c \cdot h^2 \cdot \left[s \cdot \ln\left(\frac{t}{f \cdot h}\right) + t \cdot \ln\left(\frac{s}{f \cdot h}\right) \right] \quad (3)$$

avec $c \propto \varepsilon^2$ et $\Phi \propto \cot(\varrho)$, θ étant l'angle de mouillage en bord d'îlot. En additionnant les deux termes on obtient la différence d'énergie totale E_{tot} exprimée ci-dessous.

$$E_{tot} = E_s + E_r = 2 \cdot (s + t) \cdot h \cdot \Gamma - 2 \cdot c \cdot h^2 \cdot \left[s \cdot \ln\left(\frac{t}{f \cdot h}\right) + t \cdot \ln\left(\frac{s}{f \cdot h}\right) \right] \quad (4)$$

Pour déterminer la forme des îlots la plus favorable on minimise l'énergie totale à volume constant, l'angle θ étant fixé. La forme optimale est une pyramide complète, définie par $s = t = h \cdot \cos(\varrho)$, d'où l'expression simplifiée du volume V de l'îlot: $V = h^3 \cdot \cot^2(\varrho)$. L'énergie totale en fonction du volume pour une couche d'InAs déposée sur des substrats d'InP et de GaAs s'exprime alors simplement:

$$\begin{aligned} E_{tot} &= 4 \cdot \Gamma \cdot V^{2/3} \cdot \tan^{1/3}(\varrho) - 6 \cdot c \cdot V \cdot \tan(\varrho) \\ E_{tot} &= A \cdot V^{2/3} - B \cdot V, \text{ avec } A, B > 0. \end{aligned} \quad (5)$$

La courbe $E_{tot}(V)/V$ (énergie par unité de volume) en fonction du volume est représentée figure 6 pour un angle de mouillage fixé arbitrairement à $\theta = \pi/4$. Elle passe par un maximum pour un volume critique $V_c = (4 \cdot \Gamma / 9 \cdot c)^3 \cdot \cot^2(\varrho)$, proportionnel à ε^{-6} . L'énergie de cet îlot critique est $E_{max} = 1/3(4 \cdot \Gamma)^3 \cdot (9 \cdot c)^{-2} \cdot \cot(\varrho)$, proportionnelle à ε^{-4} . La configuration 3D est donc favorable pour des îlots qui ont atteint le volume critique V_c . La nucléation d'un îlot nécessite donc le franchissement de la barrière d'énergie E_{max} .

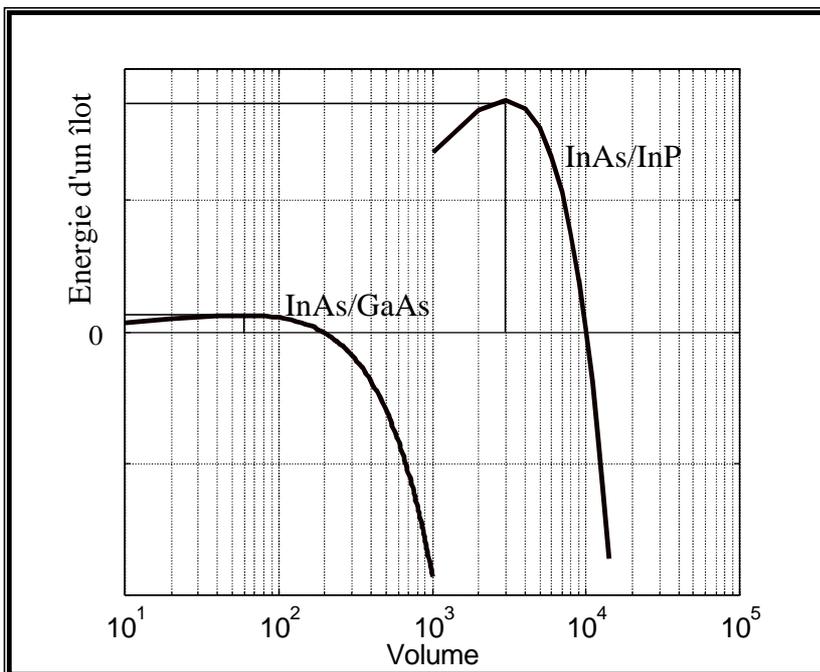


Figure 6: Différence d'énergie totale entre une couche 2D et des îlots en fonction du volume des îlots (Application numérique avec $\varrho = \pi/4$).

Les deux courbes sont qualitatives (unités arbitraires) et correspondent au cas des systèmes InAs/GaAs et InAs/InP pour lesquels la contrainte est respectivement de 7% et 3%. Les paramètres élastiques de chaque matériau sont pris en compte. Les énergies de surface ϱ_i sont prises égales à celle d'une surface de GaAs (0.3 eV par maille de surface) ^{Priester.95}.

L'effet de la contrainte:

L'énergie totale est donc la somme de deux contributions de signe opposé respectivement proportionnelles à la surface et au volume des îlots. Ce résultat était déjà connu qualitativement^{Zinke-Allmang.92}, cependant le rôle du désaccord paramétrique est ici clairement identifié comme favorisant la croissance 3D. En effet le volume et l'énergie des nucléi critiques en dépendent et la nucléation ne peut avoir lieu que pour les systèmes fortement désaccordés. Sur la figure 6 sont tracées les courbes $E_{\text{tot}}(V)$ pour des désaccords paramétriques correspondant aux systèmes InAs/InP ($\epsilon \approx 3\%$) et InAs/GaAs ($\epsilon \approx 7\%$). Elles montrent la différence de volume critique et d'énergie d'activation en fonction du désaccord paramétrique, les différentes énergies de surface étant fixées arbitrairement égales à celle d'une surface (001) de GaAs.

Les énergies de surface:

Outre le désaccord paramétrique, le deuxième paramètre important dans l'expression de E_{tot} est Γ , qui fait intervenir les énergies de surface du substrat et des côtés des îlots. Ces énergies sont des grandeurs mal connues. Elles jouent pourtant un rôle important lors de la nucléation^{Gendry.97, Joyce.97}, ainsi que dans la forme (présence de facettes) et la taille des îlots^{Seifert.96, Khor.97}.

Forme et taille des îlots:

Quelle est la forme la plus favorable d'un îlot cohérent de volume donné? Pour répondre à cette question différentes équipes^{Tersoff.93, Chen.96, Pehlke.96, Pehlke.97, Spencer.97} ont calculé l'énergie totale d'un îlot cohérent en fonction de l'angle de mouillage, du diamètre et du rapport hauteur sur diamètre des îlots.

Partant de son expression analytique décrite ci-dessus Tersoff^{Tersoff.93} a calculé le minimum l'énergie par unité de volume par rapport aux dimensions s et t , les paramètres hauteur h , angle de mouillage θ et surface $A=s \times t$ étant fixés (et donc le volume). Ce minimum d'énergie est représenté sur la figure 7a en fonction de la surface A des îlots: la relaxation d'une couche contrainte démarre par la nucléation d'îlots à base carrée ($s=t$). Au-delà d'une surface critique, un îlot allongé suivant une direction préférentielle (en trait plein sur la figure 7a) est alors plus favorable qu'un îlot à base carrée (en trait pointillé). Cette brisure de symétrie est représentée par la bifurcation des valeurs de s et t , exprimées en fonction de la surface des îlots (figure 7b). Elle se traduit par un allongement des îlots suivant une direction préférentielle et la formation de fils^{Utzmeier.96, Jesson.96-2, Guo.97}.

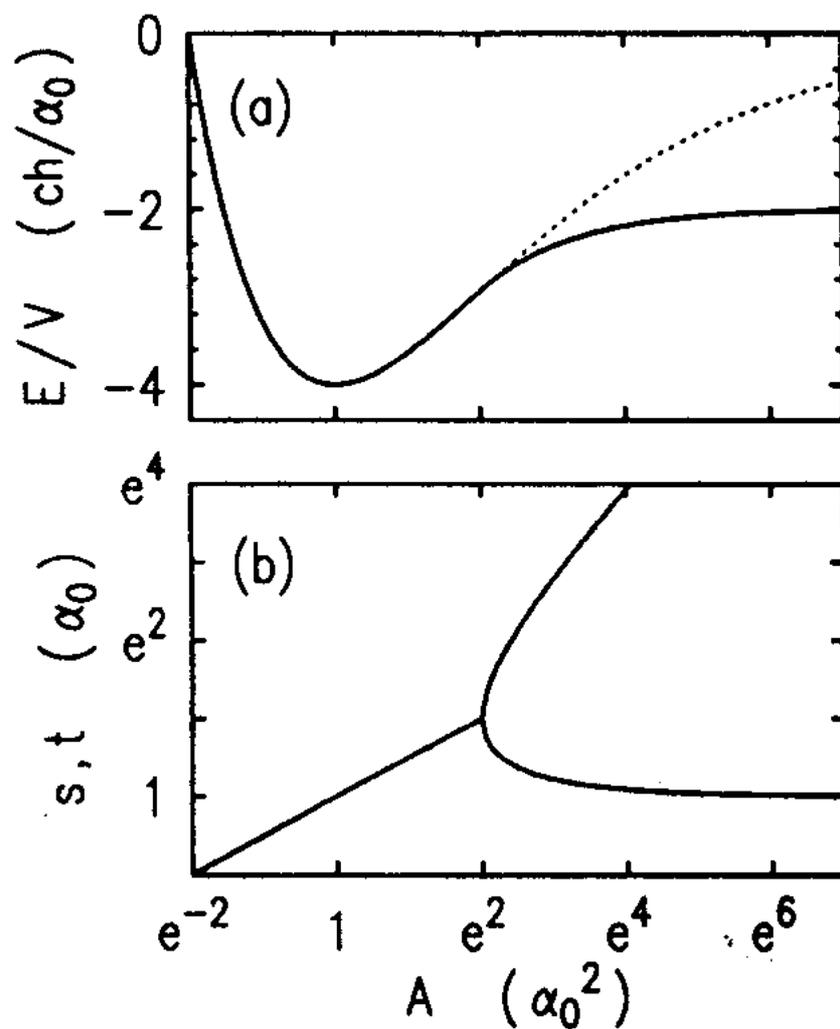


Figure 7: (a) Energie par unit  de volume des ˆlots, en fonction de l'aire A de l'ˆlot (en trait plein). Les pointill s repr sentent un ˆlot carr .

*(b) Largeur s et longueur t d'un ˆlot, en fonction de A .
d'apr s Tersoff et coll.^{Tersoff,93}.*

3.2. Nucléation d'îlots et nucléation de dislocations.

Goldstein et coll.^{Goldstein.85} ainsi que Eaglesham et Cerullo^{Eaglesham.90} ont les premiers observé des îlots cohérents, la formation des îlots précédant donc la nucléation de dislocations. Ces deux phénomènes en compétition sont thermiquement activés^{Tersoff.94, Jesson.93, Jesson.94}. Les taux de nucléation $R_s = \partial N_s / \partial t$ et $R_b = \partial N_b / \partial t$, avec N_s et N_b étant le nombre d'îlots et de dislocations, dépendent respectivement du désaccord paramétrique ϵ ^{Tersoff.94}.

$$R_s \propto \exp\left(-\frac{E_s}{kT}\right) = \exp\left(-\frac{U_s \cdot \epsilon^{-4}}{kT}\right) \quad (6)$$

$$R_b \propto \exp\left(-\frac{E_b}{kT}\right) = \exp\left(-\frac{U_b \cdot \epsilon^{-1}}{kT}\right) \quad (7)$$

L'énergie d'activation pour la nucléation d'un îlot E_s et d'une dislocation E_b sont respectivement proportionnelles à ϵ^{-4} et ϵ^{-1} . Sur la figure 8, d'après Tersoff et coll.^{Tersoff.94}, sont représentés les taux de nucléation des îlots et des dislocations en fonction du désaccord paramétrique ϵ . Pour les couches faiblement désaccordées, l'énergie d'activation pour la nucléation des îlots est supérieure à celle des dislocations. La couche contrainte relaxe alors plastiquement si l'épaisseur déposée est supérieure à l'épaisseur critique. La nucléation d'îlots survient pour les forts désaccords paramétriques, à une épaisseur déposée inférieure à l'épaisseur critique "classique" de relaxation inélastique^{Gendry.92}.

Le deuxième phénomène à envisager est la nucléation de dislocations dans les îlots ainsi formés. Différentes observations ont montré que l'introduction de dislocations survient au-delà d'une taille critique^{Eaglesham.90, Madhukar.94, Nabetani.94, Ponchet.98} ou entre deux îlots voisins^{Jesson.93}.

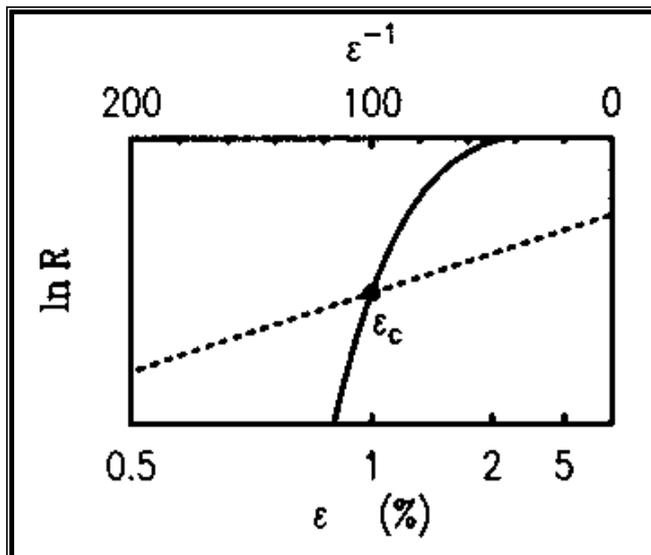


Figure 8: Taux de nucléation des îlots (en trait plein) et des dislocations (en pointillés). L'échelle verticale dépend des énergies d'activation et donc des matériaux, et son origine du facteur multiplicatif.^{Tersoff.94}

3.3. Evolution des îlots.

Seifert et coll.^{Seifert.96, Seifert.97} ont décrit les trois étapes de la formation des îlots: le dépôt bidimensionnel (A) est suivi d'une relaxation rapide (B) de la couche en îlots. Si la couche n'est pas "gelée" par un recouvrement elle continue d'évoluer plus lentement (C). La figure 9 présente la courbe d'évolution de l'énergie totale d'une couche contrainte au cours de la croissance, qui est interrompue juste après la relaxation 3D et est suivie d'une interruption de croissance.

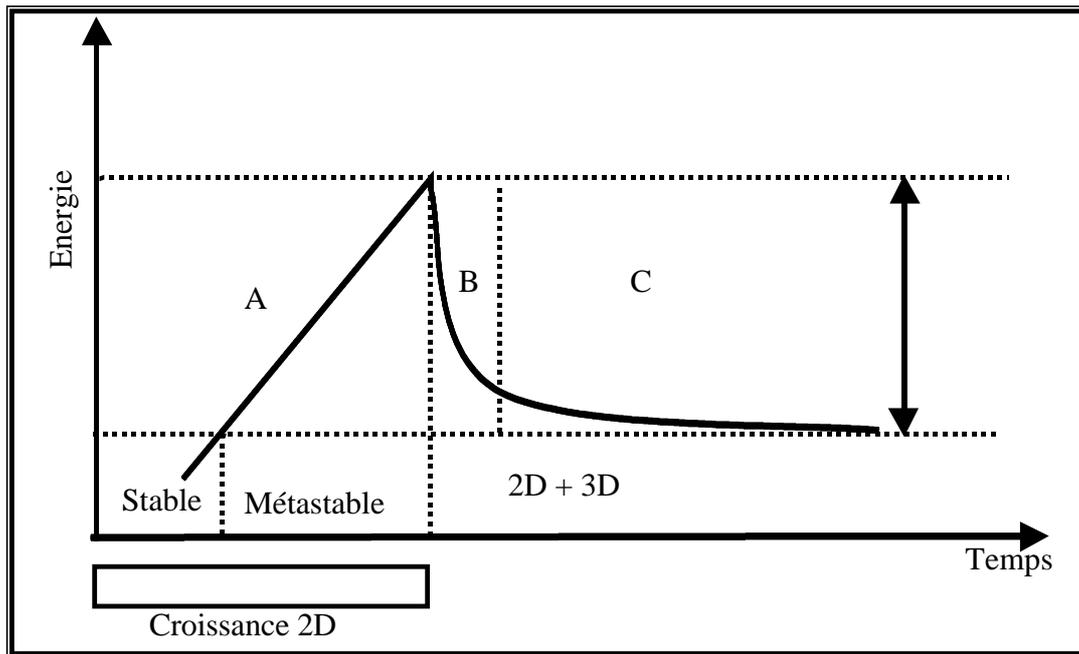


Figure 9: Représentation schématique de l'énergie en fonction du temps pour la transition 2D-3D d'une couche contrainte. A: croissance pseudomorphique, B: transition 2D-3D. Il y a nucléation puis croissance des îlots, C: phase d'évolution des îlots.

Le dépôt débute par la croissance pseudomorphique de la couche. L'énergie élastique augmente linéairement avec le temps au cours du dépôt^{Seifert.97}, on observe donc une droite (figure 9: intervalle A). La croissance 2D peut se poursuivre au delà de l'épaisseur critique de relaxation élastique observée expérimentalement suivant les conditions de croissance^{Gérard.95}. Elle est interrompue lorsque la transition 2D-3D est observée (par exemple au RHEED).

Durant la transition 2D-3D (intervalle B) l'énergie élastique emmagasinée dans la couche 2D diminue rapidement. Comme nous venons de le voir précédemment la nucléation des îlots est un phénomène thermiquement activé (équation 6)^{Tersoff.94}. Une fois le nucléus critique franchi, l'îlot peut continuer à grossir. La quantité de matière déposée au delà de l'épaisseur critique constitue un réservoir pour la croissance des îlots et la nucléation de nouveaux îlots, qui s'interrompt quand toute cette matière est épuisée.

Les caractéristiques des îlots dépendent notamment de la température. En effet la diffusion des atomes vers les îlots est thermiquement activée^{Solomon.95}, ce qui favorise une croissance rapide des îlots à haute température. La matière déposée au delà de l'épaisseur critique, et qui constitue un réservoir pour la nucléation de nouveaux îlots, migre alors rapidement vers les premiers îlots formés. La nucléation est dans ces conditions limitée aux premiers instants de la relaxation élastique et le nombre final d'îlots est plus faible que pour une température inférieure. Pour résumer, la densité finale d'îlots plus importante à basse température provient de la matière disponible qui diffuse suffisamment lentement vers les premiers îlots pour permettre la nucléation de nouveaux îlots.

Après la phase de croissance rapide, les îlots évoluent lentement (figure 9, C). Il y a augmentation de l'énergie élastique accumulée dans l'îlot lorsque sa croissance se poursuit aux dépens d'îlots voisins ou bien si plusieurs îlots coalescent. Ceci aboutit, comme observé expérimentalement^{Eaglesham.90, Gendry.92, Ponchet.98}, à la création de dislocations en bord d'îlot où la contrainte est maximale^{Jesson.95, Xie.95}.

3.4. Limitation et distribution des tailles des îlots.

Le calcul du champ des contraintes dans les îlots fait apparaître une accumulation de la contrainte en bord d'îlot (figure 10a), le champ des déformations du substrat n'étant pas uniforme^{Drucker.93, Ratsh.94, Chen.96, Seifert.96, Dobbs.97, Barabási.97}. Ce phénomène augmente le potentiel chimique des atomes situés en bord d'îlot et crée ainsi une barrière d'énergie pour la diffusion des atomes de la couche 2D vers les îlots. Cette barrière d'énergie dépend du désaccord paramétrique et augmente avec la taille de l'îlot^{Drucker.93, Chen.96}. Par contre, lorsqu'un îlot relaxe plastiquement, cette barrière d'énergie disparaît et sa croissance est alors plus rapide^{Drucker.93, Chen.96}.

Dans le système $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}$, différents auteurs ont observé des îlots facettés, pyramides à base carrée ou rectangulaire. Les facettes ont été clairement identifiées comme étant du type $\{105\}$ ^{Mo.90, Jesson.96}. En raisonnant sur l'énergie et la nucléation des facettes Jesson et coll.^{Jesson.96, Jesson.96-2, Jesson.98} tirent des conclusions similaires à celles précédemment exposées. Partant du calcul de Tersoff^{Tersoff.94}, et donc de la nucléation d'îlots thermiquement activée Jesson décrit la croissance d'une nouvelle facette sur un îlot pyramidal (figure 11). L'interaction répulsive entre marches atomiques implique la nucléation d'une nouvelle facette en partant de la base de l'îlot (voir figure 11a). Celle-ci représentée figure 11b est similaire à la nucléation d'un plateau 2D, avec une énergie d'activation qui dépend fortement de la

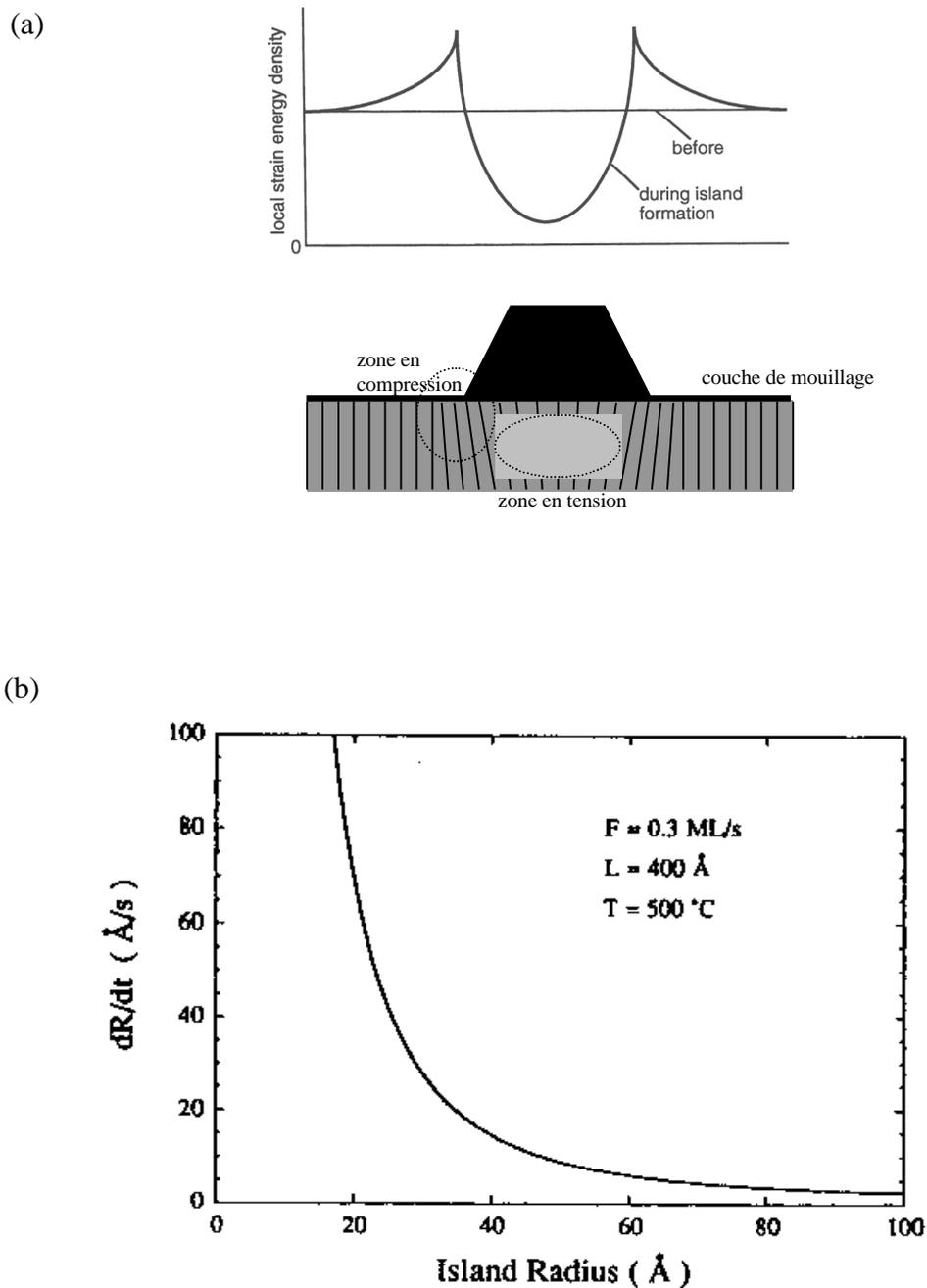
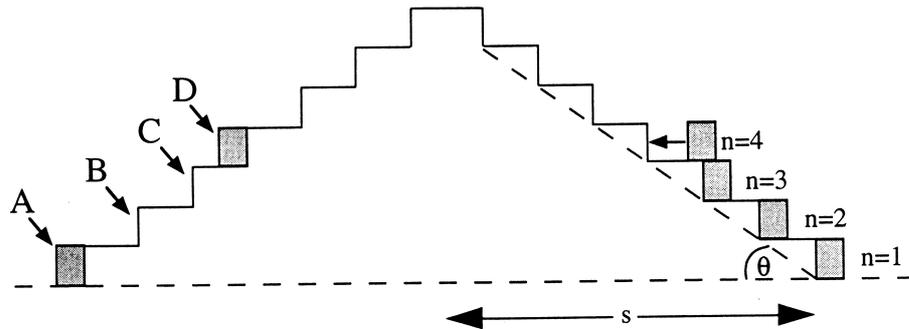


Figure 10: (a) Déformation des plans atomiques denses dans et autour d'un îlot. Il induit un changement local de la contrainte à la surface représenté sur la courbe du haut. (b) Vitesse de croissance d'un îlot de Ge déposé sur substrat Si en fonction de son diamètre . D'après Chen et Washburn^{Chen.96}.

(a)



(b)

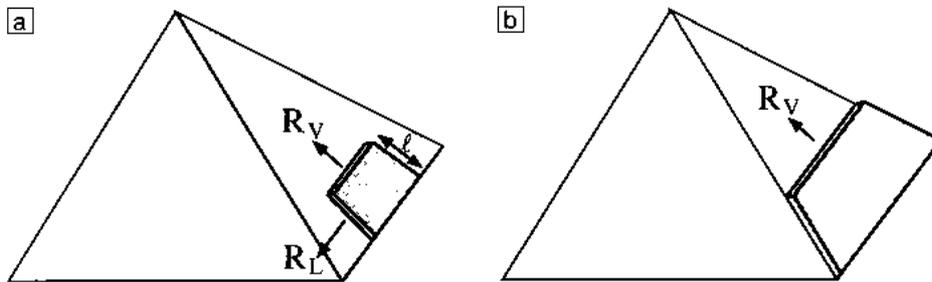


Figure 11: (a) Section transverse d'un îlot pyramidal limité par des facettes faites de marches atomiques. L'énergie de nucléation d'une facette dépend de l'interaction entre marches. En ajoutant un atome sur un site arbitraire D, la répulsion est forte. La croissance de proche en proche en partant du bas de l'îlot est moins coûteuse en énergie (coté droit de la figure).

(b) Croissance d'une nouvelle facette partant de la base de l'îlot, la vitesse de croissance latérale étant supérieure à la vitesse verticale.

D'après Jesson et coll. ^{Jesson.96-2}.

contrainte. On retrouve donc le résultat de Chen et Washburn^{Chen.96}, à savoir que la contrainte accumulée en bord d'îlot est un facteur limitant de leur taille.

L'accumulation de la contrainte en bord d'îlot dépend de la taille de ces derniers. Elle peut ainsi être responsable de la faible distribution des tailles (10 %) observée pour les îlots de (Ga)InAs sur GaAs. La figure 10b représente la vitesse de croissance d'un îlot en fonction de son rayon, en tenant compte de l'accumulation de la contrainte représentée figure 10a^{Chen.96}. La barrière d'énergie que les atomes mobiles doivent franchir augmente avec le diamètre de l'îlot. Les îlots les plus petits grossissent plus vite que les îlots les plus larges, réduisant ainsi la dispersion des tailles entre îlots.

C.Priester^{Priester.95} a proposé une autre explication à la faible dispersion des tailles des îlots. Elle a en effet calculé une dispersion des tailles des plateaux 2D, précurseurs des îlots, de l'ordre de 10 % à l'équilibre thermodynamique. La transition élastique 2D-3D supposée à nombre d'atomes constant aboutirait alors la dispersion des tailles observée.

Lorsque la distance entre îlots se réduit, il y a recouvrement des champs de contrainte induits dans le substrat^{Ponchet.98-2} (figure 10a). Cette interaction entre îlots est répulsive et pourrait induire une organisation des îlots lorsqu'ils sont en forte densité. Ainsi Shchukin et coll.^{Shchukin.95} ont, par un calcul de l'énergie totale d'un réseau d'îlots, prévu l'existence d'un minimum d'énergie pour un réseau carré d'îlots qui sont en interaction via le champ des contraintes qu'ils induisent dans le substrat.

3.5. Conclusion.

Le modèle énergétique proposé par Tersoff et coll. montre la compétition entre un terme de surface et un terme de volume lors de la transition élastique 2D-3D. La conséquence est l'existence d'une énergie d'activation pour la nucléation des îlots, qui dépend du désaccord paramétrique. Pour comprendre la faible distribution des tailles observée expérimentalement dans le système InAs/GaAs, il faut prendre en compte la contrainte induite par l'îlot dans le substrat, qui est responsable de la limitation de sa taille latérale. Les modèles et scénarios présentés ci-dessus font la lumière sur les phénomènes qui gouvernent la relaxation élastique. Cependant les processus atomiques et donc la cinétique de la relaxation dépendent fortement des conditions de croissance et ne peuvent être connus a priori. Ces modèles restent donc non-prédictifs.

Dans la partie suivante sont résumées les études sur la formation des îlots dans le système InAs/InP.

4. Le système InAs/InP.

Dès 1990 Schneider et coll.^{Schneider.90} ont observé pour un puits de 4 MC d'InAs déposé sur InP par épitaxie en phase vapeur aux organométalliques des pics de luminescence correspondants à des couches de 1 à 5 MC d'épaisseur. Pour des dépôts supérieurs à 5 MC, n'apparaît plus qu'un seul pic, large et centré autour de 0.8 eV à 20 K et un deuxième pic plus fin à 1.3 eV attribué à une monocouche de mouillage d'InAs.

Gendry et coll.^{Gendry.92} ont étudié par RHEED les différents modes de relaxation d'une couche de GaInAs déposée sur InP par épitaxie par jets moléculaires. Pour les faibles désaccords paramétriques, la relaxation est inélastique avec l'introduction de dislocations. Lorsque la concentration en Ga est inférieure à 15 % (désaccord paramétrique supérieur à 2 %), la relaxation élastique 2D-3D précède l'introduction de dislocations. Ce résultat est en accord avec les prévisions du modèle énergétique de Tersoff (figure 8)^{Tersoff.94}. Les premiers stades de la croissance de couches de GaInAs en tension et en compression ont été étudiés par microscopie à effet tunnel *in situ*^{Krapf.97, Gendry.97}. Des plateaux 2D précurseurs des îlots cohérents ont été observés sur les couches en compression de Ga_{0.18}In_{0.82}As ayant un désaccord paramétrique de 2 % avec le substrat InP. Sur les couches en tension des trous ont été observés pour un même désaccord paramétrique^{Krapf.97}. Le rôle des énergies de surface a été étudié en comparant la relaxation 3D de couches en compression et en tension en fonction du dopage, de la vitesse de croissance et de la reconstruction de surface (riche en élément III ou en l'élément V)^{Gendry.97}. Le dopage Si ($5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) diminue l'épaisseur critique et favorise la nucléation^{Gendry.97, Lebouché.97}. En fonction de la nature de la couche tampon (InP, AlInAs ou GaInAs en accord de maille sur InP) une croissance en fils ou îlots a été observée^{Brault.98, Brault.98-2, Ustinov.98}.

Des études par photoluminescence ont été menées à l'Ecole Polytechnique de Lausanne^{Carlin.91, Carlin.92, Houdré.93, Rudra.94, Lebouché.97}. La caractérisation optique de couches d'InAs déposées sur InP par épitaxie par jets chimiques a montré différents pics de luminescence correspondant à des puits d'InAs d'une hauteur d'un nombre entier de monocouches allant jusqu'à 8 MC^{Carlin.91}. Le TEM a confirmé l'absence de dislocations dans ces îlots^{Carlin.92}. L'intensité de ces pics se décale vers les basses énergies si la couche subit un recuit sous atmosphère d'arsenic^{Rudra.94} après le dépôt. Pour 2 MC d'InAs déposées et un arrêt de croissance de 30 s sous As, la densité maximale d'îlots mesurée par AFM^{Lebouché.97} est de 70 / μm^2 . Sur substrat InP dopé Si à $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, la densité est de 160 / μm^2 et la distribution des tailles est optimale: $\pm 10 \%$ sur le diamètre et $\pm 20 \%$ en hauteur.

Marchand et coll.^{Marchand.97, Marchand.97-2} ainsi que Taskinen et coll.^{Taskinen.97} ont étudié l'influence de la température et de l'épaisseur nominale pour des îlots InAs/InP réalisés par épitaxie en phase vapeur aux organométalliques. Comme pour GaInAs/GaAs, la densité des îlots augmente lorsque la température diminue. De plus la hauteur des îlots augmente avec la température alors que le diamètre varie peu. Les conditions optimales pour la réalisation de dispositifs opto-électroniques utilisant des îlots d'InAs sont un dépôt de 2.4 à 4.8 MC à une température de croissance de 500 °C suivi d'une interruption de croissance de 30 s sous arsenic^{Marchand.97}. Le diamètre moyen est alors de 300-350 Å et la densité de 300 à 400 / μm^2 . Le pic de photoluminescence à 77 K est proche de 1.55 μm avec une largeur à mi-hauteur de 90 meV.

Ainsi différentes équipes ont étudié la dynamique de croissance des îlots (température, pression d'arsenic, temps de recuit sous arsenic) et montré l'importance des échanges As/P lors de la relaxation de la couche en îlots^{Hollinger.90, Tabata.94, Rudra.94, Carlsson.98, Wang.98}. Contrairement au système InAs/GaAs pour lequel la nucléation des îlots est rapide^{Gérard.95}, la relaxation élastique 2D-3D de InAs sur InP est progressive et peut être contrôlée par les paramètres de croissance. De plus la présence de deux éléments V rend possible l'utilisation des échanges As/P pour ajuster les propriétés des îlots.

Ces différentes études ont été réalisées sur substrat InP orienté (001). L'influence de l'orientation du substrat a été étudiée pour différentes surfaces de bas et de hauts indices dans le système InAs/GaAs, et a montré l'intérêt de l'orientation (113)B. Dans le système GaInAs/InP, des études ont alors été menées pour cette orientation (113)B. Nötzel et coll. ont notamment observé par microscopie à force atomique la formation d'îlots facettés de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ ^{Nötzel.95-2}, sur InP ou sur une couche tampon de $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$ accordée à InP, similaires à ceux observés sur substrat GaAs^{Nötzel.94-2}.

Notre équipe a observé une transition 2D-3D pour des îlots d'InAs, déposés par épitaxie par jets moléculaires sur substrat InP(001), au-delà de 1.5 MC d'épaisseur nominale. Les premières études de luminescence ont montré une énergie de luminescence dans les îlots proche de 0.6 eV à température ambiante. Ponchet et coll. ont identifié deux régimes d'îlots en fonction de la quantité d'InAs déposée^{Ponchet.95, Ponchet.96}, comme c'est le cas pour InAs/GaAs. Ces résultats sont présentés en détails dans le chapitre IV.

- Barabási.⁹⁷ A.L.Barabási, "Self-assembled island formation in heteroepitaxial growth.", *Appl.Phys.Lett.* 70, pp.2565-2567(1997).
- Brault.⁹⁸ J.Brault et M.Gendry, communication privée (1998).
- Brault.⁹⁸⁻² J.Brault, M.Gendry, G.Grenet, G.Hollinger, Y.Desières and T.Benyattou, "Role of buffer surface morphology and alloying effects on the properties of InAs nanostructures grown on InP (001)", *Appl.Phys.Lett.* 73, 2932-2934 (1998).
- Carlin.⁹¹ J.F.Carlin, R.Houdré, A.Rudra and M.Ilegems, "Island formation in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 59(23), pp.3018-3020 (1991).
- Carlin.⁹² J.F.Carlin, A.Rudra, R.Houdré, P.Rutenara and M.Ilegems, "Effect of growth interruptions on ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy.", *J.Crys.Growth* 120, pp.155-156 (1992).
- Carlsson.⁹⁸ N.Carlsson, T.Junno, L.Montelius, M.-E.Pistol, L.Samuelsen and W.Seifert, "Growth of self-assembled InAs and InAs_xP_{1-x} by metalorganic vapour phase epitaxy.", *J.Crys.Growth* 191, pp.347-356 (1998).
- Chen.⁹⁶ Y.Chen and J.Washburn, "Structural transition in large-lattice-mismatch heteroepitaxy", *Phys.Rev.Let.* 77(19), pp.4046-4049 (1996). Commentaire de I.Daruka and A.-L.Barabási, "Island formation and critical thickness in heteroepitaxy", et réponse de Y.Chen and J.Washburn, *Phys.Rev.Lett.* 78 (15), pp.3027-3028 (1997).
- Cirlin.⁹⁵ G.E.Cirlin, G.M.Guryanov, A.O.Golubok, S.Ya.Tipissev, N.N.Ledentsov, P.S.Kop'ev, M.Grundmann and D.Bimberg, "Ordering phenomena in InAs strained layer morphological transformation on GaAs (100) surface.", *Appl.Phys.Lett.* 67, pp.97-99 (1995).
- Dobbs.⁹⁷ H.T. Dobbs, D.D.Vvedensky and A.Zangwill, J.Johansson, N.Carlsson, W.Seifert, "Mean-field theory of quantum dot formation", *Phys.Rev.Lett.* 79(5), pp.897-900 (1997). H.T.Dobbs, D.D.Vvedensky, A.Zangwill, "Theory of quantum dot formation in Stranski-Krastanow systems.", In proceedings of ICFSI 6' (International Conference on the formation of semiconductor interfaces): 1997 June 23-27; *Appl.Surf.Sci* 123, 646-652 (1998).
- Drucker.⁹³ J.Drucker, "Coherent islands and microstructural evolution", *Phys.Rev.B* 48 (24), pp.18203-18206 (1993).
- Eaglesham.⁹⁰ D.J.Eaglesham and M.Cerullo, "Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si (100)", *Phys.Rev.Lett.* 64(16), pp.1943-1946 (1990).
- Gendry.⁹² M.Gendry, V.Drouot, C.Santinelli and G.Hollinger, "Critical thicknesses of highly strained InGaAs layers grown on InP by molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 60 (18), pp.2249-2251 (1992).
- Gendry.⁹⁷ M.Gendry, G.Grenet, Y.Robach, P.Krapf, L.Porte and G.Hollinger, "Role of surface energy and surface reconstructions on the 2D-to-3D growth-mode transition of strained In_xGa_{1-x}As layers on InP(001)", *Phys.Rev.B* 56(15), pp.9271-9274 (1997).
- Gérard.⁹⁵ J.M.Gérard, "Confined electrons and photons, new physics and applications", eds C.Weisbuch and E.Burstein, NATO ASI Series, Plenum, New York (1995).
- Gérard.⁹⁵⁻² J.M.Gérard, J.B.Génin, J.Lefebvre, J.M.Moison, N.Lebouché and F.Barthe, "Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes", *J.Crys.Growth* 150, pp.351-356 (1995).

- Goldstein.⁸⁵ L.Goldstein, F.Glas, J.Y.Marzin, M.N.Charasse and G.Le Roux, "Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices", *Appl.Phys.Lett.* 47, pp.1099-1101 (1985).
- González.⁹⁶ P.P.González-Borrero, D.I.Lubyshev, E.Marega Jr., E.Petitprez and P.Basmaji, "Self-organized InGaAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy on (100), (711)A/B, (511)A/B, (311)A/B, (211)A/B, (111)A/B oriented GaAs", *J.Crys.Growth* 169, pp.424-428 (1996).
- Grandjean.⁹⁷ N.Grandjean, J.Massies, and O.Tottereau, "Surface segregation in (Ga,In)As/GaAs quantum boxes", *Phys.Rev.B* 55, pp.R10189-R10192 (1997).
- Grilhé.⁹³ J.Grilhé, "Surface instabilities and dislocation formation at free surfaces of stressed solids", *Europhys.Lett.* 23(2), pp.141-146 (1993).
- Grinfel'd.⁸⁶ M.A.Grinfel'd, *Dokl.Akad.Nauk SSSR* 290, p.1358 (1986).
- Grundmann.⁹⁵ M.Grundmann, J.Christen, N.N.Ledentsov, J.Böhrer, D.Bimberg, S.S.Ruvimov, P.Werner, U.Richter, U.Gösele, J.Heydenreich, V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, A.E.Zhukov, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots", *Phys.Rev.Lett.* 74, pp.4043-4046 (1995).
- Guo.⁹⁷ S.P.Guo et coll., "InAs self-organized quantum dashes grown on GaAs (211)B", *Appl.Phys.Lett.* 70(20), pp.2738-2740 (1997).
- Hasegawa.⁹⁸ Y.Hasegawa, H.Kiyama, Q.K.Xue and T.Sakurai, "Atomic structure of faceted planes of three-dimensional InAs islands on GaAs(001) studied by scanning tunneling microscope", *Appl.Phys.Lett.* 72(18), pp.2265-2267 (1998).
- Hollinger.⁹⁰ G.Hollinger, D.Gallet, M.Gendry, C.Santinelli and P.Viktorovitch, "Structural and chemical properties of InAs layers grown on InP(100) surfaces by arsenic stabilization", *J.Vac.Sci.Technol.B* 8(4), pp.832-837 (1990).
- Houdré.⁹³ R.Houdré, J.F.Carlin A.Rudra, J.Ling and M.Ilegems, "Formation and optical properties of islands in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy", *Superlattice And Microstructures* 13(1), pp.67-70(1993).
- Jesson.⁹³ D.E.Jesson, S.J.Pennycook, J.-M.Baribeau and D.C.Houghton, " Direct imaging of surface cusp evolution during strained layer epitaxy and implications for strain relaxation.", *Phys.Rev.Lett.* 71, pp.1744-1747 (1993).
- Jesson.⁹⁴ D.E.Jesson, S.J.Pennycook, J.-M.Baribeau and D.C.Houghton, "Surface stress, morphological development, and dislocation nucleation during SixGe1-x epitaxy.", *Scanning Microscopy* 8(4), pp.849-857 (1994).
- Jesson.⁹⁶ D.E.Jesson, K.M.Chen, S.J.Pennycook, T.Thundat and R.J.Warmack, "Morphological evolution of strained films by cooperative nucleation", *Phys.Rev.Lett.* 77(7), pp.1330-1333 (1996).
- Jesson.⁹⁶⁻² D.E.Jesson, K.M.Chen and S.J.Pennycook, "Kinetic pathways in strain relaxation in the Si-Ge system", *MRS Bulletin*, pp. 31-37 (april 1996).
- Jesson.⁹⁸ D.E.Jesson, G.Chen, K.M.Chen and S.J.Pennycook, "Self-limiting growth of strained faceted islands.", *Phys.Rev.Lett.* 80, pp.5156-5159 (1998).
- Joyce.⁹⁷ B.A.Joyce, S.L.Sudijono, J.G.Belk, H.Yamaguchi, X.M.Zhang, H.T.Dobbs, A.Zangwill, D.D.Vvedensky and T.S.Jones, "A scanning tunneling microscopy-reflection high energy electron diffraction-rate equation study of the molecular beam

- epitaxial growth of InAs on GaAs (001), (110) and (111)A — Quantum dots and two-dimensional modes, *Jpn.J.Appl.Phys.* 36, pp.4111-4117 (1997).
- Kern.⁷⁸ Raymond Kern, "Croissance épitaxiale (aspects topologiques et structuraux)", *Bull. Minéral.* 101 (1978), pp.202 -233.
- Khor.⁹⁷ K.E.Khor and S.Das Sarma, "Surface morphology and quantum dot self-assembly in growth of strained-layer semiconducting films", *J.Vac.Sci.Technol.B* 15(4), pp.1051-1055 (1997).
- Kitabayashi.⁹⁵ H.Kitabayashi and T.Waho, "Atomic force microscope observation of the initial stage of InAs growth on GaAs substrates", *J. of Crystal Growth*, 150, pp.152-157 (1995).
- Kobayashi.⁹⁶ N.P.Kobayashi, T.R.Ramachandran, P.Chen, and A.Madhukar, "*In situ*, atomic force microscope studies of the evolution of InAs three-dimensional islands on GaAs(001)." *Appl.Phys.Lett.* 68(23), pp.3299-3301 (1996).
- Krapf.⁹⁷ P.Krapf, Y.Robach, M.Gendry and L.Porte, "Role of step curvature in the stabilization of coherently strained epitaxial structures", *Phys.Rev.B* 55(16), pp.R10229-R10232 (1997).
- Lebouché.⁹⁷ N.Lebouché-Girard, A.Rudra and E.Kapon, "Growth and transformation of ultra-thin InAs/InP layers obtained by chemical beam epitaxy", *J.Crys.Growth* 175/176, pp.1210-1216 (1997).
- Lee.⁹⁷ H.Lee, R.Lowe-Webb, W.Yang and P.C.Sercel, "Formation of InAs/GaAs quantum dots by molecular beam epitaxy: reversibility of the islanding transition.", *Appl.Phys.Lett.* 71, pp.2325-2327 (1997).
- Lee.⁹⁸ Hao Lee, R.Lowe-Webb, W.Yang and P.C.Sercel, "Determination of the shape of self-organized InAs/GaAs quantum dots by reflection high energy electron diffraction.", *Appl.phys.lett.* 72(7), pp.812-814 (1998).
- Leonard.⁹³ D.Leonard, M.Krishnamurthy, C.M.Reaves, S.P.Denbaars and P.M.Petroff, "Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces", *Appl.Phys.Lett.* 63, pp.3203-3205 (1993).
- Leonard.⁹⁴ D.Leonard, K.Pond and P.M.Petroff, "Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs", *Phys.Rev.B* 50 (16), pp.11687-11692 (1994).
- Leon.⁹⁵ R.Leon, S.Fafard, D.Leonard, J.L.Merz and P.M.Petroff, "Visible luminescence from semiconductor quantum dots in large ensembles", *Appl.Phys.Lett.* 67(4), pp.521-523 (1995).
- Madhukar.⁹⁴ A.Madhukar, Q.Xie, P.Chen and A.Konkar, "Nature of strained InAs three-dimensional island formation and distribution on GaAs(100).", *Appl.Phys.Lett.* 64, pp.2727-2729 (1994).
- Marchand.⁹⁷ H.Marchand, P.Desjardins, S.Guillon, J.E.Paultre, Z.Bougrioua, R.Y.-F.Yip and R.A.Masut, "Metalorganic vapor phase epitaxial growth and structural characterization of self-assembled InAs nanometer-sized islands on InP(001).", *J.Electr.Mat.* 26, pp.1205-1213 (1997).
- Marchand.⁹⁷⁻² H.Marchand, P.Desjardins, S.Guillon, J.E.Paultre, Z.Bougrioua, R.Y.-F.Yip and R.A.Masut, "Metalorganic vapor phase epitaxial growth of coherent self-assembled InAs nanometer-sized islands on InP(001).", *Appl.Phys.Lett.* 71, pp.527-529 (1997).

- Marzin.⁹⁴ J.Y.Marzin, J.-M.Gérard, A.Izraël, D.Barrier and G.Bastard, "Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs", *Phys.Rev.Lett.* 73, pp.716-719 (1994).
- Massies.⁹³ J.Massies and N.Grandjean, "Oscillation of the lattice relaxation in layer-by-layer epitaxial growth of highly strained materials", *Phys.Rev.Lett.* 71(9), pp.1411-1414 (1993).
- Mo.⁹⁰ Y.W.Mo, D.E.Savage, B.S.Swartzentruber and M.G.Lagally, "Kinetic pathway in Stranski-Krastanov growth of Ge on Si(001).", *Phys.Rev.Lett.* 65, pp.1020-1023 (1990).
- Moison.⁹⁴ J.M.Moison, F.Houzay, F.Barthe, L.Leprince, E.André and O.Vatel, "Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs", *Appl.Phys.Lett.* 64(2), pp.196-198 (1994).
- Nabetani.⁹⁴ Y.Nabetani, T.Ishikawa, S.Noda and A.Sasaki, "Initial growth stage and optical properties of a three-dimensional InAs structure on GaAs", *J.Appl.Phys.* 76 (1), pp.347-351 (1994).
- Nishi.⁹⁶ K.Nishi, R.Mirin, D.Leonard, G.Medeiros-Ribeiro, P.M.Petroff and A.C.Gossard, "Structural and optical characterization of InAs/InGaAs self-assembled quantum dots grown on (311)B GaAs", *J.Appl.Phys.* 80(6), pp.3466-3470 (1996).
- Nishi.⁹⁷ K.Nishi, T.Anan, A.Gomyo, S.Kohmoto and S.Sugou, "Spontaneous lateral alignment of In_{0.25}Ga_{0.75}As self-assembled quantum dots on (311)B GaAs grown by gas source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.lett.* 70(26), pp.3579-3581 (1997).
- Nötzel.⁹⁴ R.Nötzel, J.Temmyo and T.Tamamura, "Self-organization of boxlike microstructures on GaAs (311)B surfaces by metalorganic vapor-phase epitaxy", *Jpn.J.Appl.Phys.* 33, pp.L275-L278 (1994).
- Nötzel.⁹⁴⁻² R.Nötzel, T.Fukui and H.Hasegawa, "Atomic force microscopy study of strained InGaAs quantum disks self-organizing on GaAs (n11)B substrates", *Appl.Phys.Lett.* 65(22), pp.2854-2856 (1994).
- Nötzel.⁹⁵ R.Nötzel et coll., "Ordered quantum dots: atomic force microscopy study of a new self-organizing growth mode on GaAs (311)B substrates", *Jpn.J.Appl.Phys.* 34, pp.L 872-L 875 (1995).
- Nötzel.⁹⁵⁻² R.Nötzel, J.Temmyo, A.Kozen, T.Tamamura, T.Fukui and H.Hasegawa, "Self organization of strained GaInAs microstructures on InP(311) substrates grown by metalorganic vapor-phase epitaxy.", *Appl.Phys.Lett.* 66, pp.2525-2527 (1995).
- Oshinowo.⁹⁴ J.Oshinowo, M.Nishioka, S.Ishida and Y.Arakawa, "Highly uniform InGaAs/GaAs quantum dots (~15nm) by metalorganic chemical vapor deposition", *Appl.Phys.Lett.* 65, pp.1421-1423 (1994).
- Pehlke.⁹⁶ E.Pehlke, N.Moll and M.Scheffler, "The equilibrium shape of InAs quantum dots grown on a GaAs(001) substrate.", 23rd International Conference on The Physics of Semiconductors, Berlin July 21-26 (1996), edited by M.Scheffler and R.Z.Immermann, World Scientific, Singapore.
- Pehlke.⁹⁷ E.Pehlke, N.Moll, A.Kley and M.Scheffler, "Shape and Stability of quantum dots", *Appl.Phys.A* 65(6), p.526 (1997).
- Ponchet.⁹⁵ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert and S.Salaün, " Relationship between self-organization and size of InAs islands on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 67, pp.1850-1852 (1995).

- Ponchet.⁹⁶ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, J.Groenen and R.Carles, "Structural aspects of the growth of InAs islands on InP substrate", *Solid State Electronics* 40, pp.615-619 (1996).
- Ponchet.⁹⁸ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, L.Durand, D.Alquier and D.Lacombe, "The effect of the growth procedure and the InAs amount on the formation of strain-induced islands in the InAs/InP(001) system.", *Appl.Surf.Sc.* 123, 751 (1998).
- Ponchet.⁹⁸⁻² A.Ponchet, D.Lacombe, L.Durand, D.Alquier and J.-M.Cardonna, "Elastic energy of strained islands: contribution of the substrate as a function of the island aspect ratio and inter-island distance", *Appl.Phys.Lett.* 72(23), pp.2984-2986 (1998).
- Priester.⁹⁵ C.Priester and M.Lannoo, "Origin of self-assembled quantum dots in highly mismatched heteroepitaxy", *Phys.Rev.Lett.* 75(1), pp.93-96 (1995).
- Priester.⁹⁷ C.Priester and M.Lannoo, "Growth aspects of quantum dots", *Current Opinion in Solid State & Materials Science* 2, pp.716-721 (1997).
- Ramachandran.⁹⁷ T.R.Ramachandran, R.Heitz, P.Chen and A.Madhukar, "Mass transfer in Stranski-Krastanow growth of InAs on GaAs.", *Appl.Phys.Lett.* 70, pp.640-642 (1997).
- Ratsh.⁹⁴ C.Ratsh, A.Zangwill and P.Smilauer, "Scaling of heteroepitaxial island sizes", *Surf.Sci.* 314, pp.L937-L942 (1994).
- Rosenauer.⁹⁷ A.Rosenauer, U.Fisher, D.Gerthsen and A.Förster, "Composition evaluation of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Stranski-Krastanow-island structures by strain state analysis", *Appl.Phys.Lett.* 71(26), pp.3868-3870 (1997).
- Rudra.⁹⁴ A.Rudra, R.Houdré, J.F.Carlin and M.Ilegems, "Dynamics of island formation in the growth of InAs/InP quantum wells", *J.Crys.Growth* 136, pp.278-281 (1994).
- Ruvimov.⁹⁵ S.Ruvimov, P.Werner, K.Scheerschmidt, U.Gösele, J.Heydenreich, U.Richter, N.N.Ledentsov, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix.", *Phys.Rev.B* 51(20), pp.14766-14769 (1995).
- Saito.⁹⁷ H.Saito, K.Nishi, S.Sugou and Y.Sugimoto, "Controlling polarization of quantum-dot surface-emitting lasers by using structurally anisotropic self-assembled quantum dots.", *Appl.Phys.Lett.* 71, pp.590-592 (1997).
- Sasaki.⁹⁶ A.Sasaki, "Initial growth layers and critical thickness of InAs heteroepitaxy on GaAs substrates.", *J.Crys.Growth* 160, pp.27-35 (1996).
- Schneider.⁹⁰ R.P.Schneider, Jr. and B.W.Wessels, "InAs/InP strained single quantum wells grown by atmospheric pressure organometallic vapor phase epitaxy.", *Appl.Phys.Lett.* 57, pp.1998-2000 (1990).
- Seifert.⁹⁶ W.Seifert, N.Carlsson, M.Miller, M.-E.Pistol, L.Samuelsen and L.R.Wallenberg, "In situ growth of quantum dot structures by the Stranski-Krastanow growth mode", *Prog.Crystal Growth and Charact.* 33, pp.423-471 (1996).
- Seifert.⁹⁷ W.Seifert, , N.Carlsson, J.Johansson, M.-E.Pistol, L.Samuelsen, "In situ growth of nano-structures by metal-organic vapour phase epitaxy", *J. of Crystal Growth* 170, pp.39-46 (1997).
- Shchukin.⁹⁵ V.A.Shchukin, N.N.Ledentsov, P.S.Kop'ev and D.Bimberg, "Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands.", *Phys.Rev.Lett.* 75, pp.2968-2971 (1995).

- Snyder.⁹¹ C.W.Snyder, B.G.Orr, D.Kessler and L.M.Sander, "Effect of strain on surface morphology in highly strained InGaAs films.", *Phys.Rev.Lett.* 66, pp.3032-3035 (1991).
- Solomon.⁹⁵ G.S.Solomon, J.A.Trezza and J.S.Harris Jr., "Substrate temperature and monolayer coverage effects on epitaxial ordering of InAs and InGaAs islands on GaAs.", *Appl.Phys.Lett.* 66, pp.991-993 (1995).
- Spencer.⁹⁷ B.J.Spencer and J.Tersoff, "Equilibrium shapes and properties of epitaxially strained islands", *Phys.Rev.Lett.* 79 (24), pp.4858-4861 (1997).
- Tabata.⁹⁴ A.Tabata, T.Benyattou, G.Guillot, M.Gendry, G.Hollinger and P.Viktorovitch, "Optical properties of InAs/InP surface layers formed during the arsenic stabilization process.", *J.Vac.Sci.Technol.B* 12(4), pp.2299-2304 (1994).
- Taskinen.⁹⁷ M.Taskinen, M.Sopanen, H.Lipsanen, J.Tulkki, T.Tuomi and J.Ahopelto, "Self-organized InAs islands on (100) InP by metalorganic vapor-phase epitaxy.", *Surf.Sci.* 376, pp.60-68 (1997).
- Tersoff.⁹³ J.Tersoff and R.M.Tromp, "Shape transition in growth of strained islands: spontaneous formation of quantum wires", *Phys.Rev.Lett.* 70 (18), pp.2782-2785 (1993).
- Tersoff.⁹⁴ J.Tersoff and F.K.Le Goues, "Competition relaxation mechanisms in strained layers", *Phys.Rev.Lett.* 72 (22), pp. 3570-3573 (1994).
- Ustinov.⁹⁸ V.M.Ustinov et coll., "Effect of matrix on InAs self-organized quantum dots on InP substrate", *Appl.Phys.Lett.* 72, pp.362-364 (1998).
- Utzmeier.⁹⁶ T.Utzmeier, P.A.Postigo, J.Tamayo, R.García and F.Briones, "Transition from self-organized InSb quantum-dots to quantum dashes", *Appl.Phys.Lett.* 69(18), pp. 2674-2676 (1996).
- Wang.⁹⁸ B.Wang, F.Zhao, Y.Peng, Z.Jin, Y.Li and S.Liu, "Self-organized InAs quantum dots formation by As/P exchange reaction on (001) InP substrate.", *Appl.Phys.Lett.* 72, pp.2433-2435 (1998).
- Woggon.⁹⁷ U.Woggon, W.Langbein, J.M.Hvam, A.Rosenauer, T.Remmele, and D.Gerthsen, "Electron microscopic and optical investigations of the indium distribution in GaAs capped $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ islands.", *Appl.Phys.Lett* 71, pp.377-379 (1997).
- Xie.⁹⁵ Q.Xie, P.Chen, A.Kalburge, T.R.Ramachandran, A.Nayfonov, A.Konkar and A.Madhukar, "Realization of optically active strained InAs island quantum boxes on GaAs(100) via molecular beam epitaxy and the role of island induced strain fields.", *J.Crys.Growth* 150, pp.357-363 (1995).
- Zinke-Allmang.⁹² M.Zinke-Allmang, L.C.Feldman and M.H.Grabow, "Clustering on surfaces", *Surf.Sci.Reports* 16, pp.377-463 (1992).

Chapitre IV: Etude des îlots quantiques InAs déposés sur substrat InP orienté (100).

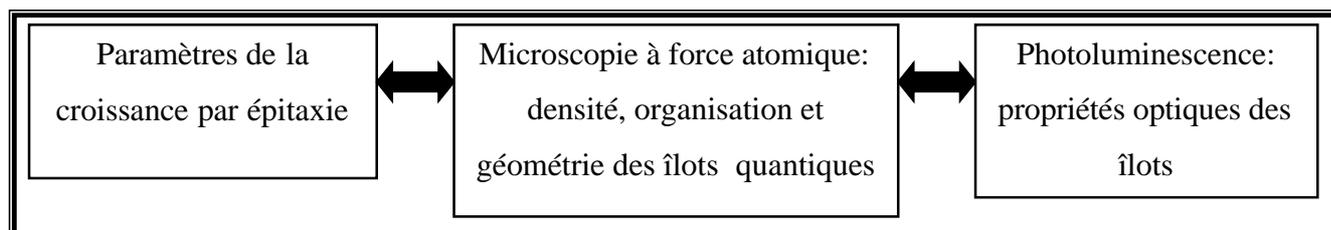
L'objectif de ce travail est d'étudier la formation des îlots quantiques et d'utiliser leurs propriétés électroniques et optiques pour la réalisation de dispositifs optoélectroniques: lasers et photoréfractifs. Un des enjeux de l'étude est la corrélation des paramètres de croissance avec les propriétés structurales (densité et géométrie des îlots) pour contrôler les propriétés optiques.

Une meilleure compréhension des mécanismes qui gouvernent la transition élastique 2D-3D doit permettre une optimisation des compositions et des épaisseurs des couches ainsi que des conditions de croissance pour contrôler la formation des plateaux. Les buts recherchés sont une grande homogénéité des tailles des îlots quantiques, avec en outre des dimensions réduites telles que la densité d'états soit du type 0D pour la réalisation de structures émettrices de lumières (diodes lasers) à 1.55 μm . L'autre application visée est la réalisation de structures photoréfractives rapides. Elle nécessite des îlots susceptibles de piéger efficacement les porteurs (voir chapitre I.2.2), c'est à dire les plus gros possibles sans condition d'homogénéité.

Notre démarche est représentée figure 1: pour contrôler les propriétés optiques des îlots quantiques il est nécessaire de maîtriser leur formation dans les conditions de croissance épitaxiale. Il s'agit ensuite de corréler les propriétés structurales et optiques, ce qui nécessite le calcul des transitions optiques attendues à partir des paramètres structuraux des îlots puis la confrontation des résultats de ce calcul avec la transition optique mesurée par photoluminescence.

La première partie de ce chapitre présente une nouvelle méthode de caractérisation structurale par microscopie à force atomique d'îlots encapsulés. Celle-ci est possible à la suite d'une attaque chimique sélective de la couche d'encapsulation. La deuxième partie est consacrée à la description de la transition élastique 2D-3D d'InAs sur InP. Dans une troisième partie sont étudiées des couches d'InAs et de (Ga)InAs destinées à être utilisées comme zone de piégeage dans des dispositifs photoréfractifs rapides. Enfin la quatrième partie est consacrée à l'utilisation de couches d'InAs comme zone active dans une diode laser.

Figure 1:



1. La révélation d'îlots enterrés par attaque chimique sélective: une nouvelle méthode de caractérisation.

La microscopie à force atomique est en général utilisée pour la caractérisation d'îlots non recouverts. Cependant qu'ils soient étudiés en luminescence ou utilisés dans des dispositifs, les îlots sont enfouis dans une structure. Or, les études précédentes des îlots InAs/InP par microscopie électronique en transmission^{Ponchet.95} ont montré que les îlots recouverts d'InP et les îlots non recouverts n'avaient pas les mêmes dimensions. Ainsi il s'avère délicat de corréler les propriétés optiques d'îlots enterrés et les propriétés géométriques d'îlots non enterrés. Cependant la souplesse d'utilisation de la microscopie à force atomique étant extrêmement attrayante pour la caractérisation rapide des îlots (dimension, densité, homogénéité), nous avons mis au point, dans ce but, une nouvelle technique de caractérisation structurale des îlots enterrés (figure 2). La couche d'encapsulation d'InP est éliminée grâce à une attaque chimique sélective^{Klockenbrink.94} de l'InP par rapport aux arséniures en utilisant la solution suivante:



Il devient ainsi possible de mesurer les propriétés optiques et géométriques des mêmes îlots quantiques. La difficulté attenante est la sélectivité de l'attaque chimique (rapport des vitesses d'attaque de la couche d'encapsulation et de la couche d'îlots) qui doit être suffisamment importante pour supprimer toute la couche d'InP sans altérer les îlots.

Pour que l'attaque chimique ne creuse pas la couche tampon entre les îlots, les îlots sont réalisés sur une couche d'arrêt de quaternaire $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$ émettant à $1.18 \mu\text{m}$ à température ambiante (nous noterons ce matériau Q1.18) accordée à InP (figure 3). Son choix se justifie par l'utilisation qui en est faite dans les structures laser et photoréfractive. Dans une structure laser classique, la zone active est constituée d'un multipuits accordé et le confinement optique est réalisé par une double couche en Q1.18 située de part et d'autre de la zone active. Dans notre cas le multipuits est remplacé par un empilement de plusieurs plans d'îlots.

La sélectivité de l'attaque chimique:

La solution $(\text{H}_3\text{PO}_4:\text{HCl}), (3:1)$ nous a été fournie par Hélène L'Haridon du CNET Lannion. R.Klockenbrink et coll.^{Klockenbrink.94} et Hiroshi Ito et coll.^{Ito.95} ont observé la sélectivité très importante des solutions à base de HCl pour les phosphures (InGaP) par rapport aux arséniures (InGaAs). L'utilisation de H_3PO_4 permet de réduire la vitesse d'attaque du quaternaire GaInAsP ^{Fiedler.82}, et d'augmenter ainsi la sélectivité de InP par rapport au

a)



îlots recouverts: Photoluminescence

Å Propriétés optiques:

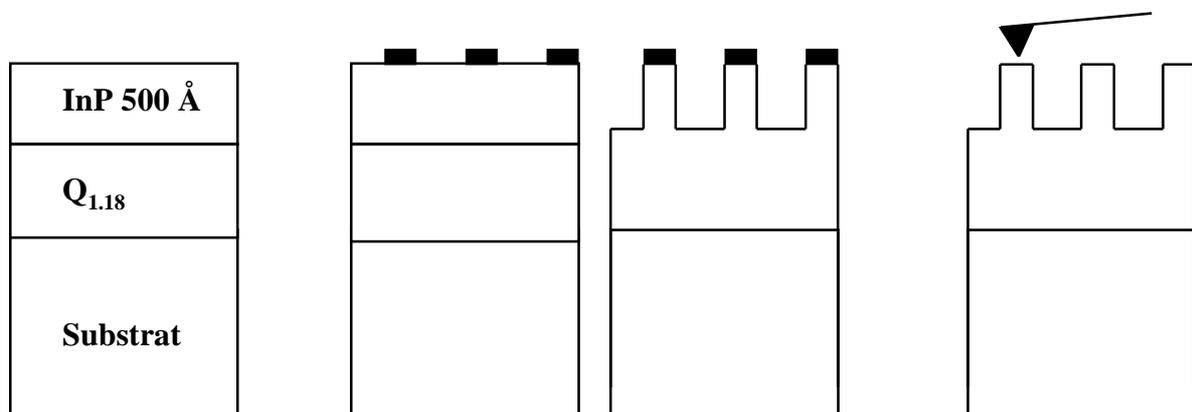
- énergie de transition dans les îlots

Îlots non-recouverts: AFM

Å Propriétés géométriques:

- hauteur, diamètre
- densité
- répartition

b)



Structure de départ.

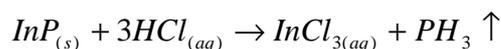
Masquage et attaque sélective de l'échantillon avec (H₃PO₄:HCl)(3:1).

On mesure la hauteur des motifs par microscopie à force atomique.

Figure 2: a) Principe de l'utilisation d'une attaque chimique sélective pour l'observation par microscopie à force atomique d'îlots quantiques enterrés.

b) Principe de mesure de la sélectivité de l'attaque chimique.

Q1.18. La réaction chimique d'attaque de l'InP par l'acide chlorhydrique est donnée ci-dessous^{Neves.93}.



Nous avons déterminé la sélectivité de la solution en attaquant l'InP à travers un masque de résine obtenu par photolithographie (figure 2). Nous avons ensuite mesuré la hauteur des motifs obtenus pour différents temps d'attaque. On en déduit les vitesses d'attaque d'InP et de la couche quaternaire GaInAsP émettant à 1.18 μm à température ambiante (Q1.18). La procédure est détaillée sur la figure 2. Nous avons effectué des tests sur des substrats orientés (001) et (113)B. Suivant (001) la vitesse d'attaque de InP est de l'ordre de 100 $\text{\AA}/\text{s}$. Une sélectivité supérieure à 100 est mise en évidence. Pour l'attaque d'une couche d'InP de 500 \AA nous avons choisi un temps d'attaque de 10 s. Après 5 s, la couche d'InP doit être complètement attaquée. Les îlots sont exposés à la solution pendant 5 s, ce qui donne une attaque de quelques angströms, de l'ordre de la précision des mesures de microscopie à force atomique. Pour des substrats orientés (113)B la sélectivité est au moins deux fois plus faible, de l'ordre de 50. En effet R.Klockenbrink et al.^{Klockenbrink.94} ont montré que la vitesse d'attaque de l'InP par la solution ($\text{H}_3\text{PO}_4:\text{HCl}$) dépend de son orientation cristalline. La mesure des hauteurs d'îlots est donc moins fiable suivant cette direction. Nous avons pu cependant observer une morphologie des couches comparable à celle vue par microscopie électronique en transmission.

Pour s'assurer que l'attaque chimique sélective ne modifie pas la morphologie des îlots, nous avons testé l'attaque chimique sur des îlots d'InAs non recouverts déposés sur une couche tampon de Q1.18. Nous avons comparé la géométrie des îlots sur un échantillon non recouvert pour plusieurs temps d'attaque: 3, 30 et 300 s, par rapport à l'échantillon initial. Pour une attaque de 3 s il n'y a pas de différence observable par microscopie à force atomique. Pour 30 s d'attaque, la hauteur des îlots diminue de moins de 30 %. Pour une attaque de 300 s, une rugosité apparaît et la hauteur des îlots diminue de moins de 50 %. Ces mesures démontrent que des îlots soumis à la solution ($\text{H}_3\text{PO}_4:\text{HCl}$) pendant quelques secondes ne sont pas altérés.

Les résultats concernant la sélectivité de l'attaque chimique sont résumés dans le tableau ci-dessous.

Sur InP (100):	Sur InP(311)B:
<ul style="list-style-type: none"> • attaque de 500 \AA d'InP \hat{e} t = 5 s • attaque de 50 \AA d'InAs \hat{e} t > 50 s <p>$\bar{\sigma}$ sélectivité > 100</p>	<p>$\bar{\sigma}$ sélectivité > 50</p>

2. La transition élastique 2D-3D de InAs sur InP(001).

Nous étudions ici le comportement d'une couche contrainte d'InAs déposée sur un substrat InP orienté (001) dans le but de satisfaire le cahier des charges des dispositifs visés, la structure photoréfractive rapide et le laser à 1.55 μm . Pour comprendre et contrôler la formation des îlots d'InAs sur InP (001), nous nous basons sur les résultats obtenus dans le système (Ga)InAs/GaAs qui a été beaucoup plus étudié. Les différences fondamentales entre les deux systèmes sont les suivantes:

- ◆ Désaccord paramétrique respectivement de 6.9 % et 3.2 % pour InAs/GaAs et InAs/InP (les paramètres de maille et les énergies de bande interdite sont donnés dans le chapitre 1, figure 1c).
- ◆ Élément V commun pour InAs/GaAs et élément III commun pour InAs/InP (s'il n'y a pas de couche tampon).
- ◆ Différence probable des énergies de surface qui ne sont pas connues précisément.

2.1. Conditions de croissance: figure 3.

Après désoxydation du substrat, une couche tampon d'InP est épitaxiée. Pour certains échantillons, une couche de Q1.18 est ensuite déposée. Avant le dépôt d'InAs la couche est stabilisée sous pression d'éléments V (As+P ou P seul suivant la nature de la couche tampon: Q1.18 ou InP) pendant 10 s, puis sous pression d'arsenic pendant 5 s, pour un meilleur contrôle de l'épaisseur d'InAs déposée. Le dépôt d'InAs se fait à une vitesse de 0.15 à 0.33 MC/s. Il est suivi d'un arrêt de croissance sous arsenic dont la durée est précisée par la suite. Les échantillons non recouverts sont ensuite rapidement descendus en température sous pression d'arsenic alors que pour les échantillons recouverts (ou encapsulés) une couche d'InP d'épaisseur nominale 250 ou 500 Å est épitaxiée. Le substrat est alors descendu en température sous pression de phosphore.

2.2. Le processus de la transition élastique 2D-3D.

En utilisant un échantillon élaboré à 490 °C, avec $t_{AC} = 15$ s et comportant six plans d'InAs de 2.5 MC séparés par 200 Å d'InP, nous avons pu reproduire le résultat obtenu par l'équipe de l'Ecole Polytechnique de Lausanne^{Carlin.91, Carlin.92, Houdré.93, Rudra.94}. Le spectre de photoluminescence à 2 K est constitué de plusieurs pics (figure 4a). Un calcul de l'énergie de transition d'un puits InP/InAs/InP dont l'épaisseur est un nombre entier de monocouches a montré que ces pics pouvaient être attribués à la luminescence de couches d'InAs d'épaisseur 4, 5, 6, 7 MC et plus^{Houdré.93, Lambert.98}. L'équipe de Lausanne a interprété ce résultat comme une

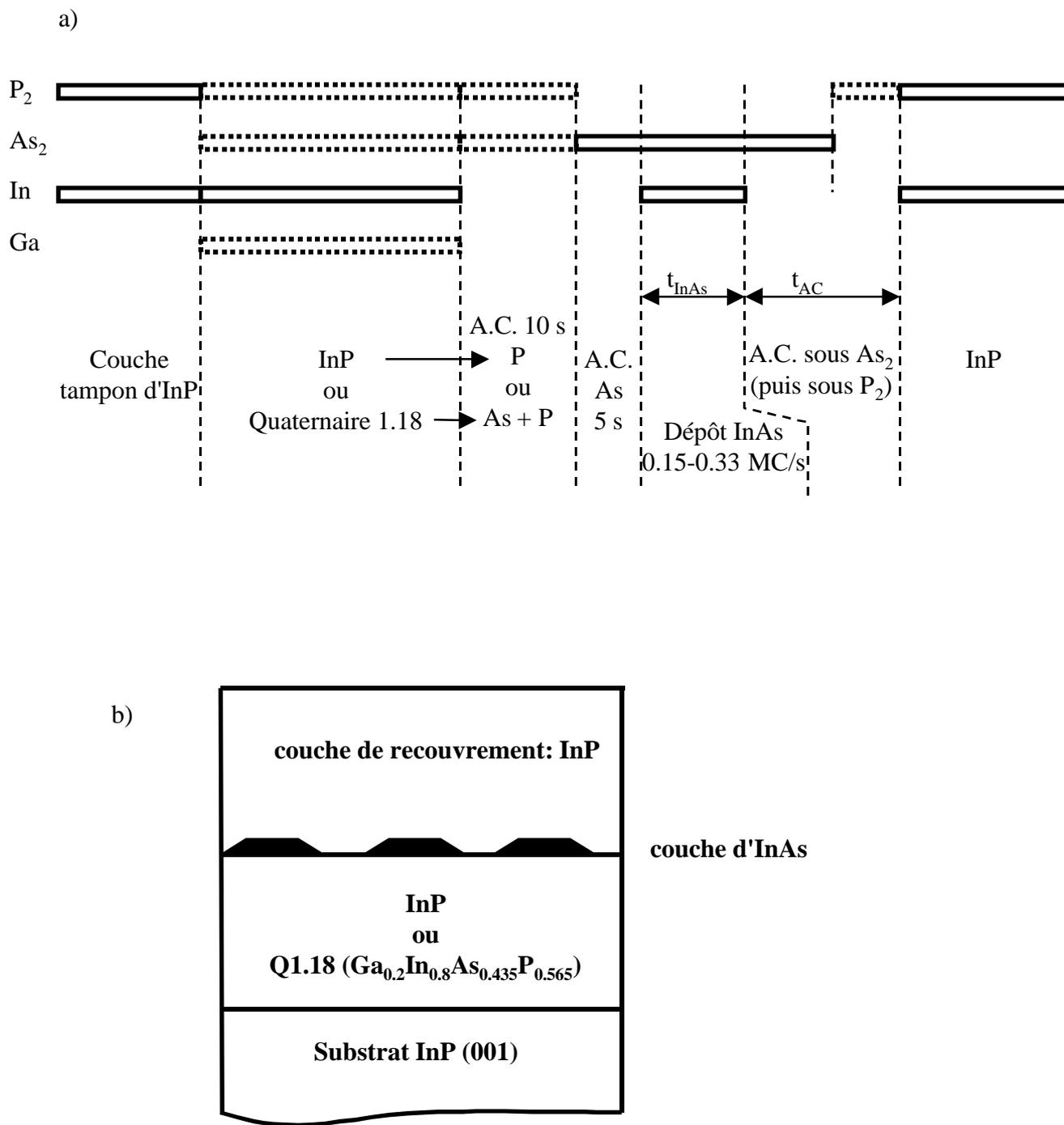


Figure 3: (a) Conditions de croissance des îlots quantiques d'InAs.
(b) Structure d'un échantillon.

rugosification progressive des couches qui dépend du temps d'interruption de croissance t_{AC} et de la température du substrat. Deux types de configurations peuvent être envisagés pour interpréter le spectre de photoluminescence à 2 K en terme de morphologie de la couche d'InAs: des pyramides "aztèques" très plates (figure 5a) ou une distribution de plateaux indépendants faisant chacun un nombre entier de monocouches (figure 5b).

Pour tenter de déterminer la morphologie la plus probable, nous avons réalisé des mesures de photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation (figure 4b). Chaque pic est situé à une énergie correspondant à la transition pour un puits d'InAs de n monocouches d'épaisseur. L'intensité relative des différents pics en fonction de la puissance d'excitation ne varie pas. Ceci tend à montrer que les objets qui luminescent sont indépendants, c'est à dire qu'on n'observe pas de transfert des porteurs d'un puits de haute énergie vers un puits de plus basse énergie. Ces porteurs sont donc certainement localisés, avec des barrières d'énergie telles que la diffusion entre plateaux est impossible ce qui exclut la configuration en pyramide aztèque. Une telle configuration est en accord avec les observations de microscopie à effet tunnel réalisées par P.Krapf et coll.^{Krapf.97}.

Ces plateaux présentent également une intensité de luminescence importante à température ambiante, comparativement au cas d'un puits 2D^{Lambert.98}. L'intensité intégrée de photoluminescence pour les plateaux indépendants est constante en fonction de la température entre 2 K et 300 K (figure 5c) alors que pour des puits de GaInAs émettant à 1.55 μm elle chute d'un facteur 40 (figure 5d). Cette intéressante propriété a été attribuée au fait que les plateaux, qui s'apparentent à des puits 2D coupés, avec un confinement quantique uniquement suivant la direction de croissance, permettent cependant de localiser les porteurs. Les plus hauts plateaux, correspondant aux puits les plus profonds, permettent ce piégeage même à température ambiante. Les porteurs piégés ne peuvent pas diffuser vers des défauts tels que les dislocations qui sont des centres de recombinaison non radiative. Ces observations nous ont permis de choisir les voies à explorer pour nos applications.

- ◆ Pour la structure photoréfractive, il faut un piégeage efficace à température ambiante et il faut donc chercher à augmenter la hauteur des plateaux et s'assurer d'avoir une densité suffisante de pièges pour éviter la diffusion latérale. Nous présentons nos investigations dans ce sens dans la partie suivante de ce chapitre.
- ◆ Du fait de l'important rendement de photoluminescence à température ambiante, ces plateaux 2D présentent aussi un intérêt important pour la réalisation de dispositifs lasers même s'ils n'ont pas l'avantage d'une densité d'états 0D. Il serait alors intéressant d'obtenir une distribution des hauteurs des plateaux la plus étroite possible pour qu'ils luminescent à

une même énergie, si possible avec la longueur d'onde des communications optiques 1.55 μm . Nos tentatives d'optimiser les conditions de croissance des couches dans ce but sont exposées dans la dernière partie de ce chapitre.

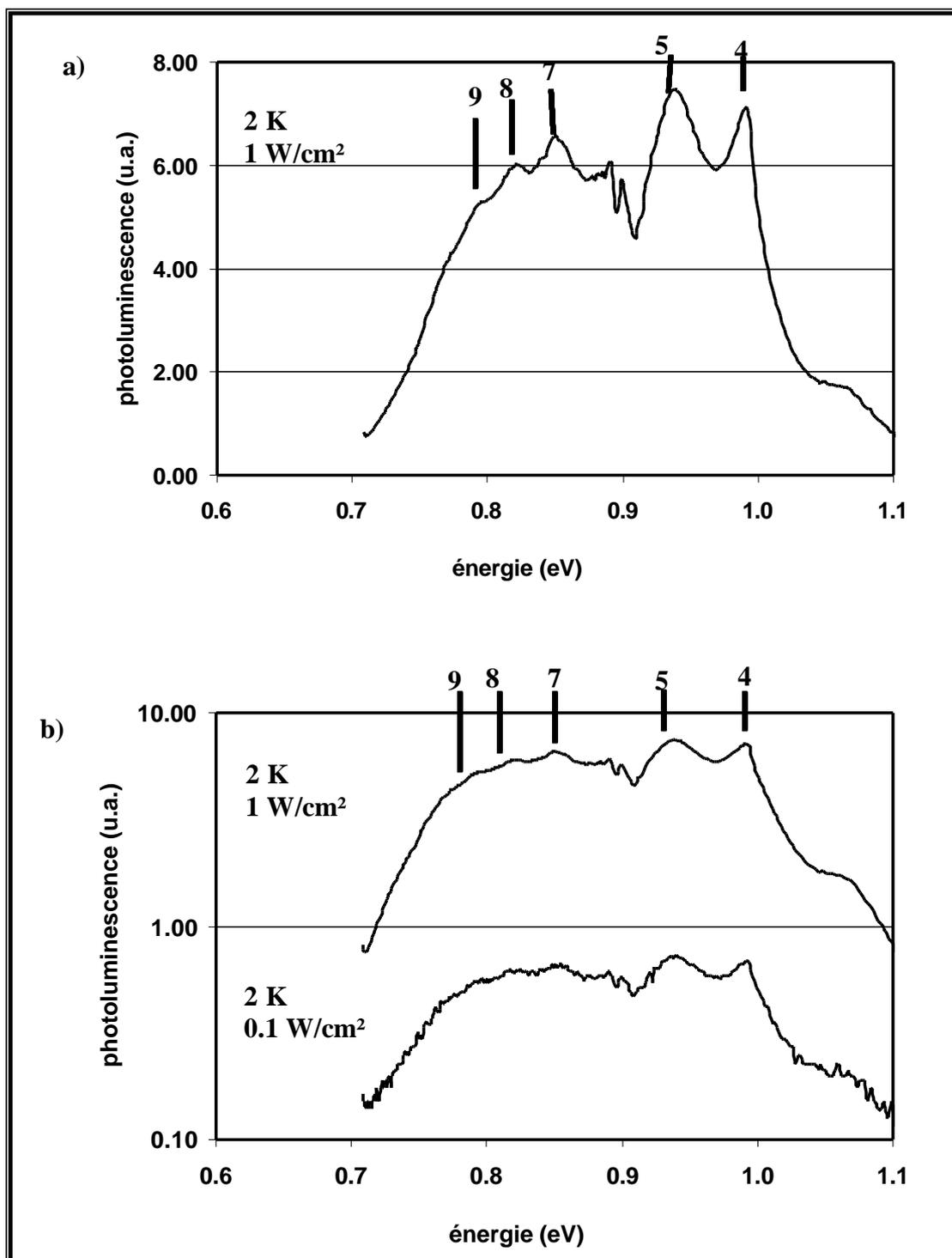
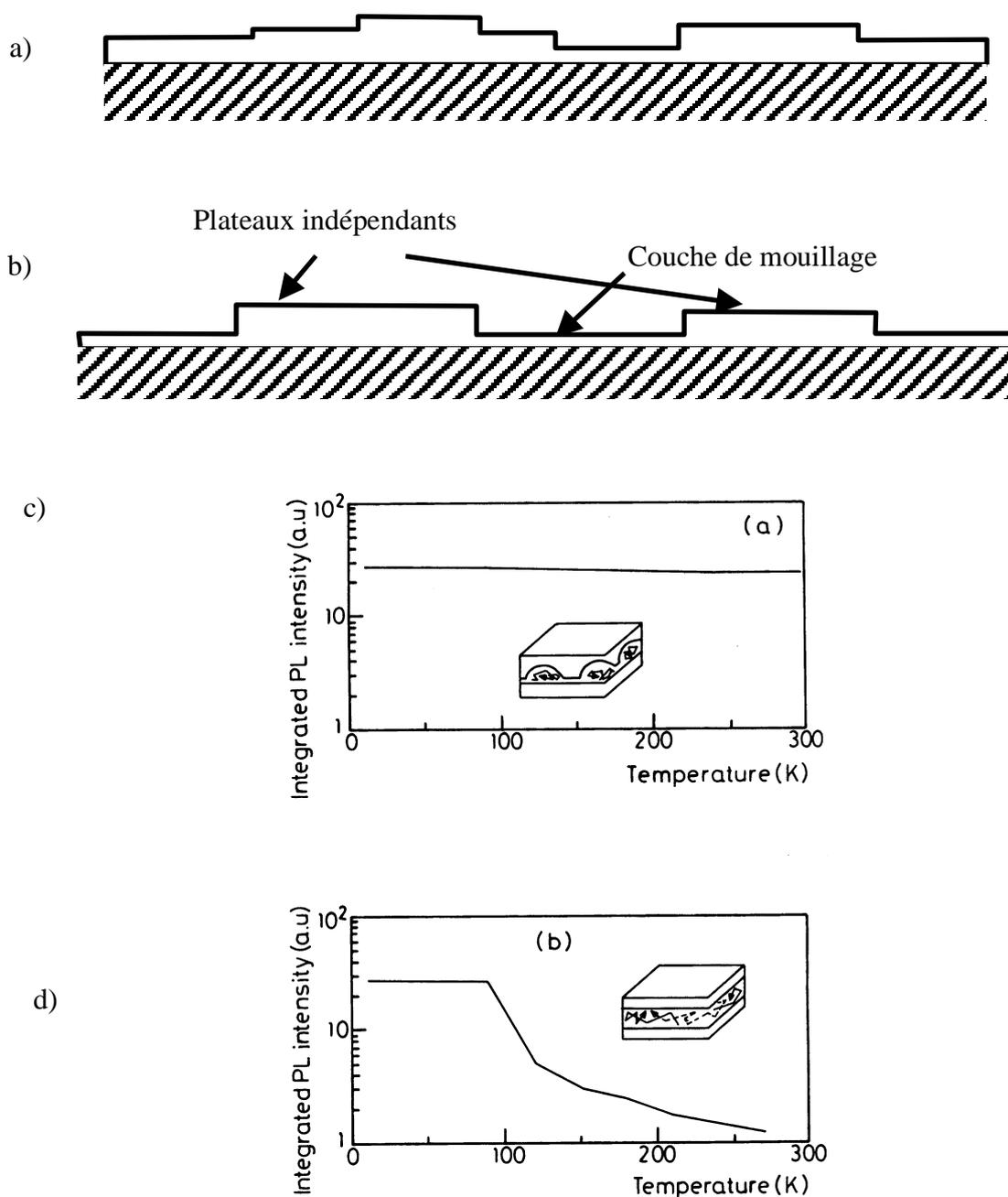


Figure 4: Intensité de photoluminescence à 2 K (mesurée avec un détecteur Ge refroidi à la température de l'azote liquide). Sur deux figures sont indiquées les énergies d'un puits d'InAs d'épaisseur 4, 5, 7, 8 et 9 MC, le pic à 6 MC étant altéré par un pic d'absorption de l'eau.

a) Echelle linéaire, pour une puissance de 1 W/cm²

b) Echelle logarithmique pour des puissances de 1 et 0.1 W/cm².



*Figure 5: Deux configurations possibles pour une couche rugueuse d'InAs déposée sur InP.
 a) Configuration en pyramides "aztèques".
 b) Configuration en plateaux indépendants.
 c) Intensité de photoluminescence intégrée pour le pic d'énergie correspondant à 7 MC sur la figure 4 en fonction de la température.
 d) Intensité de photoluminescence intégrée pour un multipuits GaInAs/Al.18 émettant à 1.55 μm en fonction de la température.*

3. Les îlots pour les photoréfractifs.

Les îlots destinés à piéger les porteurs dans une structure photoréfractive ont été étudiés dans les conditions de croissance suivantes. La température du substrat est de 500 °C lors du dépôt d'InAs, suivi d'un temps d'interruption de croissance sous arsenic $t_{AC} = 30$ s (figure 3a), sauf lorsque des conditions différentes sont précisées dans le texte. Les paramètres étudiés sont l'épaisseur nominale déposée, l'influence de la composition de la couche tampon et l'effet du recouvrement des îlots.

3.1. Epaisseur critique.

Le premier paramètre utilisé pour augmenter la taille des îlots est le temps d'interruption de croissance. Celui-ci a été fixé à 30 s d'après les études menées par A.Le Corre. Une étude des propriétés structurales des îlots par microscopie électronique en transmission a été menée en corrélation des propriétés optiques, mesurées par photoluminescence, en fonction de l'épaisseur déposée, afin de contrôler la densité des îlots. Des îlots d'InAs ont été réalisés à partir d'un dépôt nominal de 1.2, 1.5, 2.25 et 4 MC pour les échantillons recouverts et de 1.5, 1.75, 2, 2.25 et 2.5 MC pour les échantillons non recouverts. La température du substrat était de 500 °C et la croissance était suivie d'un temps d'interruption de croissance $t_{AC} = 30$ s. Sur la figure 6 est reportée la photoluminescence à basse température (2 K) et à température ambiante pour des couches d'InAs déposées sur une couche tampon d'InP à une température de 500 °C. Dans ces conditions de croissance l'épaisseur critique d'InAs est de 1.5 MC^{Le Corre.95, Ponchet.96}. Malgré la différence de désaccord paramétrique, on retrouve une valeur similaire à celle obtenue dans le système InAs/GaAs. Pour 1.2 MC déposées, la luminescence est celle d'un puits quantique d'InAs. Pour un dépôt de 1.5 MC, il reste une couche de mouillage à haute énergie et apparaît un second pic de luminescence à basse énergie correspondant aux îlots quantiques. Lorsque l'épaisseur déposée augmente, ce pic d'énergie correspondant aux îlots se décale vers les hautes énergies. Parallèlement la luminescence de la couche de mouillage disparaît.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que le désaccord paramétrique, principal moteur de la transition élastique 2D-3D, influe sur l'épaisseur critique dans le système $Ga_xIn_{1-x}As/GaAs$. Pour une valeur de 7 % (le cas InAs/GaAs) la relaxation en îlots apparaît après un dépôt de 1.5 MC. Pour 3 % ($Ga_{0.5}In_{0.5}As/GaAs$), une épaisseur critique de 3MC a été estimée^{Ruvimov.95}. Cependant dans le système InAs/InP, nous observons une épaisseur critique de 1.5 MC alors que la contrainte est équivalente à celle de $Ga_{0.5}In_{0.5}As/GaAs$. L'énergie

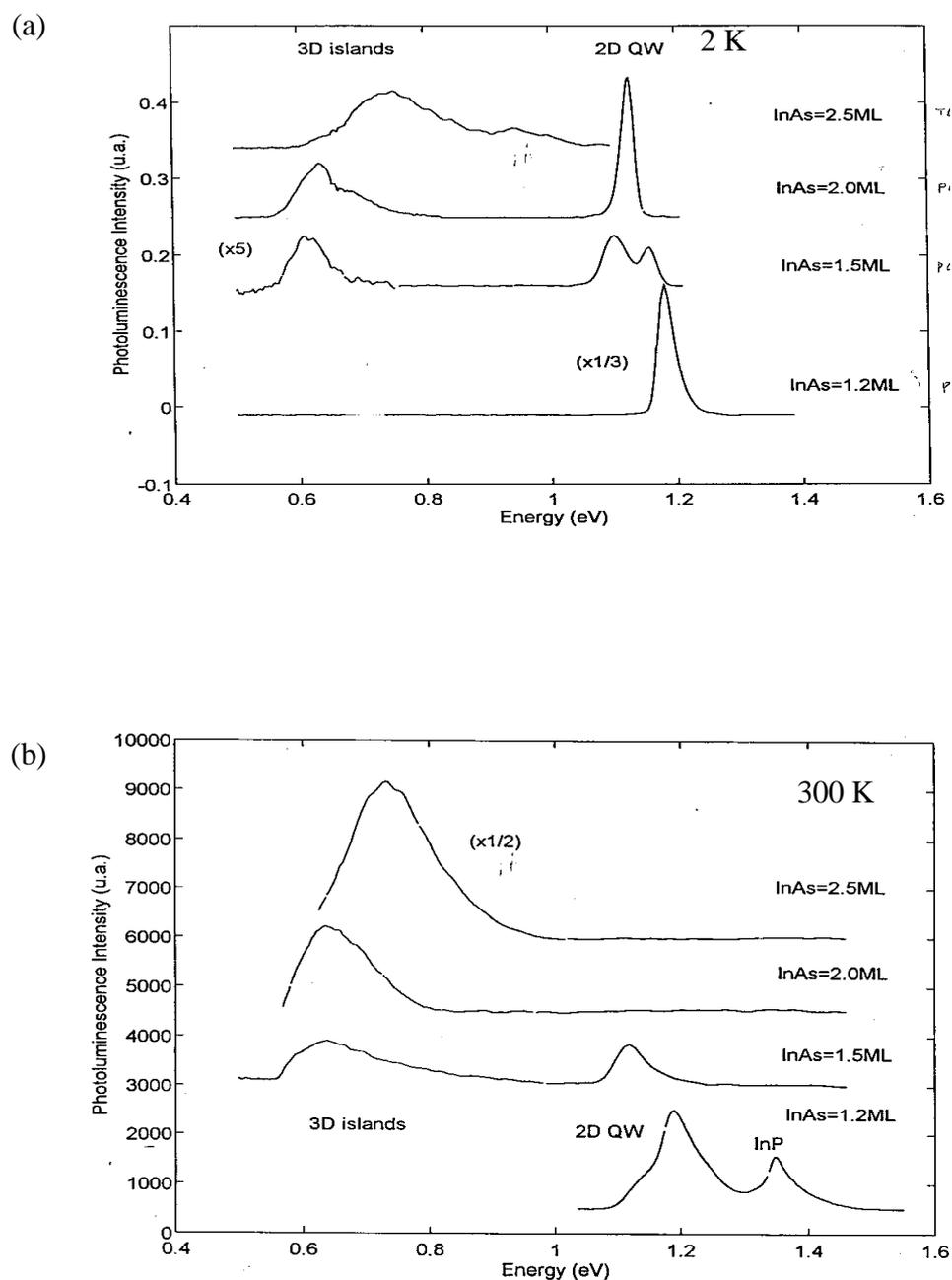


Figure 6: Photoluminescence de couches d'InAs déposées sur InP, d'épaisseurs nominales 1.2, 1.5, 2.0 et 2.5 ML.

(a) Spectres de photoluminescence à basse température (2 K).

(b) Spectres de photoluminescence à température ambiante (300 K) en fonction de l'épaisseur nominale déposée.

[d'après A.Le Corre et col., EURO-MBE, Granada 1995]

élastique ne gouverne donc pas seule le processus de transition élastique 2D-3D. Ce résultat montre l'importance du rôle des énergies de surface dans cette transition.

Par ailleurs un nombre de couches déposées demi-entier correspond au maximum de rugosité et à la relaxation maximale du paramètre de maille d'une couche contrainte bidimensionnelle^{Massies.93}. Les atomes de la demi couche s'arrangent en plateaux qui sont les précurseurs des îlots 3D. Ces derniers ont en effet été observés par microscopie à effet tunnel pour InAs/GaAs^{Cirlin.95} et Ga_{0.18}In_{0.82}As/InP^{Krapf.97}. La formation de ces plateaux peut expliquer la valeur de l'épaisseur critique demi-entière (1.5 MC) pour les deux systèmes InAs/GaAs et InAs/InP. Enfin il est difficile d'évaluer la quantité précise d'InAs créée lors des échanges As/P pendant l'arrêt de croissance sous flux d'arsenic de 5 s avant dépôt et de 30 s après dépôt. C'est en effet pendant l'arrêt de croissance que l'on observe par RHEED la formation des îlots. Tabata et coll.^{Tabata.94} ont déterminé par XPS l'existence d'une couche de 1.5 MC après un arrêt de croissance sous As de 10 minutes d'une surface d'InP portée à 500 °C dans un bâti d'épitaxie. On peut donc supposer que les échanges As/P sont négligeables pendant l'arrêt de croissance de 5 s (figure 3a). La différence des énergies de surface ainsi que l'existence d'une rugosité critique pour un dépôt demi-entier de monocouches peuvent donc être à l'origine de la similitude des épaisseurs critiques entre InAs/GaAs et InAs/InP.

3.2. Observation des îlots sur substrat InP.

3.2.1 Îlots encapsulés.

L'énergie du pic de photoluminescence à 300 K en fonction de l'épaisseur nominale d'InAs (figure 7a) est comprise entre 0.6 et 0.64 eV pour des épaisseurs nominales de 1.5-2.25 MC. Pour 2.25 MC il y a un saut de 60 meV et l'énergie de luminescence diminue progressivement de 0.68 à 0.67 eV pour 2.5-4 MC.

Pour des épaisseurs nominales de 1.5 et 1.75 MC les observations par microscopie électronique en transmission des îlots ont permis de déterminer un diamètre à la base de 450 Å et une hauteur moyenne de 70 à 80 Å. Les îlots obtenus à partir des dépôts de 2.5 et 4 MC ont un diamètre compris entre 200 et 300 Å pour une hauteur de 30 Å, la densité des îlots étant beaucoup plus importante. Ainsi, deux régimes d'îlots sont identifiés en fonction de l'épaisseur nominale d'InAs, ce qui est en accord avec les mesures de photoluminescence.

Sur la figure 7b, la densité totale en fonction du dépôt nominal d'InAs est reportée sur deux échelles différentes pour les deux régimes d'îlots. Les droites en pointillés coupent l'axe des abscisses à une valeur comprise entre 1.45 et 1.55 MC, correspondant à l'épaisseur

critique. De plus les images de microscopie électronique en transmission en vue plane montrent une coalescence entre îlots avec la formation de fils orientés suivant $[1\bar{1}0]$ qui s'accroît pour un dépôt nominal d'InAs de 2.5 à 4 MC. Ces résultats sont rappelés dans le tableau ci-dessous^{Ponchet.95}.

Dépôt d'InAs (MC)	Hauteur (Å)	Diamètre (Å)	densité / μm^2
1.5	70	450	1.7
1.8	70	450	10.6
2.5	30	250-300	110
4	30	200-250	282

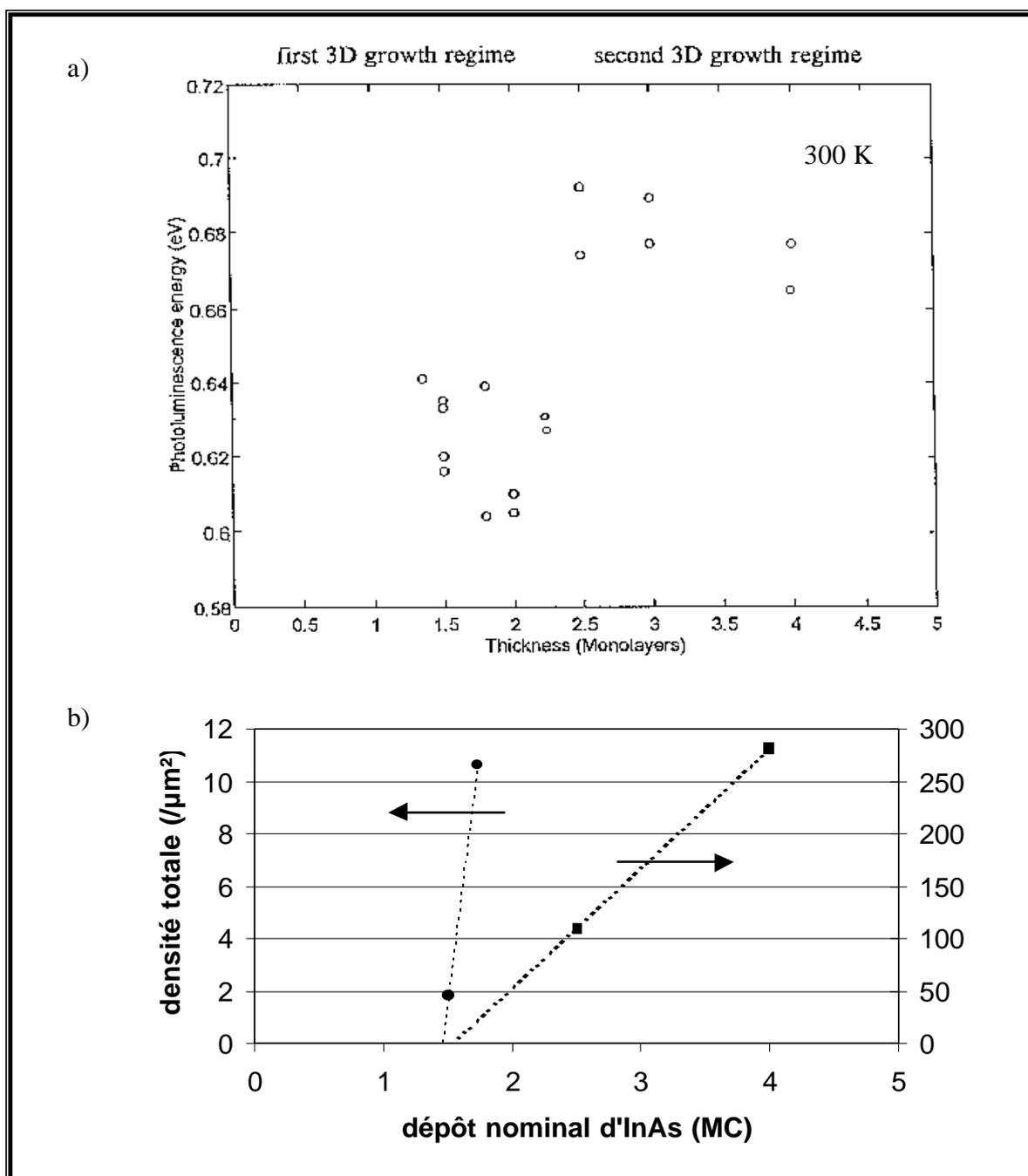


Figure 7: a) Energie du pic de photoluminescence à 300 K pour des îlots d'InAs déposés sur substrat InP en fonction de l'épaisseur nominale d'InAs^{Le Corre.95}.

b) Densité totale d'îlots d'InAs recouverts mesurée par microscopie électronique en transmission^{Ponchet.95}.

3.2.2 Îlots non recouverts.

Les îlots non recouverts ont été observés par microscopie électronique en transmission^{Ponchet.97, Ponchet.98} et microscopie à force atomique (figure 8). La densité maximale des îlots non recouverts est obtenue pour un dépôt nominal de 1.8 MC. Pour des dépôts d'épaisseur supérieure, on observe la coalescence des îlots et la prédominance des îlots relaxés sur les îlots contraints. Pour les dépôts de 1.8, 2 et 2.25 MC une double distribution des hauteurs est mise en évidence par microscopie à force atomique. On peut supposer que la première distribution (80 à 150 Å de haut) correspond aux îlots non relaxés alors que la deuxième provient des îlots relaxés (200 à 500 Å de haut). Les îlots non relaxés ont donc un diamètre de 500 Å pour une hauteur de 120 Å en moyenne. Le tableau ci-dessous résume les résultats des observations des îlots non recouverts.

Dépôt (MC)	Microscopie électronique en transmission			Microscopie à force atomique		
	Densité / μm^2		Diamètre îlots non relaxés (Å)	Densité totale / μm^2	Hauteur des îlots (Å)	
	îlots relaxés	îlots non relaxés				
1.5	>1	<0.2	450-600	0.8	260-400	
1.8	3	35	450-550	50	100-150	200-350
2	14	7	450-550	20	80-150	250-400
2.25	15	2	450-500	15	100-150	200-400
2.5	12	0		12	300-500	

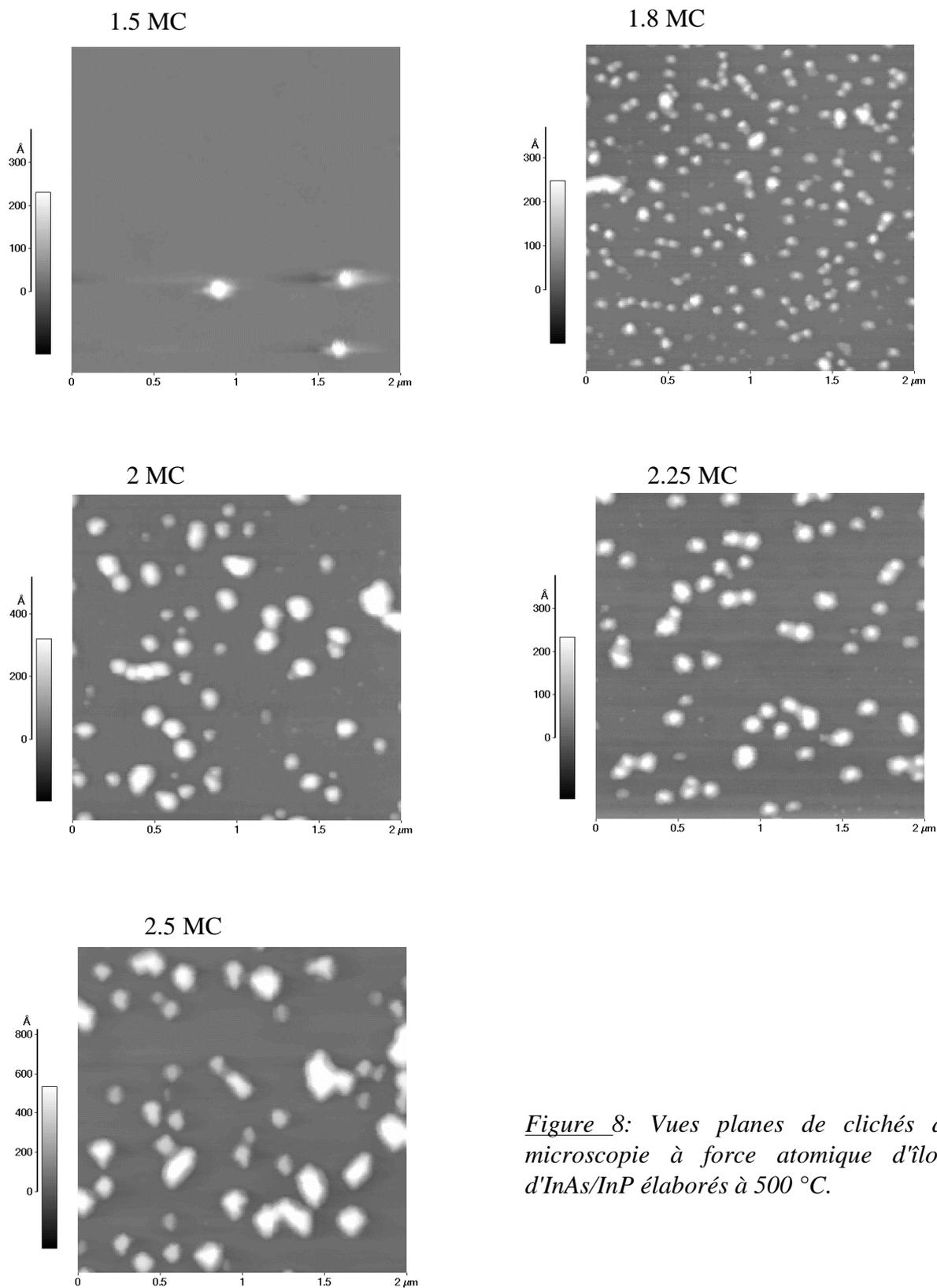


Figure 8: Vues planes de clichés de microscopie à force atomique d'îlots d'InAs/InP élaborés à 500 °C.

3.2.3 Effet du recouvrement des îlots.

La comparaison des deux tableaux ci-dessus montre une différence très importante de hauteur entre les îlots recouverts et non recouverts. Deux phénomènes peuvent être envisagés pour expliquer la différence de hauteur observée. D'une part, lors du dépôt de l'InP sur les îlots d'InAs des échanges As/P peuvent être à l'origine d'un "rabotage" de la hauteur. D'autre part, il peut aussi y avoir création d'une couche d'InAsP à l'interface^{Folliot.98}. Cependant ces phénomènes ne peuvent être responsables que d'une différence de hauteur de quelques monocouches. Pour expliquer la différence de hauteur il faut aussi prendre en compte l'évolution des îlots non recouverts pendant la descente en température sous flux d'arsenic. Après le recuit de 30 s sous arsenic on arrête le chauffage du porte-échantillon. La descente en température se fait sous flux d'arsenic jusqu'à 250 °C. Les îlots peuvent donc continuer à croître, notamment à cause des échanges P/As qui peuvent alimenter en InAs la couche de mouillage puis les îlots. En microscopie électronique en transmission A.Ponchet^{Ponchet.97} et coll. ont observé que la densité d'îlots relaxés plastiquement avec création de dislocations est beaucoup plus importante parmi les non recouverts en comparaison avec les recouverts pour la même épaisseur d'InAs initiale. Ceci montre que les îlots non recouverts ont probablement continué à grossir pendant la descente en température jusqu'à la relaxation plastique. La couche de mouillage d'InAs constitue une "réserve" pour alimenter les îlots. Lorsque les atomes de la couche de mouillage ont migré vers les îlots, celle-ci se renouvelle alors par des échanges P/As^{Tabata.94, Taskinen.97} et le phénomène peut continuer.

Pour 1.5 MC, la densité d'îlots est comparable pour les échantillons recouvert et non recouvert. Dans le premier cas, les îlots sont "gelés" par l'encapsulation et ne sont pas relaxés. Pour les seconds, l'évolution se poursuit lors de la descente en température jusqu'à la relaxation plastique. On constate que, à diamètre équivalent, la hauteur des îlots non recouverts est deux à cinq fois supérieure à celle des îlots recouverts. Cette différence peut être due à une poursuite de la croissance en hauteur lors de la descente en température. Une telle limitation de la taille latérale par rapport à la hauteur a été mise en évidence dans le système InAs/GaAs et attribuée à une concentration de la contrainte en bord d'îlot (chapitre III, figure 10). Celle-ci explique une croissance en hauteur plutôt que latérale des îlots non relaxés. Au-delà d'une taille critique les îlots relaxent plastiquement et leur croissance est favorisée par rapport aux îlots non relaxés. On observe aussi un phénomène de coalescence ou des transferts d'îlot à îlot pour les dépôts supérieurs à 2 MC. Pour un dépôt de 2.5 MC, l'allongement des îlots encapsulés suivant une direction préférentielle provient de ces interactions entre îlots qui apparaissent pour les fortes densités. Pour l'échantillon non

recouvert, les îlots ne présentent pas d'anisotropie de forme et sont probablement relaxés. Ces résultats s'interprètent par le modèle de Tersoff^{Tersoff.93} (voir chapitre III.3). Les îlots cohérents grossissent et s'allongent en fils lorsqu'ils dépassent un certain volume. L'introduction de dislocations, qui se produit au cours de la descente en température dans les îlots non recouverts, diminue brutalement l'énergie élastique. L'îlot prend alors une forme plus isotrope qui minimise sa surface.

3.3. Observation des îlots sur une couche tampon de Q1.18.

Dans les dispositifs photoréfractifs et les lasers, les îlots d'InAs sont déposés sur une couche de Q1.18. Nous avons donc étudié la formation d'îlots d'InAs sur une couche tampon de Q1.18 et observé l'influence de la température et de la pression d'arsenic sur leurs propriétés.

3.3.1 Résultats de microscopie à force atomique.

Le dépôt nominal d'InAs est compris entre 0.33 et 5 MC, épitaxié à une température du substrat de 500 °C (figure 3). Les îlots ne sont pas recouverts et ont été examinés par microscopie à force atomique. La figure 9 présente trois images en vue plane de 0.5 µm de côté pour 0.33, 1.8 et 5 MC. Pour 0.33 MC (figure 9a), la rugosité est de l'ordre d'une vingtaine d'angströms. On observe des marches d'une ou plusieurs monocouches d'épaisseur ainsi qu'un îlot de 20 Å de haut pour 300 Å de diamètre. La densité des îlots est de 18 / µm². La figure 9b correspondant à un dépôt nominal d'InAs de 1.8 MC, donc légèrement supérieur à l'épaisseur critique. Les îlots font 200 Å de haut et sont probablement relaxés. Ils sont allongés suivant une direction du type $\langle 1 \bar{1} 0 \rangle$ et leur densité est de 80 / µm². Pour un dépôt nominal de 5 MC la densité est beaucoup plus importante à 140 îlots / µm². Ils font environ 150 Å de haut. On constate aussi la présence de plateaux de plusieurs monocouches de hauteur à côté des îlots.

La figure 10a représente la densité des îlots en fonction de l'épaisseur nominale du dépôt. De même que sur une couche tampon d'InP, la transition se situe entre 1.5 et 1.8 MC. En deçà la densité est de l'ordre de 18 / µm². Contrairement au cas InAs/GaAs, il peut se produire des échanges P/As au cours de l'arrêt de croissance et la descente en température qui peuvent conduire à une augmentation de la couche initiale d'InAs et favoriser la formation de quelques îlots. Au-delà, la densité augmente régulièrement entre 1.8 et 5 MC.

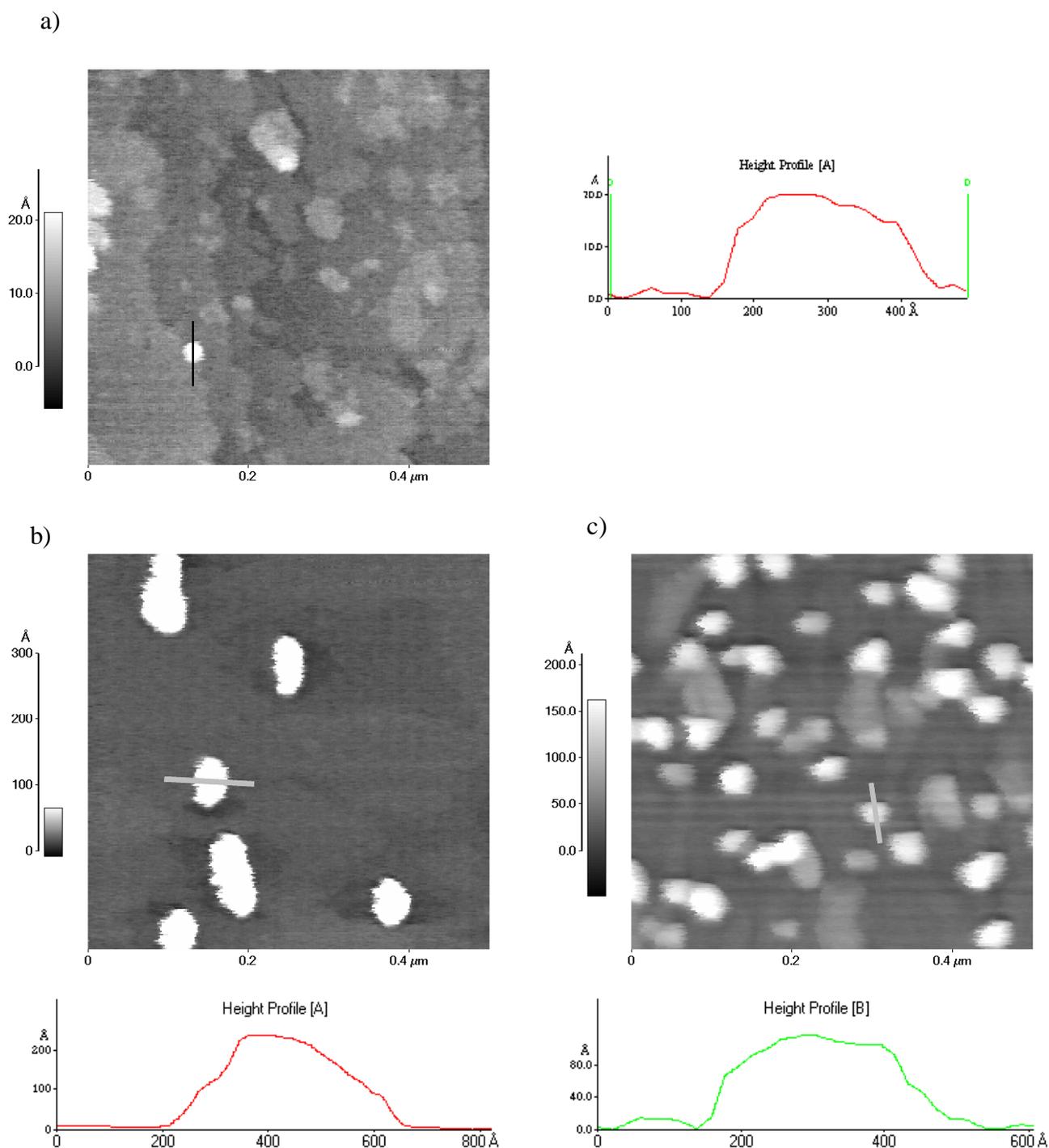


Figure 9: Images en vue plane de clichés de microscopie à force atomique pour un dépôt d'InAs sur une couche tampon de Q1.18.

a) dépôt nominal de 0.3 MC. Profil d'un îlot.

b) dépôt nominal de 1.8 MC. Profil d'un îlot.

c) dépôt nominal de 5 MC. Profil d'un îlot.

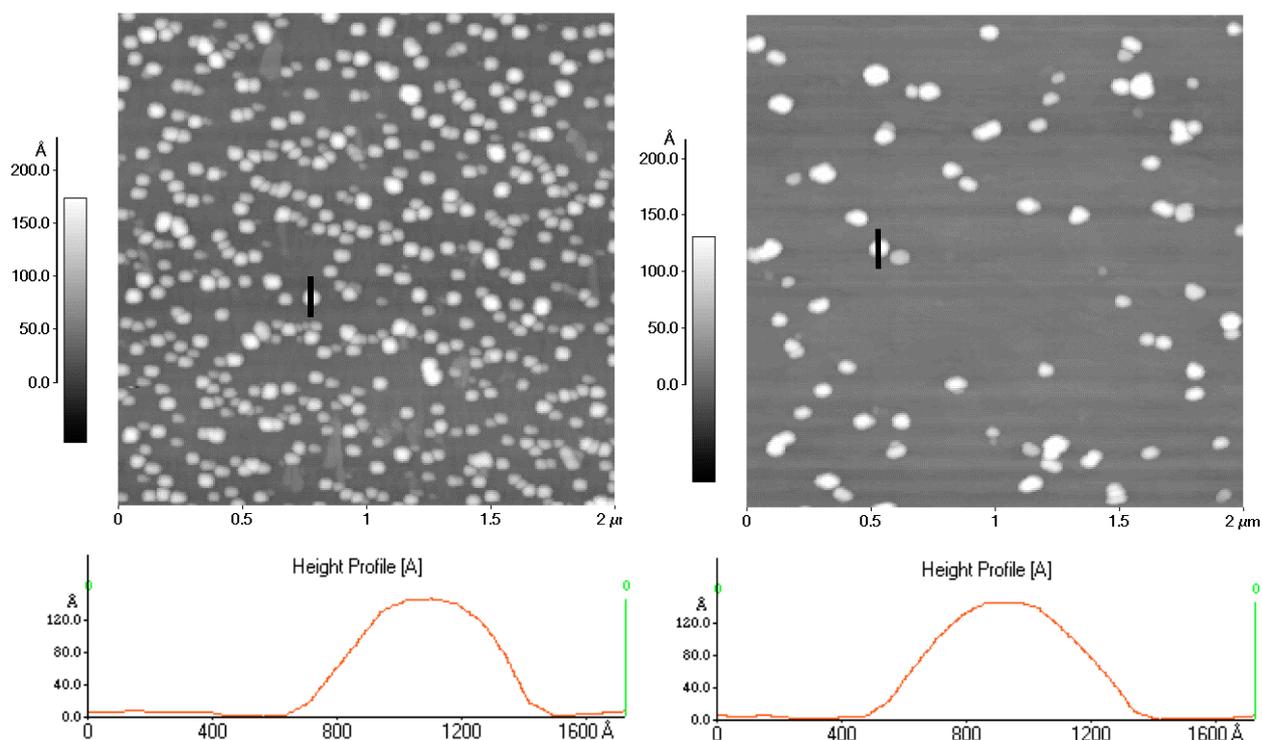
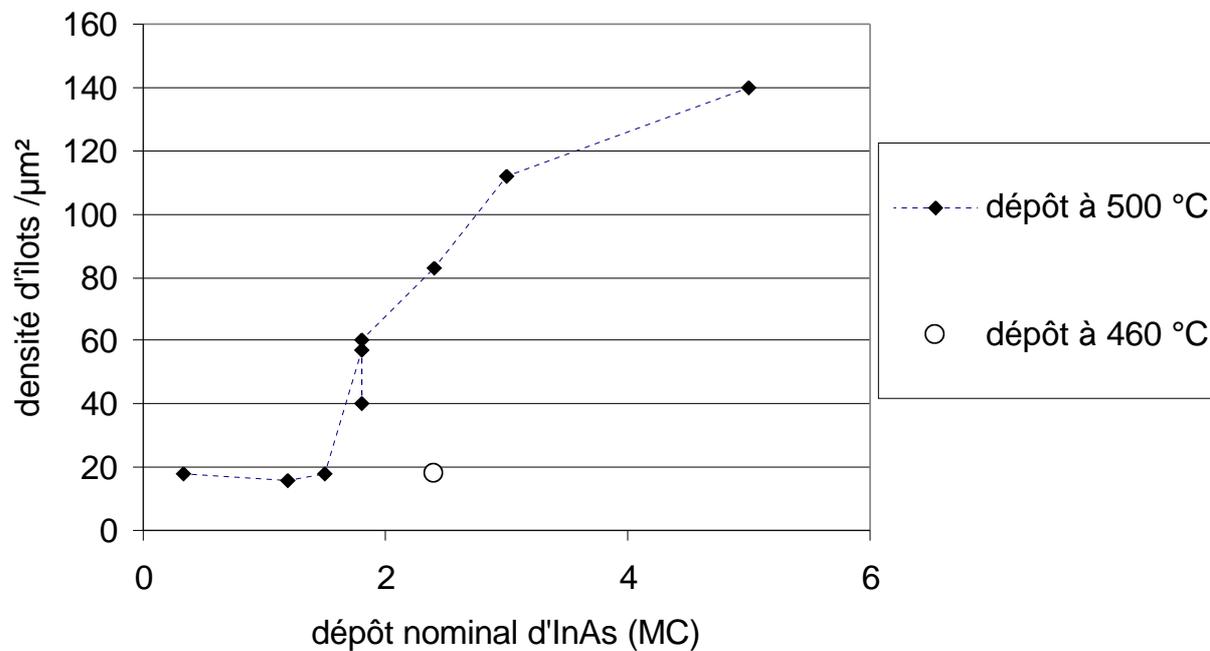


Figure 10: a) Densité d'îlots sur substrat Q1.18 en fonction de l'épaisseur du dépôt nominal (MC), pour deux températures de croissance.

b) et c) Vues planes et profils de clichés de microscopie à force atomique pour deux échantillons de InAs/Q1.18 de 2.4 MC déposées respectivement à une température de 500 et 460 °C.

3.3.2 Influence de la température.

Les images de microscopie à force atomique pour un dépôt de 2.4 MC d'InAs, à des températures du substrat de 500 et de 460 °C, sont présentées en vue plane figures 10b et 10c. La densité des îlots (les valeurs sont reportées sur la figure 10a) est plus faible à basse température, les îlots nucléés ayant alors des tailles légèrement plus importantes. Ces observations sont inverses de celles faites dans le système InAs/GaAs^{Madhukar.94}: à plus basse température les îlots ont des tailles plus faibles alors que leur densité augmente.

Ces différences de comportement avec la température peuvent s'interpréter à partir des modèles décrits dans le chapitre III^{Tersoff.93, Chen.96}. D'après le modèle de Tersoff et coll.^{Tersoff.93}, la nucléation des îlots est thermiquement activée, avec une barrière d'énergie inversement proportionnelle au désaccord paramétrique à la puissance 4 (chapitre III, figure 6). Dans le cas du système InAs/GaAs, le désaccord paramétrique est de l'ordre de 7 % et l'énergie d'activation de la nucléation est faible. La formation des îlots dépend donc peu de la température. Inversement, dans le cas du système InAs/InP, le désaccord paramétrique étant environ deux fois plus faible, l'énergie d'activation est beaucoup plus importante et la nucléation diminue alors fortement avec la température.

A ce phénomène s'ajoute un effet de limitation de la taille des îlots par une accumulation de la contrainte induite dans le substrat en bord d'îlot (chapitre III, figure 10a). Cette accumulation de contrainte est d'autant plus importante que le désaccord paramétrique est élevé. Elle crée une barrière d'énergie pour la diffusion des atomes mobiles vers les îlots et limite ainsi leur croissance (chapitre III, figure 10b). Pour le système InAs/GaAs, ce phénomène est important et explique la réduction des tailles des îlots avec la température^{Oshinowo.94, Madhukar.94}. De plus, la diffusion des atomes vers les îlots dépend dans ce cas de la température. Cet effet est moins important dans le système InAs/InP, le désaccord paramétrique étant moins important. On n'observe pas dans ce cas de diminution des tailles des îlots avec la température.

Ces deux effets, liés à la valeur du désaccord paramétrique, permettent donc une interprétation cohérente lorsque l'on compare les études en fonction de la température dans les systèmes InAs/GaAs et InAs/InP.

3.3.3 Effet d'une faible pression d'arsenic.

Nous avons épitaxié 2.1 MC d'InAs sur Q1.18 en supprimant le flux d'arsenic par la fermeture de la vanne simultanément avec l'ouverture du cache d'indium. Sur le diagramme RHEED apparaît la reconstruction [4×2], caractéristique de la surface riche en éléments III.

La croissance d'InAs se fait en utilisant la pression résiduelle d'arsenic dans le bâti. Le dépôt est suivi d'un arrêt de croissance $t_{AC} = 30$ s sous arsenic, puis une couche d'encapsulation d'InP est déposée. Des images de microscopie à force atomique ont été obtenues après attaque chimique de la couche d'encapsulation. Sur la figure 11, deux images en vue plane et en perspective montrent des fils quantiques d'InAs orientés suivant une direction de clivage $[110]$ ou $[1\bar{1}0]$. La figure 11c est un profil suivant la direction perpendiculaire aux fils sur l'image 11b. Ils font une vingtaine d'angströms de haut et quelques centaines de large. On constate ici la forte influence des conditions de croissance sur la forme des îlots.

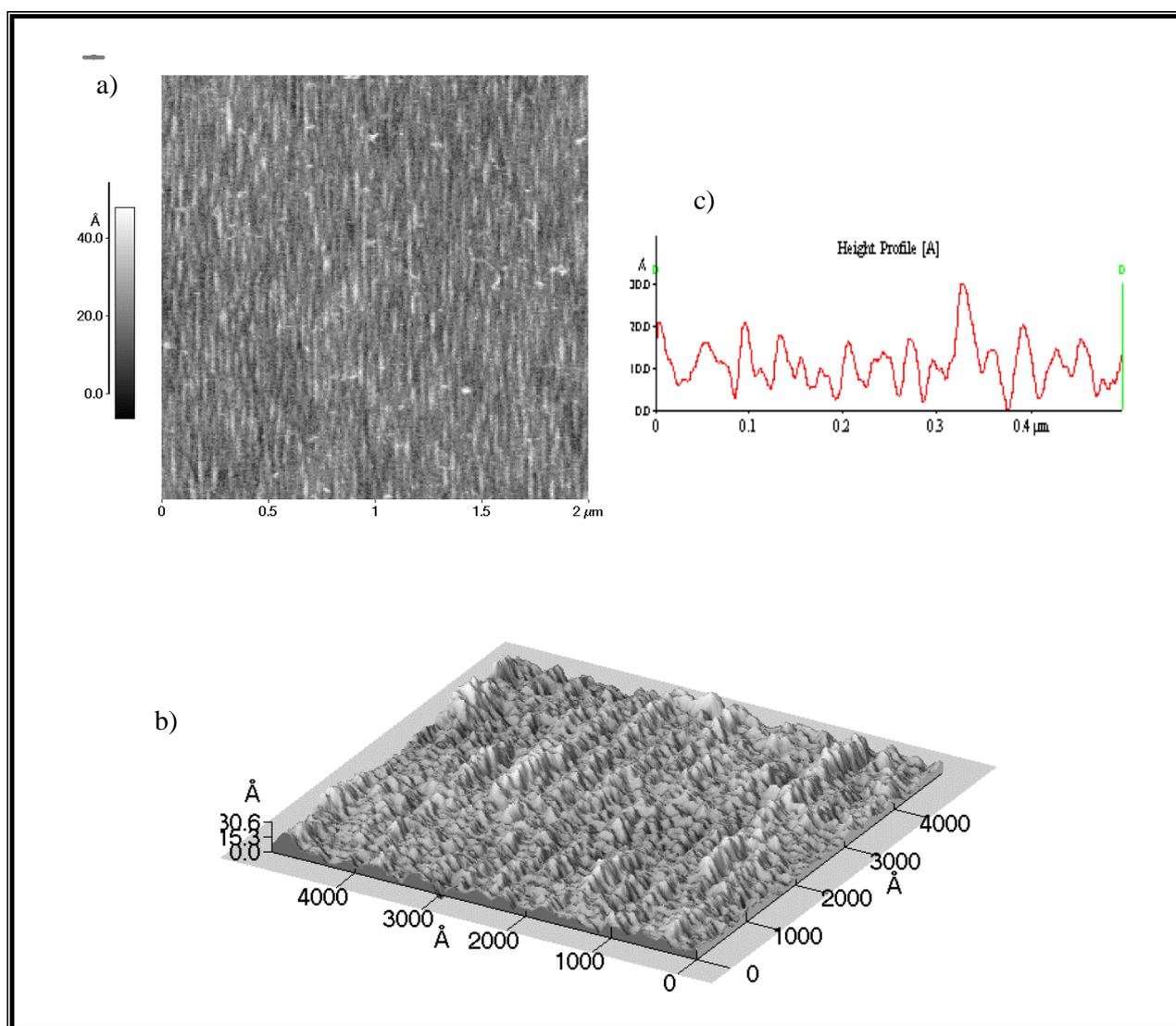


Figure 11: Fils d'InAs observés par microscopie à force atomique après attaque chimique de la couche d'encapsulation.

a) Image $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ en vue plane.

b) Image $0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$ en perspective.

c) Profil des fils d'InAs à partir de l'image b).

3.4. Influence de la couche tampon.

La figure 12 compare des images de microscopie à force atomique de $2 \mu\text{m}$ de côté pour des îlots non recouverts, déposés sur une couche tampon d'InP et de Q1.18. Leurs tailles, diamètre et hauteur, sont plus faibles sur Q1.18 que sur InP. La densité des îlots (figure 12e) est en outre beaucoup plus importante sur Q1.18. La nature de la couche sur laquelle sont déposés les îlots a donc un effet sur la morphologie et la nucléation des îlots. Cet effet pourrait être attribué pour une part à des échanges As/P plus importants sur InP que sur le Q1.18. On constate de plus que les tailles des îlots sont très différentes. Dans le cas de la couche tampon d'InP, les îlots ont coalescé et sont probablement relaxés. On observe donc dans ce cas une relaxation plastique qui accompagne la formation ou la croissance des îlots, alors que sur la couche tampon de Q1.18, les îlots sont beaucoup plus petits et donc probablement cohérents.

J.Brault et coll. ^{Brault.98} ont mis en évidence l'influence de la composition de la couche tampon (InP, $\text{Ga}_{0.47}\text{In}_{0.53}\text{As}$ ou $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$ accordés à InP) sur laquelle sont déposées 3 MC d'InAs. La couche évolue en îlots sur InP et en fils orientés suivant $[1\bar{1}0]$ sur les couches ternaires accordées. Ils ont attribué les différences de morphologie (taille, allongement et distribution des îlots) à un effet d'alliage entre les îlots et la couche tampon qui est fonction de la composition des couches tampon. De plus ils ont observé une corrélation entre la densité d'îlots et la rugosité de la couche tampon, qui augmenterait le nombre de sites de nucléation et limiterait la diffusion des atomes en surface.

Ces phénomènes permettent d'expliquer nos résultats, la couche tampon binaire InP étant probablement plus lisse que le quaternaire Q1.18. Sur InP, la diffusion serait alors plus importante que sur le Q1.18, pour un nombre inférieur de sites de nucléation. De plus, au delà d'une certaine taille, les îlots relaxent ce qui favorise la coalescence. Il y a alors diminution de la densité totale comme observé sur la figure 12e.

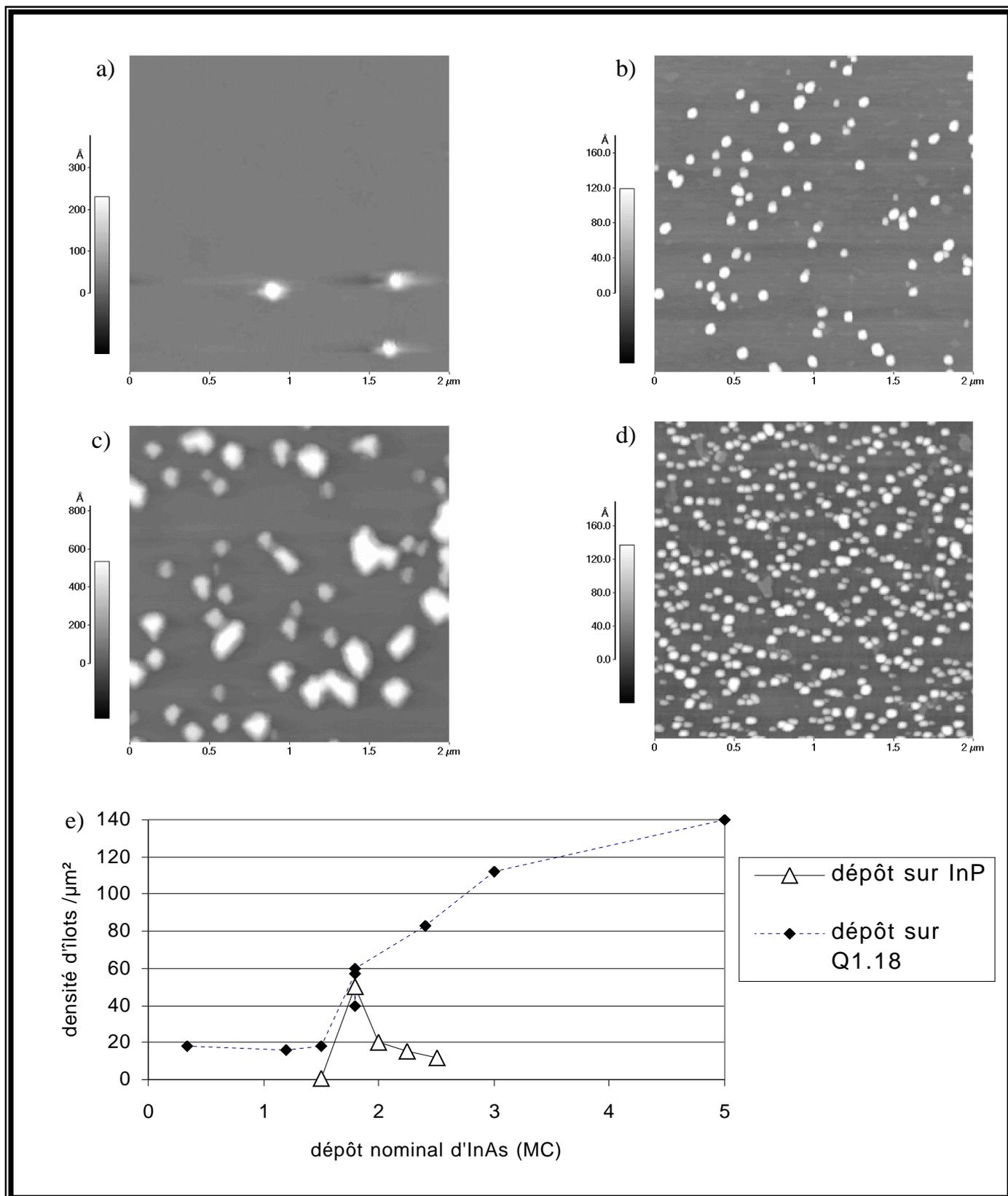


Figure 12: Clichés de microscopie à force atomique d'îlots d'InAs élaborés à 500 °C.
 a) et b) dépôt nominal de 1.5 MC, respectivement sur une couche buffer d'InP et de Q1.18.
 c) et d) dépôt nominal de 2.5 MC, respectivement sur une couche buffer d'InP et de Q1.18.
 e) densité d'îlots déposés sur une couche tampon d'InP et de Q1.18 en fonction du dépôt nominal

3.5. Corrélation des propriétés structurales et optiques d'îlots d'InAs.

Grâce à l'attaque chimique sélective, nous pouvons comparer les propriétés des îlots non recouverts et des îlots recouverts élaborés sur Q1.18^{Fréchengues.97}. Nous avons étudié des échantillons d'InAs d'épaisseur nominale 2.1 MC élaborés à 500 °C, avec une interruption de croissance $t_{AC} = 30$ s. Sur la figure 13 sont représentés les images de microscopie à force atomique correspondant. Les îlots non recouverts ont une hauteur de 150 Å en moyenne avec une distribution des hauteurs très large, allant de 40 à plus de 200 Å (figure 13c). La densité est de 50 / μm^2 . Avec une densité comparable, les îlots recouverts sont environ trois fois moins hauts (50 Å), avec un histogramme des hauteurs compris entre 30 et 90 Å. L'image est moins nette que celle de l'échantillon des îlots non recouverts. Ceci est dû à l'attaque chimique qui entraîne une "rugosification" de l'ordre de 10 Å. L'analyse des images de microscopie à force atomique donne une valeur du diamètre de 400 Å dans les deux cas. Nous constatons donc que la hauteur est divisée par 3 lorsque les îlots sont encapsulés alors que le diamètre des îlots cohérents reste inchangé. A.Ponchet et coll.^{Ponchet.97} ont observé une telle différence de hauteur en comparant des clichés de microscopie électronique en transmission d'îlots d'InAs, épitaxiés sur une couche tampon d'InP, encapsulés et non recouverts. Cet effet ne semble donc pas lié à la nature de la couche tampon.

Connaissant les dimensions des îlots recouverts, nous pouvons calculer la valeur du confinement des porteurs. La valeur moyenne du diamètre des îlots mesurée par microscopie électronique en transmission est de l'ordre de 400 Å, ce qui donne un confinement dans le plan négligeable. En effet il devient significatif pour des valeurs du diamètre inférieures à 300 Å (chapitre 1, figure 4). Nous avons donc modélisé les îlots de hauteur donnée par un puits 2D contraint d'épaisseur équivalente. J.Groenen et coll.^{Groenen.96} ont mesuré la contrainte dans nos îlots par spectroscopie Raman. Ils ont établi que la relaxation du paramètre de maille dans les îlots est inférieure à 15 %^{Groenen.97}, c'est à dire une compression dans le plan comprise entre -2.6 et -2.8 % alors que le désaccord paramétrique est de -3.1 %. L'extension du substrat, contraint en tension sous l'îlot (chapitre III, figure 10), est alors de l'ordre de 0.2 %. Plus de 80 % de la contrainte est situé dans l'îlot, nous supposons donc pour le calcul que l'îlot subi une contrainte biaxiale uniforme et adopte le paramètre de maille du substrat. La méthode de calcul utilisée est celle de la matrice de propagation^{Folliot.98}. Sur la figure 14a est représentée l'énergie de transition entre le premier niveau d'électrons et le premier niveau de trous en fonction de l'épaisseur du puits exprimée en monocouches (1 MC \approx 3 Å).

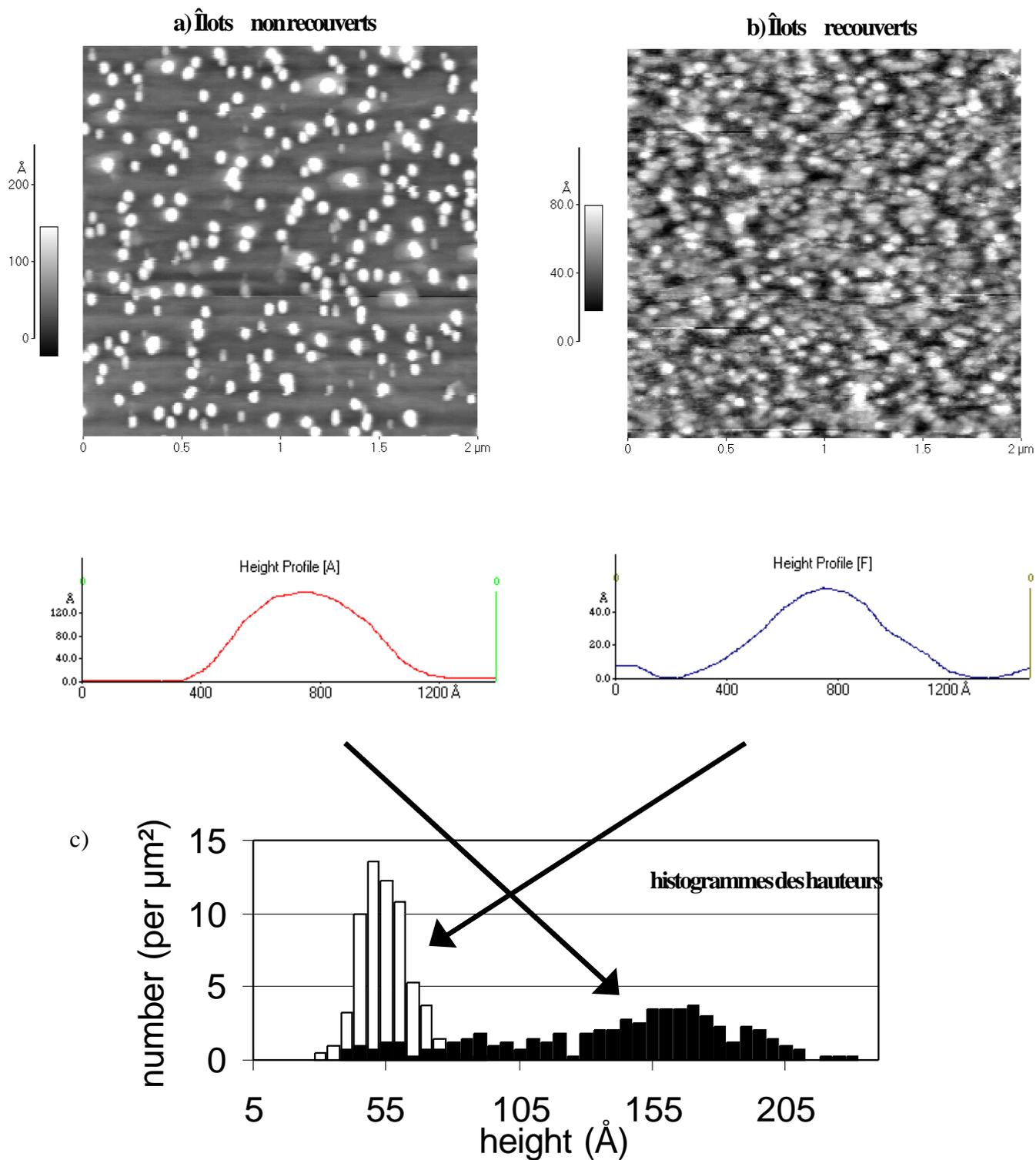


Figure 13: Images en vue plane de microscopie à force atomique et profil d'un îlot pour a) des îlots d'InAs non recouverts et b) des îlots recouverts après attaque chimique. c) histogramme des hauteurs d'îlots pour les deux échantillons a) et b).

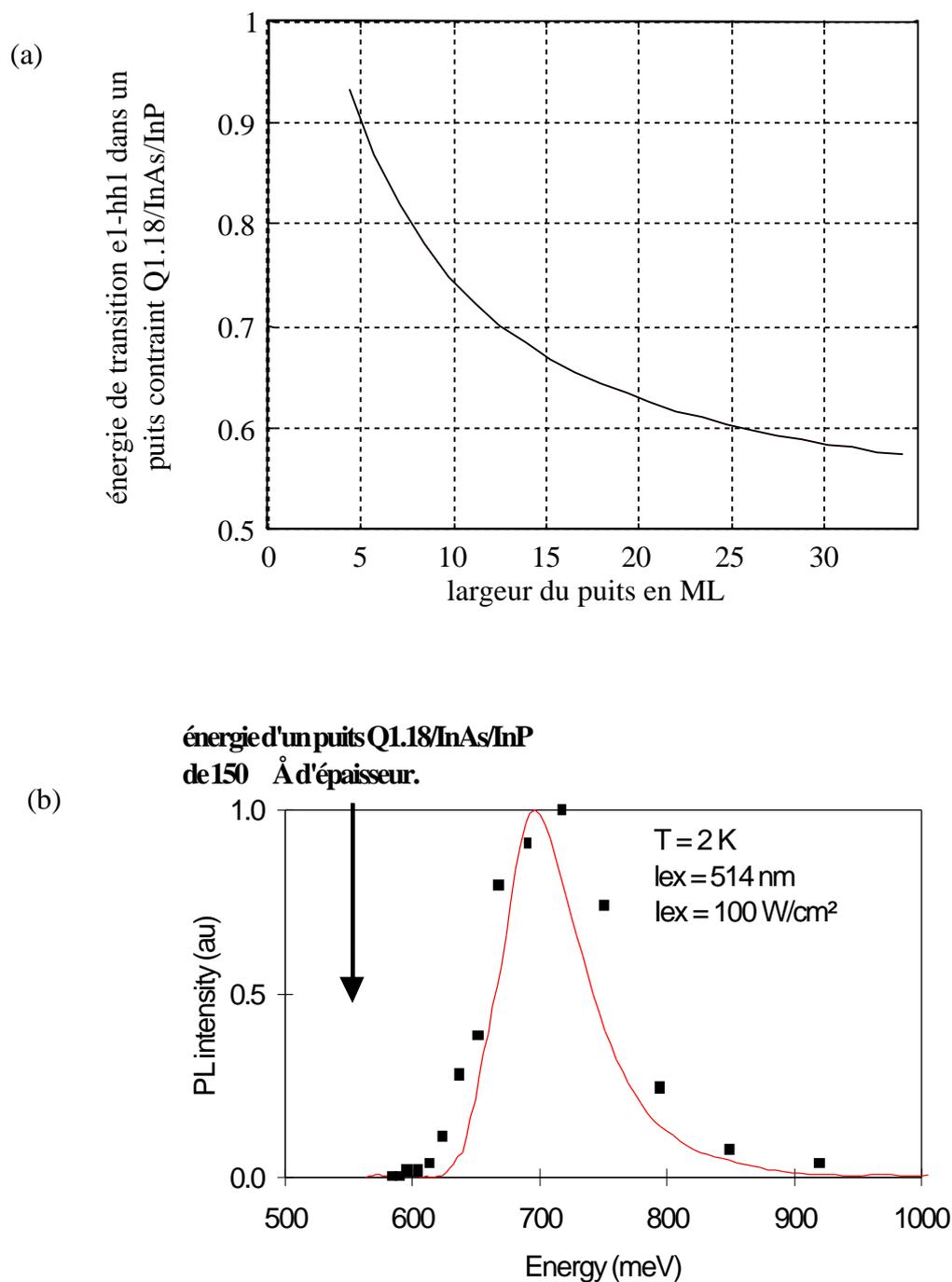


Figure 14: (a) Calcul de l'énergie de transition e1-hh1 entre le premier niveau d'électrons et le premier niveau de trous lourds dans un puits quantique contraint d'InAs déposé sur Q1.18 et recouvert d'InP, à 2 K.

(b) Spectre de photoluminescence à 2 K d'une couche de 2.1 MC d'InAs sur Q1.18 et énergies calculées. Les îlots sont modélisés par des puits contraints: $e_{puits} = h_{îlots}$. La flèche à basse énergie correspond au calcul de l'énergie de transition d'un puits contraint.

Le spectre de photoluminescence à 2 K est présenté figure 14b. Le pic de photoluminescence est centré sur 0.7 eV avec une largeur à mi-hauteur de 80 meV. Les points reportés sur le graphe sont les résultats du calcul réalisé à partir de l'histogramme des hauteurs (figure 13): en abscisse l'énergie de transition e_1-hh_1 pour un puits 2D d'épaisseur égale à la hauteur des îlots et en ordonnée la densité d'îlots ayant cette hauteur normalisée à 1. La flèche à basse énergie (0.55 eV) indique l'énergie calculée pour un puits contraint d'épaisseur 150 Å, hauteur moyenne des îlots non recouverts.

On observe un bon accord entre le calcul, à partir de l'histogramme des hauteurs (figure 13c), et le résultat expérimental de photoluminescence pour les îlots recouverts. Ce résultat prouve la validité de ce modèle et montre que la largeur du pic de luminescence a pour origine la distribution des hauteurs d'îlots.

3.6. Couches en compression de GaInAs.

Pour améliorer l'efficacité des îlots, utilisés comme zone de piégeage dans des dispositifs photoréfractifs rapides, la densité et les dimensions des îlots doivent être les plus élevées possibles, sans création de dislocations. Pour ce faire nous envisageons d'utiliser des couches de plus faible désaccord paramétrique avec InP, permettant un dépôt nominal plus important sans création de dislocations. De plus la corrélation que nous avons réalisée entre désaccord paramétrique et diamètre des îlots, en comparant les systèmes InAs/InP et InAs/GaAs, permet de supposer une augmentation des dimensions des îlots avec la diminution du désaccord paramétrique.

Nous étudions dans ce chapitre des couches de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$, avec $x = 0.0, 0.07, 0.14$ et 0.20 déposées sur une couche de Q1.18 accordée à InP de manière à pouvoir attaquer la couche d'encapsulation d'InP par attaque chimique sélective. Les conditions de croissance sont identiques à celles des couches d'InAs (figure 3). Nous étudions ici l'influence d'une réduction du désaccord paramétrique sur la morphologie des couches. Il est cependant nécessaire de se placer juste au-dessus de l'épaisseur critique de transition 2D-3D pour observer la relaxation élastique sans introduction de dislocations^{Gendry.92}. L'épaisseur nominale des couches varie donc avec la concentration en gallium. Les quatre premiers échantillons présentés dans le tableau ci-dessous ont été réalisés dans les mêmes conditions de croissance, à une température de $500\text{ }^\circ\text{C}$, et avec $t_{AC} = 30\text{ s}$, les couches étant ensuite recouvertes de 500 \AA d'InP. L'effet d'une température de croissance élevée ($540\text{ }^\circ\text{C}$) a été étudié sur des couches de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ non encapsulées et encapsulées par 500 \AA d'InP. Enfin, une couche de 30 MC de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ a été réalisée: un premier dépôt (10 MC) à $500\text{ }^\circ\text{C}$ est suivi d'un dépôt de 20 MC à $540\text{ }^\circ\text{C}$ après un arrêt de croissance sous As.

Couches $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$	Désaccord paramétrique (%)	Epaisseur nominale (MC)	Conditions de croissance
$x = 0.00$	3.2	2.1	recouvert, $T = 500\text{ }^\circ\text{C}$
$x = 0.07$	2.75	6.4	recouvert, $T = 500\text{ }^\circ\text{C}$
$x = 0.14$	2.26	11.9	recouvert, $T = 500\text{ }^\circ\text{C}$
$x = 0.20$	1.85	17.1	recouvert, $T = 500\text{ }^\circ\text{C}$
			non recouvert / recouvert, $T = 540\text{ }^\circ\text{C}$
$x = 0.20$	1.85	30	recouvert, $T = 500$ puis $540\text{ }^\circ\text{C}$

Je présente d'abord les caractérisations des quatre premiers échantillons élaborés à $500\text{ }^\circ\text{C}$. Dans une deuxième partie, sont étudiés les échantillons élaborés à $540\text{ }^\circ\text{C}$.

3.6.1 Croissance à 500 °C.

Les études structurales ont été menées par microscopie électronique en transmission en vue plane (figure 15) et microscopie à force atomique après attaque chimique sélective (figure 16) sur les quatre échantillons encapsulés, élaborés à 500 °C.

Nous avons décrit au chapitre précédent les couches d'InAs. Pour un dépôt de 2.1 MC, il n'y a pas coalescence des îlots, qui sont au nombre de 50 / μm^2 . Ils font en moyenne 50 Å de haut et 500 Å de large.

Pour 7 % de Ga on observe la coexistence d'îlots et de fils allongés suivant la direction [1-10]. Dans les deux cas la hauteur est d'environ 40 Å. Les fils ont une largeur équivalente au diamètre des îlots, en moyenne de 400 Å. La longueur des fils est de 1000 à 2000 Å. L'observation par microscopie électronique en transmission en section transverse montre que la couche de mouillage est au plus de l'ordre de quelques monocouches. Le cliché en vue plane de microscopie électronique en transmission (figure 15a) montre une morphologie de fils allongés toujours suivant la direction [1-10], la proportion d'îlots étant beaucoup plus faible que pour l'échantillon précédent. En moyenne, ces fils font 50 Å de haut et 300 Å de large. Les clichés de microscopie à force atomique réalisés après attaque chimique montrent aussi un allongement suivant une direction de clivage. Une rugosité que l'on peut attribuer à l'attaque chimique gêne cependant l'observation détaillée de la couche. Pour 14 % de gallium, on n'observe plus d'îlots à proprement parler mais une ondulation suivant la direction [1-10] (figures 15b et 16c). Diminuer le désaccord paramétrique de 3.2 à 2.3 % alors que l'épaisseur nominale passe de 2.1 à 11.9 MC, a modifié la morphologie des couches relaxées élastiquement.

Pour la couche de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ (17 MC, 500 °C) on observe des vallées creusées dans la couche 2D (figures 15c et 16d). L'observation d'une section transverse par microscopie électronique en transmission a permis de mesurer une profondeur d'environ 25 Å, alors que la hauteur de la couche est proche de l'épaisseur nominale déposée (17 MC). L'évolution de la couche vers une configuration 3D est moins avancée que pour les échantillons précédents, et la relaxation élastique n'est pas complète.

La figure 17a présente la photoluminescence à 2 K pour les quatre échantillons décrits ci-dessus. L'énergie du pic de luminescence évolue peu pour les différents échantillons. En effet l'augmentation de l'énergie de bande interdite avec la concentration en gallium (figure 17b) dans les couches est compensée par l'augmentation de l'épaisseur déposée qui diminue le confinement. Conformément aux observations structurales, la photoluminescence à 2 K de l'échantillon à 20 % de Ga est caractéristique d'un puits quantique, avec une largeur à mi-

hauteur de 26 meV alors que celle des îlots ou des fils est comprise entre 73 meV pour InAs et 42 meV pour $\text{Ga}_{0.14}\text{In}_{0.86}\text{As}$.

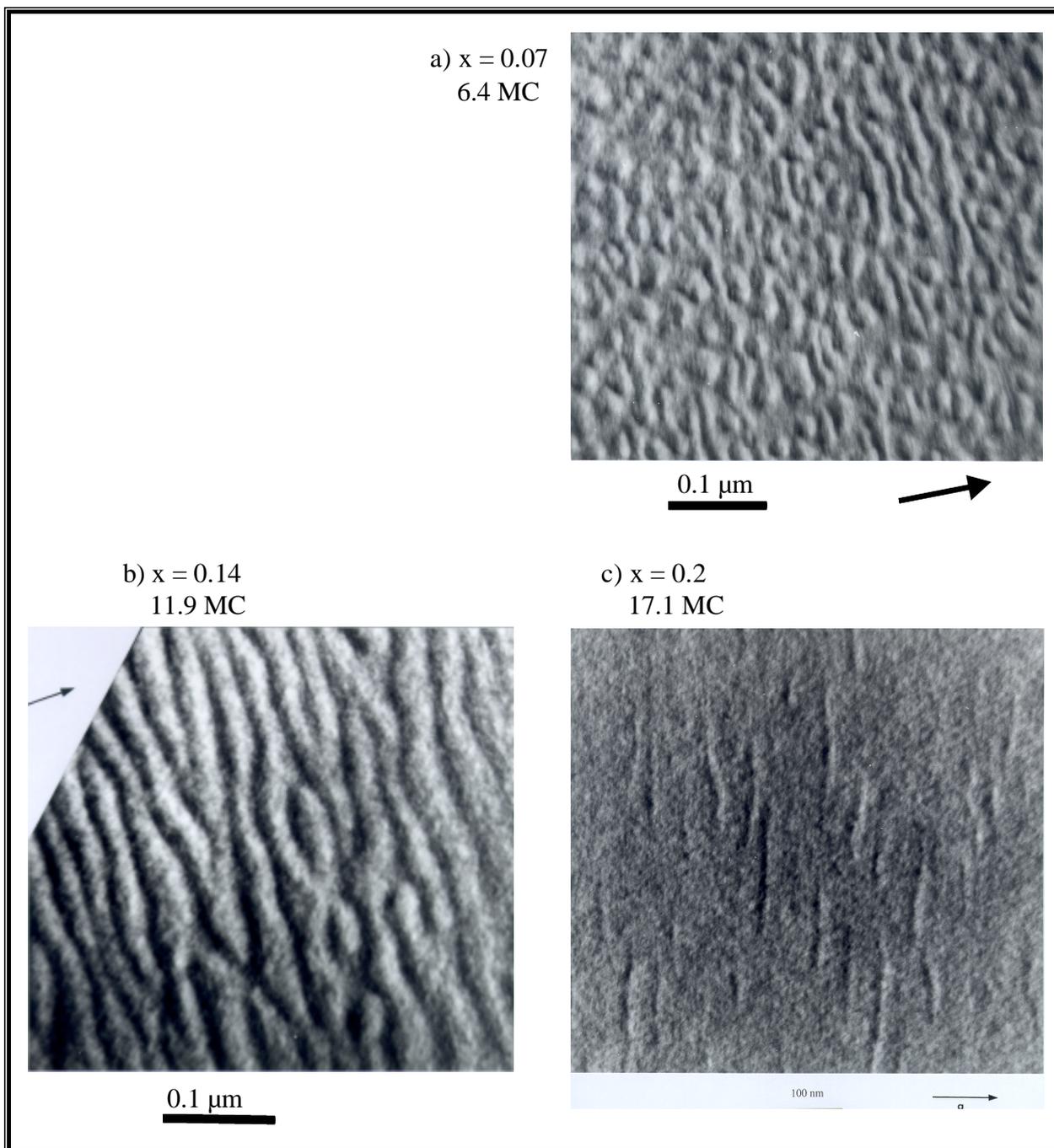


Figure 15: Clichés TEM en vue plane pour des couches de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$, déposées sur une couche tampon de Q1.18 à 500 °C. Le vecteur g indiqué sur les 3 images correspond à la direction $[110]$. Les îlots et les vallées sont donc orientés suivant $[1-10]$.

a) $x = 0.07$. b) $x = 0.14$. c) $x = 0.20$.

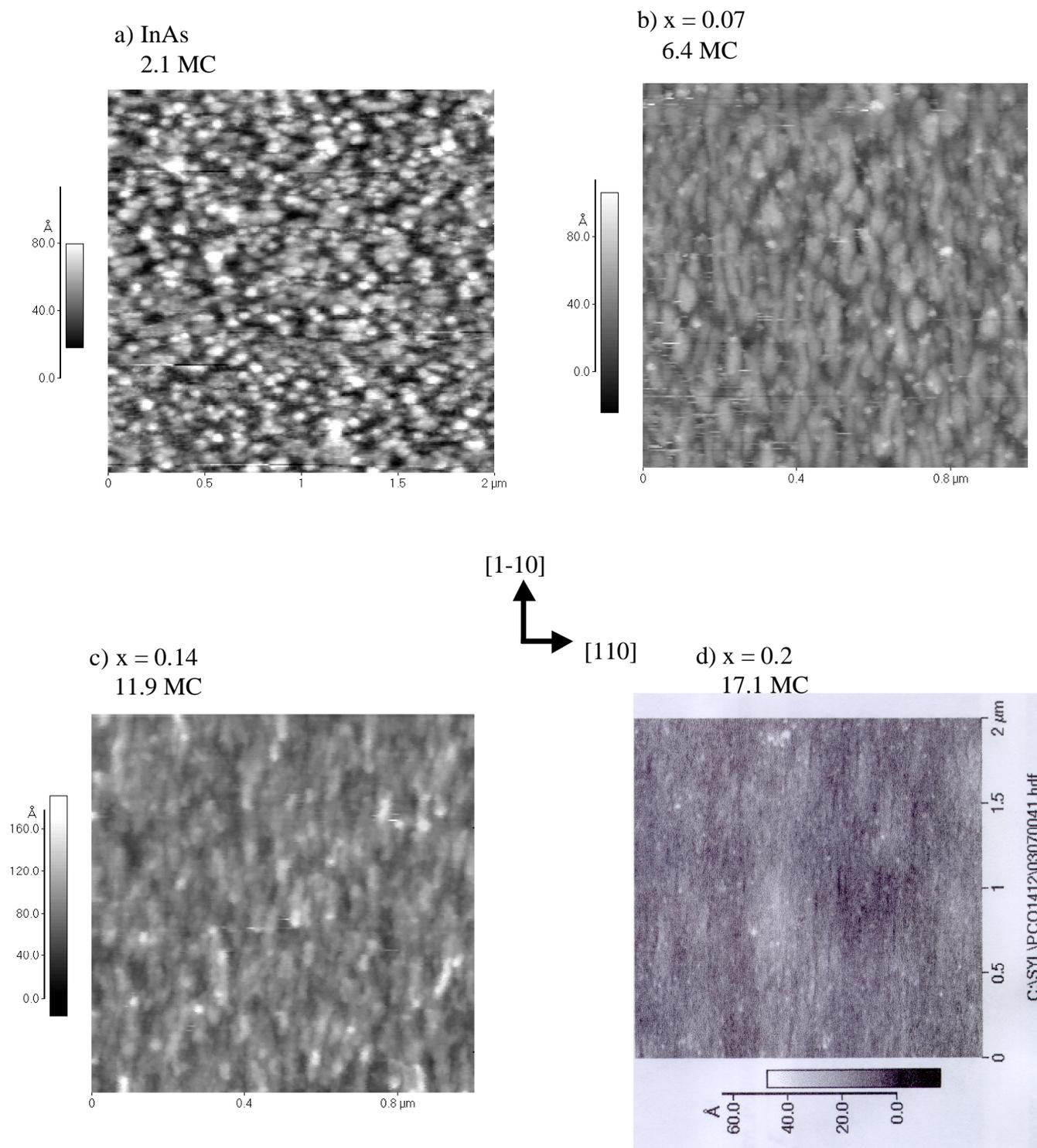


Figure 16: Images de microscopie à force atomique, prises après attaque chimique, pour des couches de $Ga_xIn_{1-x}As$ déposées sur une couche tampon de $Q1.18$ à $500\text{ }^\circ\text{C}$. Les images b), c) et d) sont orientées comme indiqué ci-dessus. Pour l'image a) les directions sont du type $[110]$ mais nous n'avons pas distingué $[1-10]$ et $[110]$. a) InAs. b) $x = 0.07$. c) $x = 0.14$. d) $x = 0.20$.

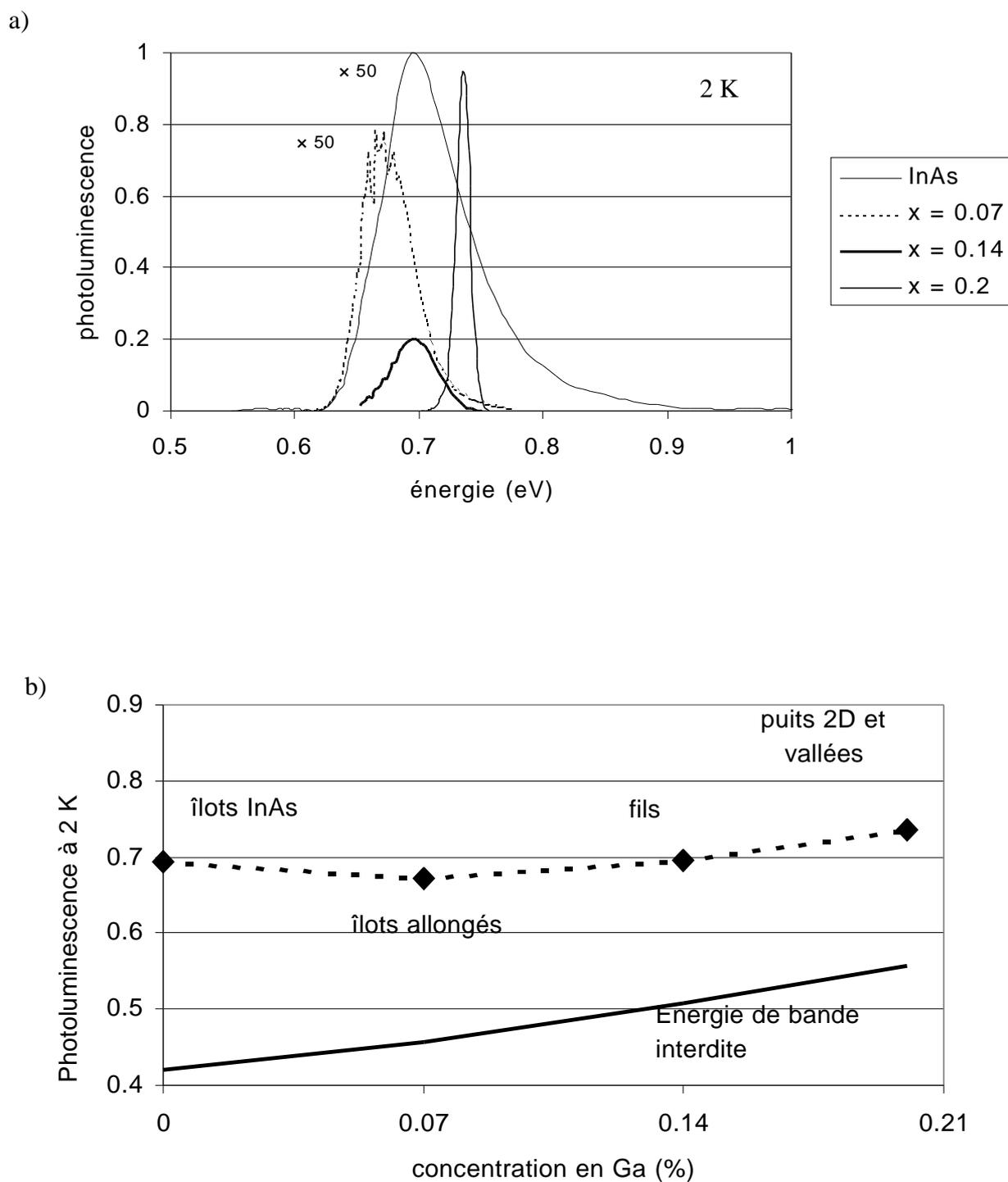


Figure 17: a) Photoluminescence à 2 K pour les couches de $Ga_xIn_{1-x}As$ ayant des concentrations en Ga de 0, 7, 14 et 20 % et élaborées à 500 °C.

b) Evolution de la largeur de bande interdite et de l'énergie du pic de photoluminescence.

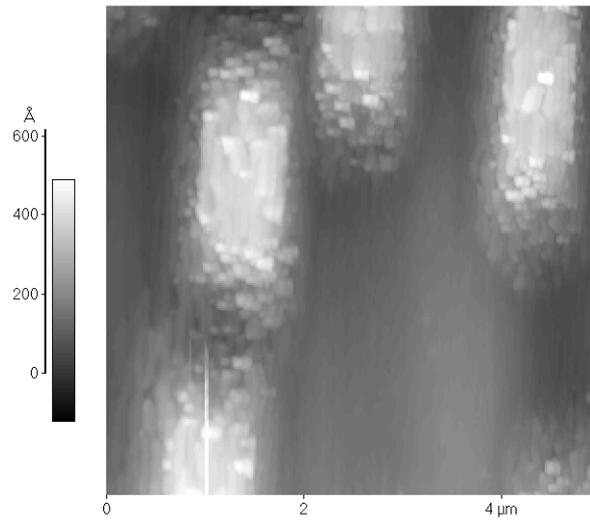
3.6.2 Croissance à 540 °C.

Nous venons de voir que la transition 2D-3D élastique d'une couche de 17.1 MC de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ élaborée à une température de croissance de 500 °C n'est pas observée. Nous avons vu dans le cas de InAs cette transition est thermiquement activée (figures 10b et 10c). Nous avons donc étudié des couches de 17.1 MC de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ élaborée à une température de croissance de 540 °C. Les figures 18a et 18b sont des images de microscopie à force atomique pour les couches respectivement non recouverte et encapsulée avec 500 Å d'InP. Une attaque chimique sélective a alors été utilisée pour révéler la couche contrainte. Nous avons observé de gros défauts, tant sur l'échantillon non recouvert que sur l'échantillon recouvert. Ce sont des parallélépipèdes rectangles de 400 Å de haut, 1 µm de large pour 2 µm de long dans le plan. Ils sont probablement dus à la désorption du phosphore dans le Q1.18 à haute température. Ces conditions d'élaboration ne permettent donc pas d'épitaxier une couche contrainte de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ sur une couche tampon de Q1.18.

Nous avons alors élaboré un échantillon de 30 MC de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ dans des conditions différentes. Un premier dépôt de 10 MC est effectué à 500 °C, suivi d'un arrêt de croissance sous As. Il est suivi d'un dépôt de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ à 540 °C jusqu'à l'observation de la transition 2D-3D par RHEED (20 MC). Cette procédure a été utilisée pour éviter la désorption du phosphore du Q1.18. La couche de 30 MC d'épaisseur finale est alors immédiatement recouverte d'InP, sans arrêt de croissance sous As.

Après attaque chimique les images de microscopie à force atomique (figures 19a et 19b) montrent une morphologie de fils. La période moyenne de l'ondulation dans la direction perpendiculaire aux fils est de 600 Å pour une hauteur moyenne de 40 Å (figure 19c). Le pic de photoluminescence est à 0.66 eV, et l'intensité de luminescence est 25 fois plus faible que pour la couche de 17.1 MC élaborée à 500 °C. Cette chute d'intensité peut être due à la présence de dislocations.

a) non recouvert



b) recouvert

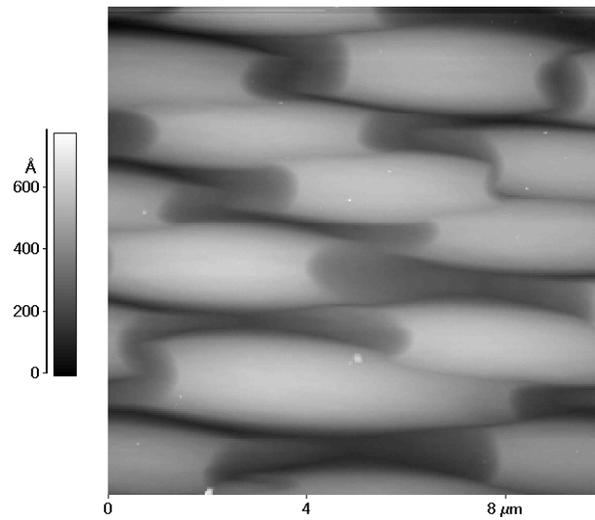


Figure 18: Images de microscopie à force atomique des échantillons de $Ga_{0.2}In_{0.8}As$ a) non recouvert et b) recouvert après attaque sélective de la couche encapsulante d'InP, élaborés à $540^{\circ}C$.

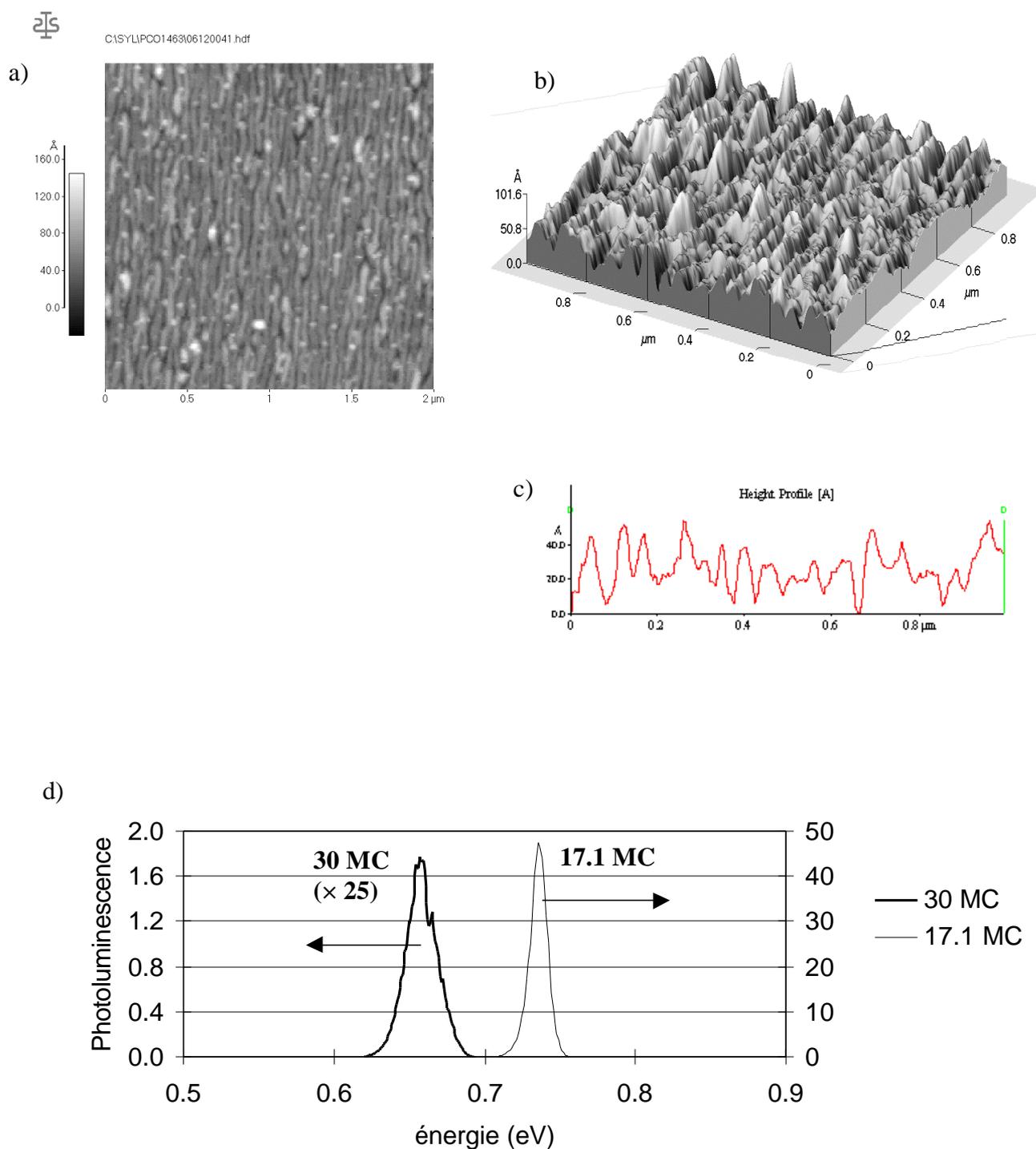


Figure 19: Couche de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ de 30 MC d'épaisseur. Un premier dépôt de 10 MC à 500 °C est suivi d'un deuxième dépôt de 20 MC à 540 °C.

a) Image de microscopie à force atomique de $2 \times 2 \mu\text{m}^2$.

b) vue 3D d'une image de microscopie à force atomique de $1 \times 1 \mu\text{m}^2$.

c) profil suivant la direction [110] perpendiculaire aux fils.

d) Photoluminescence à 2K comparée avec l'échantillon de 17.1 MC élaboré à 500 °C.

4. Des îlots d'InAs comme zone active d'un laser à 1.55 μm sur InP?

Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.2, dès les premiers stades de croissance, les îlots d'InAs confinent les porteurs dans le plan, limitant ainsi leur diffusion vers des centres de recombinaison non radiative. Ils possèdent ainsi un fort rendement de luminescence à température ambiante, démontrant leur intérêt pour la réalisation de structures laser.

Dans le but d'optimiser les conditions de croissance pour une émission à 1.55 μm , nous avons cherché à réaliser des plateaux d'une même épaisseur de 8 MC en jouant sur le temps d'interruption de croissance qui suit le dépôt de la couche nominale d'InAs. On a choisi une température de croissance de 460 °C pour laquelle on s'attend à une cinétique de formation des plateaux moins rapide qu'à 500 °C et donc plus contrôlable.

Sur la figure 20a est représentée la photoluminescence de plateaux obtenus à partir de 2 MC d'InAs déposées sur une couche tampon de Q1.18 à 460 °C. On constate que la photoluminescence observée à 2 K provient essentiellement de plateaux de 5 MC d'épaisseur, tel que nous l'avons calculé précédemment. Il est donc possible de contrôler le processus de transition élastique 2D-3D, par une croissance à basse température, pour obtenir une émission de luminescence d'une seule épaisseur de plateaux. Nous allons maintenant faire varier le temps d'interruption de croissance sous arsenic pour tenter d'ajuster cette énergie à 1.55 μm .

La figure 20b présente la photoluminescence à température ambiante de plateaux obtenus avec un dépôt de 2.4 MC d'InAs sur une couche tampon de Q1.18 à 460 °C. Les différents échantillons correspondent à des temps de recuit t_{AC} compris entre 35 et 60 s. Cette croissance à relativement basse température montre une évolution plus lente des plateaux vers une forme d'îlot. Ces spectres de photoluminescence comptent plusieurs pics correspondants à des plateaux (8 MC, 0.82 eV) et à des îlots à plus basse énergie (0.6 à 0.7 eV). Nous remarquons qu'un des pic de luminescence se situe à une énergie proche de 1.55 μm . Il coexiste cependant avec d'autres pics à plus basse énergie. Il est donc difficile de contrôler la hauteur et donc l'énergie d'émission des plateaux et de "sélectionner" une seule raie d'émission à ce stade de la transition élastique 2D-3D. En effet il s'agit là d'un phénomène cinétique hors équilibre, la configuration en plateaux n'étant pas stable. Nous avons voulu observer la structure des couches non recouvertes par microscopie à force atomique. Les images ont montré la présence d'îlots bien formés: les plateaux non stabilisés par une couche d'encapsulation d'InP évoluent donc vers des îlots pendant la descente en température.

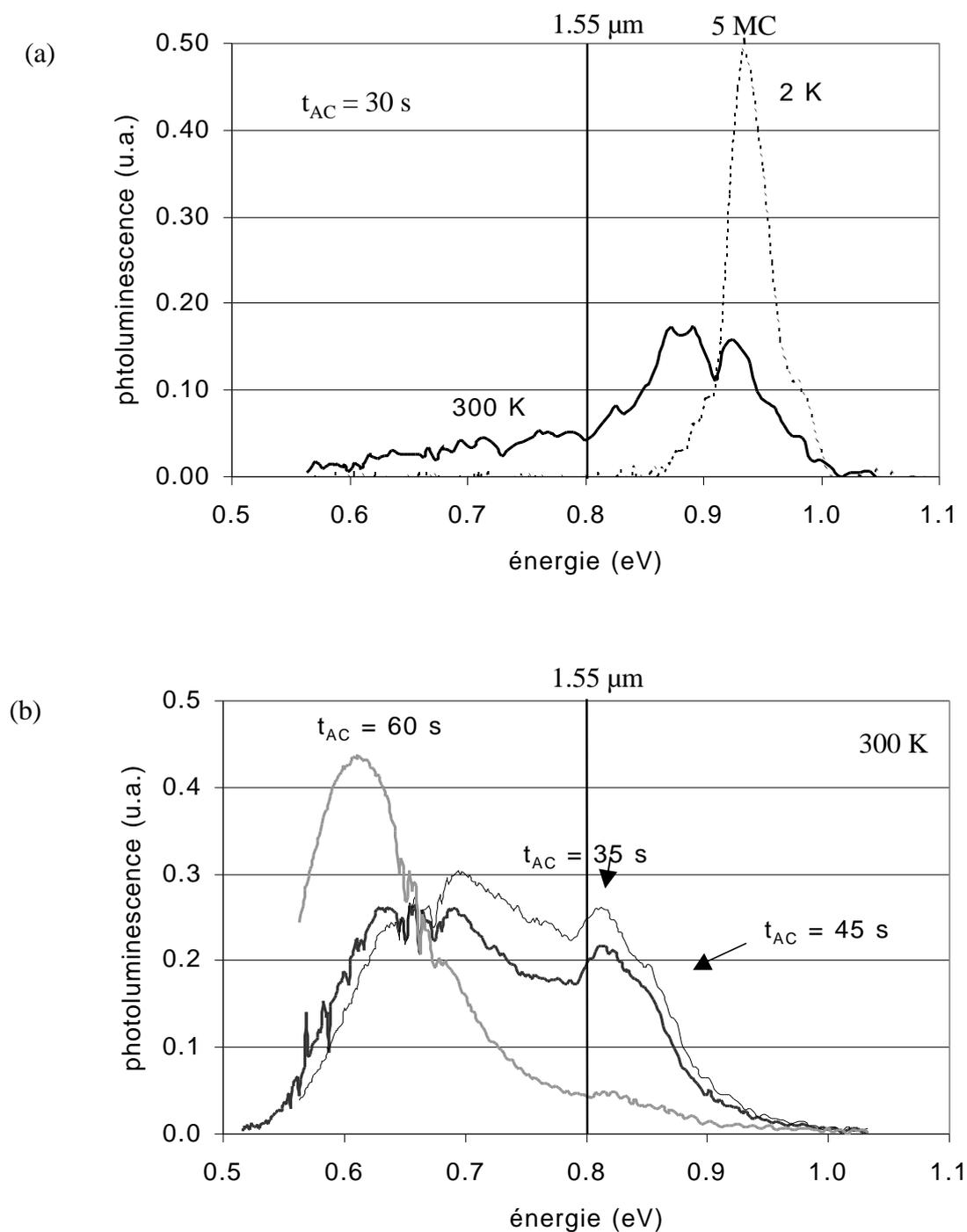


Figure 20: a) Photoluminescence de plateaux d'InAs obtenus à partir d'un dépôt nominal de 2 MC déposées sur substrat InP (001) à 460 °C, avec $t_{AC} = 30$ s. A température ambiante le pic de luminescence est altéré par l'absorption de l'eau.

b) Photoluminescence à température ambiante de plateaux d'InAs obtenus à partir d'un dépôt nominal de 2.4 MC sur un substrat d'InP (001) à 460 °C.

5. Discussion et conclusion du chapitre.

Les couches contraintes d'InAs déposées sur substrat InP(001) présentent de grandes différences avec celles déposées sur GaAs(001). Bien que l'épaisseur critique observée soit proche, la taille et la distribution des îlots diffèrent. Leur densité est moindre sur substrat InP alors que le volume des îlots est plus important. Le modèle de Tersoff^{Tersoff.93} éclaire la comparaison des deux systèmes. En effet l'énergie d'activation pour la nucléation d'un îlot et son volume (définis dans le chapitre III) sont inversement proportionnels au désaccord paramétrique respectivement puissance 4 et 6. La nucléation d'îlots est donc plus difficile pour un désaccord paramétrique deux fois plus faible et donc un volume critique qui est théoriquement 64 fois plus important^{Tersoff.94}, si l'on considère constantes les autres grandeurs intervenant. L'effet de la température sur la vitesse d'évolution des plateaux^{Rudra.94} et la densité finale des îlots (figures 10b et 10c) montre que la nucléation et la croissance des plateaux et îlots sont gouvernées par des processus thermiquement activés^{Dobbs.97}. Diffusion des atomes en surface, attachement et détachement des atomes sur les bords des îlots, saut des atomes des bords vers le sommet des îlots sont les processus envisagés lors de la croissance des îlots dans le modèle présenté par Dobbs et coll.^{Dobbs.97}. Ainsi la transition élastique 2D-3D observée dans le système InAs/InP est continue, et non pas brutale comme cela a été proposé pour InAs/GaAs^{Priester.95}.

La transition élastique 2D-3D n'est donc pas de la même nature pour les systèmes InAs/InP et InAs/GaAs. La cinétique de la transition 2D-plateaux-îlots durant l'arrêt de croissance est contrôlée par les paramètres de croissance, température et pression d'éléments V. Dans ces premiers stades de la croissance, la relaxation provient essentiellement des bords des plateaux. La déformation du substrat contribue aussi à la relaxation élastique, celle-ci étant d'autant plus importante que le rapport hauteur/diamètre est important^{Ponchet.98}. Dans ce cas, le substrat est déformé en tension sous l'îlot, et apparaît une concentration de contrainte en compression dans le substrat en bord d'îlot (chapitre III, figure 10). Les atomes des bords, sur-contraints, ont alors tendance à sauter vers des sites de plus faible énergie, sur le dessus des plateaux. La croissance en hauteur se fait par sauts des atomes mobiles de surface des bords vers le sommet des plateaux pour venir former une nouvelle monocouche^{Dobbs.97}. Un tel phénomène de croissance permet d'expliquer le passage continu 2D-plateaux-îlots ainsi que la limitation du diamètre pour les îlots cohérents.

L'influence de la température sur la densité des îlots est radicalement différente dans les systèmes InAs/GaAs et InAs/InP. En effet nous avons vu dans le chapitre III que pour le premier, InAs/GaAs, la densité des îlots augmente à plus basse température^{Madhukar.94}, alors que celle-ci diminue dans le cas du système InAs/InP (figure 10a). Cette différence peut s'expliquer en considérant les différents phénomènes thermiquement activés gouvernant la transition élastique 2D-3D. Il s'agit d'une part de l'énergie d'activation de la nucléation (chapitre III, figure 6), faible dans le cas de InAs/GaAs. La nucléation dépend donc peu de la température, ce qui n'est pas le cas dans le système InAs/InP, diminuant ainsi la densité totale des îlots à plus basse température. D'autre part il existe une barrière d'énergie en bord d'îlot provenant du champ de contrainte non-uniforme dans le substrat (chapitre III, figure 10a), celle-ci limitant la diffusion des atomes vers les îlots^{Chen.96}, et donc leur taille finale. Cette énergie augmente avec le désaccord paramétrique: elle est donc plus importante dans le système InAs/GaAs que dans le système InAs/InP. Ainsi, à basse température, on observe sur substrat GaAs des îlots d'InAs plus petits et en plus grande densité qu'à haute température.

Nous avons étudié la morphologie et les propriétés optiques de plans d'îlots d'InAs/InP en fonction de l'épaisseur nominale déposée. Les îlots non recouverts déposés sur InP coalescent et relaxent plastiquement, alors que sur une couche tampon de Q1.18 la densité des îlots augmente régulièrement avec le dépôt. Cet effet de la couche tampon peut être dû à la différence des énergies de surface et d'interface qui favorise la nucléation sur Q1.18 par rapport à InP. Une autre interprétation possible est la différence de rugosité entre les deux types de couches tampon, qui peut influencer sur la nucléation des îlots^{Brault.98} et sur la diffusion des atomes en surface.

Les îlots non recouverts et encapsulés sont très différents, les premiers étant environ trois fois plus hauts que les seconds. Pour corréler tailles et propriétés optiques des îlots, nous avons utilisé une attaque chimique sélective qui a permis l'observation d'îlots encapsulés par microscopie à force atomique. Nous avons constaté que l'élargissement du pic de luminescence provient de la dispersion des hauteurs des îlots, modélisés par des puits quantiques contraints.

Les îlots obtenus sur Q1.18, pour une croissance à 500 °C suivie d'une interruption de croissance de 30 s sous arsenic, ont été utilisés comme zone de piégeage des porteurs dans un dispositif photoréfractif rapide^{Le Corre.97}.

En déposant des couches plus épaisses de InAs ou (Ga)InAs, un allongement en fils suivant la direction $[1\bar{1}0]$ est constaté. Pour 4 MC d'InAs^{Ponchet.95} et 6.4 MC de Ga_{0.07}In_{0.93}As (figures 15a, 16a et 16b) cet allongement a pour origine la coalescence entre îlots. Le calcul de Tersoff^{Tersoff.93} a prédit un tel allongement des îlots suivant une direction particulière au-delà d'un certain diamètre et donc lorsque la quantité de matière déposée est importante. La relaxation de couches moins contraintes (désaccord paramétrique compris entre 1.85 et 2.26 %) et plus épaisses se fait sans nucléation d'îlots mais par une ondulation de la surface (figures 15b et 16c pour Ga_{0.14}In_{0.86}As et figure 16d pour Ga_{0.2}In_{0.8}As). L'utilisation de ces fils peut être envisagée dans des dispositifs photoréfractifs. En effet les fils orientés parallèlement aux franges d'interférence permettraient le blocage de la diffusion des porteurs dans la direction perpendiculaire (chapitre I, figure 5b).

Nous avons ensuite tenté de mettre à profit les propriétés optiques intéressantes des plateaux pour les utiliser comme zone active d'un laser émettant à 1.55 μm . L'émission associée à une seule épaisseur de plateaux à haute énergie, c'est à dire au début de la transition élastique 2D-3D a été obtenue. Cependant la longueur d'onde de 1.55 μm est atteinte pour des plateaux plus évolués et proches des îlots. Dans ces conditions nous n'avons pu contrôler leur évolution et donc leurs caractéristiques.

Le modèle de Tersoff, que nous avons utilisé pour interpréter nos résultats, montre que la nucléation et la géométrie des îlots dépend d'un terme d'énergie élastique mais aussi des énergies de la surface du substrat et des facettes des îlots. Pour jouer sur ces énergies de surface et tenter d'améliorer les caractéristiques des îlots pour la réalisation d'un laser à 1.55 μm nous avons étudié la transition élastique 2D-3D dans des couches de (Ga)InAs sur substrat InP orienté (113)B. Cette étude fait l'objet du chapitre V.

- Brault.⁹⁸ J.Brault et M.Gendry, communication privée (1998). J.Brault, M.Gendry, G.Grenet, G.Hollinger, Y.Desières and T.Benyattou, "Role of buffer surface morphology and alloying effects on the properties of InAs nanostructures grown on InP (001), Appl.Phys.Lett. 73, 2932-2934 (1998).
- Carlin.⁹¹ J.F.Carlin, R.Houdré, A.Rudra and M.Ilegems, "Island formation in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy", Appl.Phys.Lett. 59(23), pp.3018-3020 (1991).
- Carlin.⁹² J.F.Carlin, A.Rudra, R.Houdré, P.Rutenara and M.Ilegems, "Effect of growth interruptions on ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy.", J.Crys.Growth 120, pp.155-156 (1992).
- Cirlin.⁹⁵ G.E.Cirlin, G.M.Guryanov, A.O.Golubok, S.Ya.Tipissev, N.N.Ledentsov, P.S.Kop'ev, M.Grundmann and D.Bimberg, "Ordering phenomena in InAs strained layer morphological transformation on GaAs (100) surface.", Appl.Phys.Lett. 67, pp.97-99 (1995).
- Dobbs.⁹⁷ H.T. Dobbs, D.D.Vvedensky and A.Zangwill, "Mean-field theory of quantum dot formation", Phys.Rev.Lett. 79(5), pp.897-900 (1997). H.T.Dobbs et coll., "Theory of quantum dot formation in Stanski-Krastanow systems.", In proceedings of ICFSI 6' (International Conference on the formation of semiconductor interfaces): 1997 June 23-27; Appl.Surf.Sci 1997, inpress.
- Fiedler.⁸² F.Fiedler, A.Schlachetzki and G.Klein, "Material-selective etching of InP and an InGaAsP alloy.", J.Materials Science 17, pp.2911-2918 (1982).
- Folliot.⁹⁸ H.Folliot, S.Loualiche, B.Lambert and V.Drouot, "Effects of interface layers composition and strain distribution on optical transitions of InAs dots on InP", Phys.Rev.B 58(16), pp.10700-10703 (1998).
- Fréchengues.⁹⁷ S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert, D.Lemoine, S.Loualiche, A.Le Corre and H.L'Haridon, "Direct correlation of structural and optical properties of InAs self-assembled dots deposited on InP(100)", Appl.Phys.Lett. 71(19), pp.2818-2820 (1997).
- Gendry.⁹² M.Gendry, V.Drouot, C.Santinelli and G.Hollinger, "Critical thicknesses of highly strained InGaAs layers grown on InP by molecular beam epitaxy", Appl.Phys.Lett. 60 (18), pp.2249-2251 (1992).
- Gendry.⁹⁷ M.Gendry, G.Grenet, Y.Robach, P.Krapf, L.Porte and G.Hollinger, "Role of surface energy and surface reconstructions on the 2D-to-3D growth-mode transition of strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layers on InP(001)", Phys.Rev.B 56(15), pp.9271-9274 (1997).
- Groenen.⁹⁶ J.Groenen, A.Mlayah, R.Carles, A.Ponchet, A.Le Corre and S.Salaün, "Strain in InAs islands grown on InP(001) analyzed by Raman spectroscopy", Appl.Phys.Lett. 69(7), pp.943-945 (1996).
- Groenen.⁹⁷ J.Groenen, thèse (1997).
- Houdré.⁹³ R.Houdré, J.F.Carlin A.Rudra, J.Ling and M.Ilegems, "Formation and optical properties of islands in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy", Superlattice And Microstructures 13(1), pp.67-70(1993).
- Ito.⁹⁵ Hiroshi Ito and Tadao Ishibashi, "Selective and nonselective chemical etching of InGa(As)P/GaAs heterostructures.", J.Electrochem.Soc., 142 (10), pp.3383-3386 (1995).

- Klockenbrink.⁹⁴ R.Klockenbrink, E.Peiner, H.-H.Weihmann and A.Schlachetzki, "Wet chemical etching of alignment V-grooves in (100) InP through titanium or $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ masks.", *J.Electrochem.Soc.*, 141 (6), pp.1594-1599 (1994).
- Krapf.⁹⁷ P.Krapf, Y.Robach, M.Gendry and L.Porte, "Role of step curvature in the stabilization of coherently strained epitaxial structures", *Phys.Rev.B* 55(16), pp.R10229-R10232 (1997).
- Lacombe.⁹⁷ D.Lacombe et A.Ponchet, communications privées (1997-1998).
- Lambert.⁹⁸ B. Lambert, A. Le Corre, V. Drouot, H.L'Haridon, and S. Loualiche, "High photoluminescence efficiency of InAs/InP self-assembled quantum dots emitting at 1.5-1.6 μm ", *Semicon. Sci. Technol.* 13, pp.143-145 (1998).
- Le Corre.⁹⁵ A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün and A.Ponchet, Proceedings of the VIII Euro-MBE Conference, Sierra Nevada – Granada, Spain, March 1995.
- Le Corre.⁹⁷ A.Le Corre, C.De Matos, H.L'Haridon, S.Gosselin and B.Lambert, "Photorefractive multiple quantum well device using quantum dots as trapping zones.", *Appl.Phys.Lett.* 70, pp.1575-1577 (1997).
- Madhukar.⁹⁴ A.Madhukar, Q.Xie, P.Chen and A.Konkar, "Nature of strained InAs three-dimensional island formation and distribution on GaAs(100).", *Appl.Phys.Lett.* 64, pp.2727-2729 (1994).
- Massies.⁹³ J.Massies and N.Grandjean, "Oscillation of the lattice relaxation in layer-by-layer epitaxial growth of highly strained materials", *Phys.Rev.Lett.* 71(9), pp.1411-1414 (1993).
- Neves.⁹³ Silmara das Neves and Marco-A. de Paoli, "A quantitative study of chemical etching of InP." *J.Electrochem.Soc.*, 140 (9), pp.2599-2603 (1993).
- Oshinowo.⁹⁴ J.Oshinowo, M.Nishioka, S.Ishida and Y.Arakawa, "Highly uniform InGaAs/GaAs quantum dots (~15nm) by metalorganic chemical vapor deposition", *Appl.Phys.Lett.* 65, pp.1421-1423 (1994).
- Ponchet.⁹⁵ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert and S.Salaün, " Relationship between self-organization and size of InAs islands on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 67, 1850 (1995).
- Ponchet.⁹⁶ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, J.Groenen and R.Carles, "Structural aspects of the growth of InAs islands on InP substrate", *Solid State Electronics* 40, pp.615-619 (1996).
- Ponchet.⁹⁷ A.Ponchet, communication privée, note n°1, février 1997.
- Ponchet.⁹⁸ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, L.Durand, D.Alquier and D.Lacombe, "The effect of the growth procedure and the InAs amount on the formation of strain-induced islands in the InAs/InP(001) system.", *Appl.Surf.Sc.* 123, 751 (1998).
- Ponchet.⁹⁸⁻² A.Ponchet, D.Lacombe, L.Durand, D.Alquier and J.-M.Cardona, "Elastic energy of strained islands: contribution of the substrate as a function of the island aspect ratio and inter-island distance", *Appl.Phys.Lett.* 72(23), pp.2984-2986 (1998).
- Priester.⁹⁵ C.Priester and M.Lannoo, "Origin of self-assembled quantum dots in highly mismatched heteroepitaxy", *Phys.Rev.Lett.* 75(1), pp.93-96 (1995).

- Rudra.⁹⁴ A.Rudra, R.Houdré, J.F.Carlin and M.Ilegems, "Dynamics of island formation in the growth of InAs/InP quantum wells", *J.Crys.Growth* 136, pp.278-281 (1994).
- Ruvimov.⁹⁵ S.Ruvimov, P.Werner, K.Scheerschmidt, U.Gösele, J.Heydenreich,U.Richter, N.N.Ledentsov, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix.", *Phys.Rev.B* 51(20), pp.14766-14769 (1995).
- Seifert.⁹⁴ W.Seifert, D.Hessman, X.Liu and L.Samuelson, "Formation of interface layers in $GaxIn_{1-x}As/InP$ heterostructures: A re-evaluation using ultrathin quantum wells as a probe.", *J.Appl.Phys.* 75, pp.1501-1510 (1994).
- Seifert.⁹⁶ W.Seifert, N.Carlsson, M.Miller, M.-E.Pistol, L.Samuelson and L.R.Wallenberg, "In situ growth of quantum dot structures by the Stranski-Krastanow growth mode", *Prog.Crystal Growth and Charact.* 33, pp.423-471 (1996).
- Tabata.⁹⁴ A.Tabata, T.Benyattou, G.Guillot, M.Gendry, G.Hollinger and P.Viktorovitch, "Optical properties of InAs/InP surface layers formed during the arsenic stabilization process.", *J.Vac.Sci.Technol.B* 12(4), pp.2299-2304 (1994).
- Taskinen.⁹⁷ M.Taskinen, M.Sopanen, H.Lipsanen, J.Tulkki, T.Tuomi and J.Ahopelto, "Self-organized InAs islands on (100) InP by metalorganic vapor-phase epitaxy.", *Surf.Sci.* 376, pp.60-68 (1997).
- Tersoff.⁹³ J.Tersoff and R.M.Tromp, "Shape transition in growth of strained islands: spontaneous formation of quantum wires", *Phys.Rev.Lett.* 70 (18), pp.2782-2785 (1993).
- Tersoff.⁹⁴ J.Tersoff and F.K.Le Goues, "Competition relaxation mechanisms in trained layers", *Phys.Rev.Lett.* 72 (22), pp. 3570-3573 (1994).

Chapitre V: îlots de (Ga)InAs sur substrat InP orienté (113)B.

L'objectif de ce chapitre est l'étude de la croissance et des propriétés de couches d'InAs et de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ épitaxiées sur substrat InP(113)B. En effet, les investigations menées pour des couches de (Ga)InAs sur substrat GaAs (113)B ont montré que la densité des îlots était plus élevée et l'homogénéité des tailles accrue par rapport à l'orientation (001) ^{Nötzel.94, González.96, Nishi.96, Henini.97}. Ces caractéristiques sont très intéressantes pour la réalisation d'un laser à îlots quantiques, d'autant plus qu'une augmentation de la densité des îlots doit entraîner également une réduction de leurs tailles ce qui pourrait permettre d'atteindre la longueur d'onde de $1.55 \mu\text{m}$.

Nous comparons d'abord des couches d'InAs et de (Ga)InAs déposées sur substrat (001) et (113)B. Nous mettons ainsi en évidence l'effet de la contrainte sur la morphologie des couches pour une orientation (113)B du substrat. La comparaison avec les études faites sur (001) est révélatrice du rôle important joué par les énergies de surface.

La partie suivante est consacrée à l'optimisation des couches d'InAs: les caractéristiques des îlots ont été étudiées en fonction de l'épaisseur nominale déposée et de la durée d'interruption de croissance sous arsenic. Nous avons également utilisé l'exposition des îlots d'InAs à un flux de phosphore et étudié l'influence de la durée de l'exposition et de la température du substrat sur les caractéristiques des îlots. Cette procédure avait pour but de pouvoir contrôler la taille des îlots pour "choisir" leur longueur d'onde d'émission en fonction de l'application visée.

La dernière partie est une discussion des résultats concernant l'étude et le contrôle de la formation des îlots suivant (113)B ainsi que l'effet de l'orientation cristalline sur la transition élastique 2D-3D.

1. L'épitaxie suivant l'orientation cristalline (113)B.

La direction (113)B est, comparativement à (001) une direction d'indices élevés. La surface (113) est composée de marches qui sont des plans successivement d'indices (111) et (001) (figure 0). La désignation (113)B correspond pour les composés semi-conducteurs III-V, à la figure 0c, les éléments III étant représentés par les "petits" atomes, et les éléments V par les "gros". Les plans cristallographiques (113)B ont une densité plus faible que les plans (001). L'épaisseur nominale déposée suivant ces deux orientations n'est donc pas équivalente: pour 1 MC suivant (001), une même quantité de matière, c'est à dire une même épaisseur déposée, correspond à 1.56 MC suivant (113)B. Dit autrement, la distance inter plans suivant la direction [113] est 1.56 fois plus petite que suivant [001].

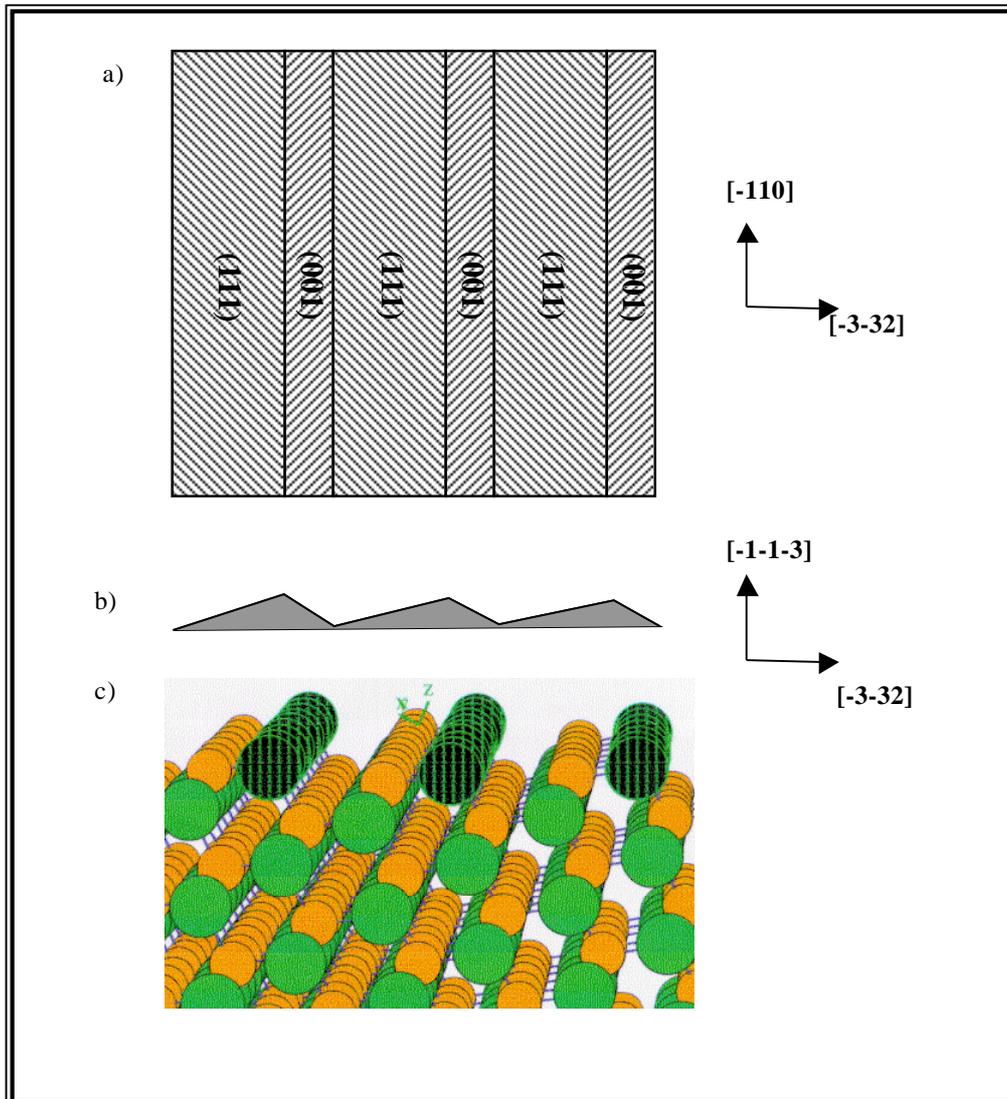


Figure 0: a et b) Vue de dessus et vue suivant la direction [-110] de la surface (113)B.
 c) Vue en perspective de la surface (113)B.

2. Les îlots d'InAs et de (Ga)InAs : comparaison (001)-(113)B.

Dans ce chapitre, les conditions de croissance sont celles décrites dans le chapitre IV, figure 3, sauf précision contraire. Les couches contraintes de (Ga)InAs sont déposées sur une couche tampon de Q1.18. La température de croissance est de 500 °C et l'arrêt de croissance sous arsenic $t_{AC} = 30$ s.

2.1. Îlots d'InAs.

Nous avons observé par microscopie à force atomique des îlots d'InAs non recouverts^{Fréchengues.98-2}. Les images sont présentées figures 1a et 1b pour les orientations (001) et (113)B. Grâce au programme de détection des îlots, nous avons établi une comparaison quantitative. La densité des îlots est 10 fois plus élevée suivant (113)B avec 500 îlots/ μm^2 au lieu de 50 pour (001). Suivant (001) les îlots ont des tailles très variées et une répartition non homogène dans le plan. Après analyse des images de microscopie à force atomique, les tailles des îlots apparaissent beaucoup plus homogènes alors que les dimensions moyennes (diamètre et hauteur) sont réduites d'un facteur 2 suivant (113)B. Sur l'histogramme des hauteurs des îlots figure 1c, on constate de plus que la dispersion des hauteurs est plus étroite sur (113)B (de l'ordre de $\pm 13\%$) que sur (001) (de l'ordre de $\pm 50\%$). La répartition des îlots dans le plan ne présente pas d'ordre particulier pour la direction de croissance [001]. Ceci se traduit par une tâche circulaire (symétrie centrale) sur la transformée de Fourier, ne laissant pas apparaître de fréquences spatiales particulières. Sur l'image (113)B il y a une tendance des îlots à s'aligner ce qui apparaît aussi sur la transformée de Fourier sous la forme de deux lobes distincts. Même si cet arrangement est limité, on constate cependant une différence importante avec (001).

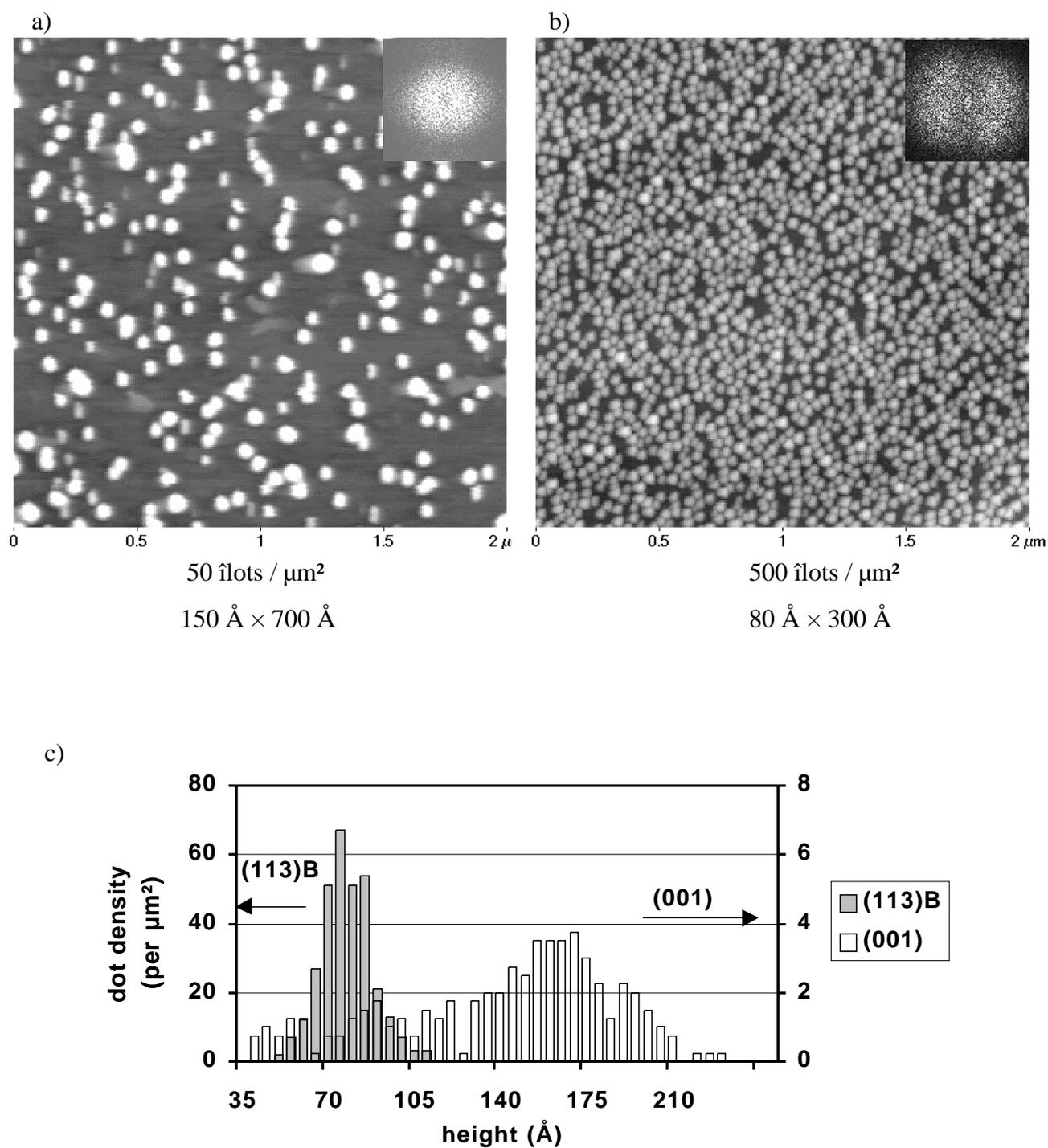
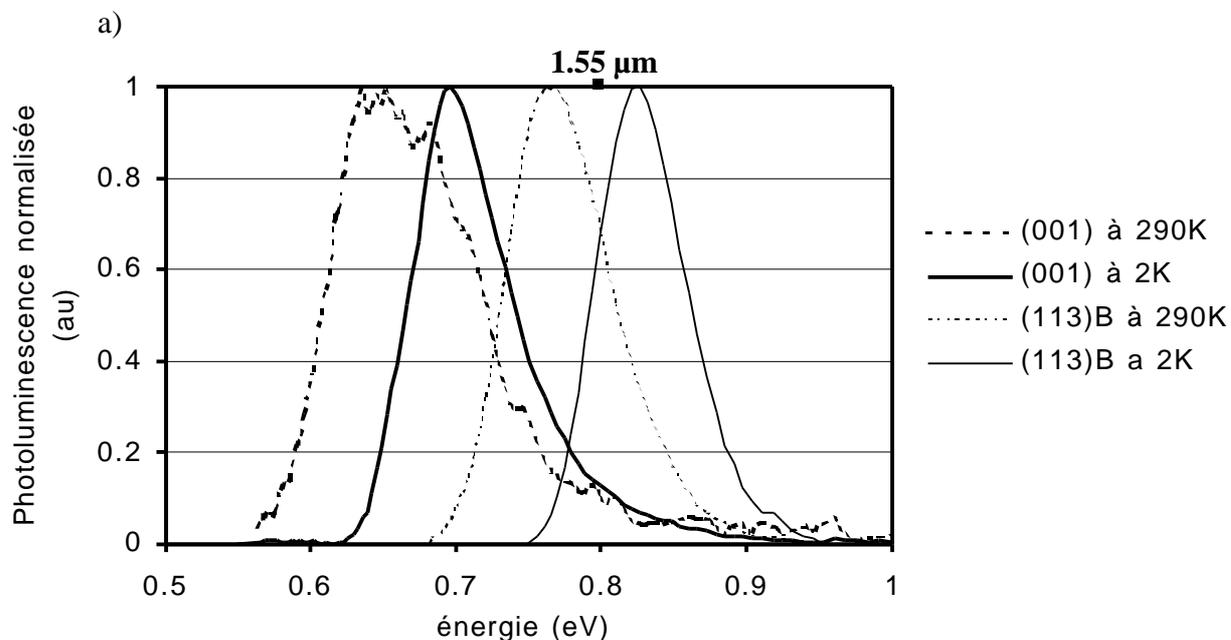


Figure 1: Vues planes de clichés de microscopie à force atomique de $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ de côté des îlots d'InAs obtenus à partir d'une couche de 2.1 MC d'épaisseur nominale sur substrat a) InP(001), b) InP(113)B.
c) histogramme des hauteurs des îlots.



b)

Échantillon	Densité des îlots	hauteur \times diamètre (\AA)	Pic de PL (eV) / largeur (meV)	
			2 K	300 K
(001)	50 / μm^2	150 \times 700	0.69 / 73	0.66 / 111
(113)B	500 / μm^2	80 \times 300	0.82 / 72	0.76 / 83

Figure 2: a) Photoluminescence normalisée à 2 K et 300 K pour des couches d'InAs sur substrats (001) et (113)B. On constate que la "queue thermique" à 300 K est moins importante pour (113)B que pour (001).

b) Résultats de photoluminescence pour des îlots recouverts et de microscopie à force atomique pour des îlots non recouverts.

La photoluminescence sur les îlots recouverts est présentée figure 2. A 2 K la luminescence de l'échantillon (113)B étant à plus haute énergie, le confinement des porteurs dans les îlots est donc plus important que pour l'échantillon (001). Cette observation est en accord avec les résultats de microscopie à force atomique qui montrent que les îlots d'InAs suivant (113)B sont deux fois plus petits en diamètre et hauteur.

Dans le chapitre précédent, nous avons mis en évidence l'influence du recouvrement des îlots sur leur hauteur. Les calculs à partir de l'énergie de luminescence et les observations directes par microscopie à force atomique après attaque chimique ont montré une réduction d'un facteur 3 sur la hauteur, suivant (001). Pour l'orientation (113)B, le calcul (toujours sans prendre en compte le confinement latéral) donne une hauteur des îlots recouverts comprise entre 20 et 40 Å environ. Ceci tendrait à montrer une influence équivalente du recouvrement sur la taille des îlots pour les deux orientations.

Par ailleurs, la largeur à mi-hauteur du pic de luminescence à 2 K est la même pour les deux échantillons. Il a été montré au chapitre IV que la largeur de photoluminescence à 2K est due à la distribution des hauteurs d'îlots. La luminescence est à plus haute énergie pour (113)B et le confinement est donc plus important. Les fluctuations d'épaisseur de ce "puits quantique", c'est à dire de la hauteur des îlots, conduisent alors à des variations plus importantes de l'énergie de confinement. La même largeur à mi-hauteur du pic de photoluminescence à une plus haute énergie correspond donc à une dispersion des tailles plus étroite. Il y a donc accord avec les images de microscopie à force atomique obtenues pour les échantillons non recouverts (figure 1): tailles inférieures et meilleure homogénéité suivant (113)B. L'élargissement de la photoluminescence augmente de 40 meV lorsque la température passe de 2 à 300 K pour l'échantillon (001) (figure 2b). Cette augmentation provient de la luminescence des états excités, la "queue thermique" étant équivalente à celle d'un puits quantique (densité d'états 2D: chapitre I, figure 2). Pour l'échantillon (113)B, l'augmentation n'est que d'une dizaine de meV: on peut attribuer cette différence à une augmentation du confinement dans le plan, la séparation des niveaux d'énergie ayant pour conséquence une diminution de la densité des états excités et donc de la luminescence.

2.2. Couches de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$.

Nous avons aussi étudié la croissance de couches de (Ga)InAs pour comparer l'effet de la contrainte sur la transition élastique 2D-3D suivant les orientations (001) et (113)B. Ces concentrations en Ga, de 7, 14 et 20 %, correspondent à un désaccord paramétrique compris entre 1.85 et 2.75 %, alors que pour InAs il est maximal à 3.23 %. Les couches sont déposées à 500 °C sur une couche tampon de Q1.18 accordée à InP (voir chapitre 4, figure 2). Le dépôt est suivi d'un recuit de 30 s sous As avant l'encapsulation par InP. L'épaisseur de la couche de GaInAs est choisie de façon à être juste au-dessus de l'épaisseur critique pour la transition 2D-3D^{Gendry.92}. Deux autres échantillons de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$, recouvert et non recouvert, ont été élaborés à 540 °C.

Couches $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$	Désaccord paramétrique (%)	Epaisseur nominale (MC)	Echantillons sur substrats orientés (001) et (113)B.
x = 0.07	2.75	6.4	recouvert, T = 500 °C
x = 0.14	2.26	11.9	recouvert, T = 500 °C
x = 0.20	1.85	17.1	recouvert, T = 500 °C non recouvert / recouvert, T = 540 °C

Je présente dans un premier paragraphe les résultats de caractérisations structurales. L'attaque chimique étant moins sélective suivant la direction [113] que suivant la direction [001], l'essentiel des résultats a été obtenu par microscopie électronique en transmission. Les clichés de microscopie électronique en transmission ont été réalisés au CEMES par Denis Lacombe et Anne Ponchet. Ces résultats font l'objet d'un chapitre de la thèse de Denis Lacombe. Sont ensuite décrits les spectres de photoluminescence des échantillons recouverts.

Je présente tout d'abord les résultats de microscopie électronique en transmission en vue plane des couches recouvertes de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ pour les compositions $x=0.07$, 0.14 et 0.2. (figure 3). Les trois images sont à la même échelle. On observe des îlots pour les trois concentrations en Ga. Alors que suivant (001), nous n'avons pas observé de relaxation élastique en îlots pour une concentration en Ga de 20 %, sur (113)B et pour une même épaisseur nominale la couche a formé des îlots. Ce résultat montre que la formation des îlots est favorisée suivant (113)B.

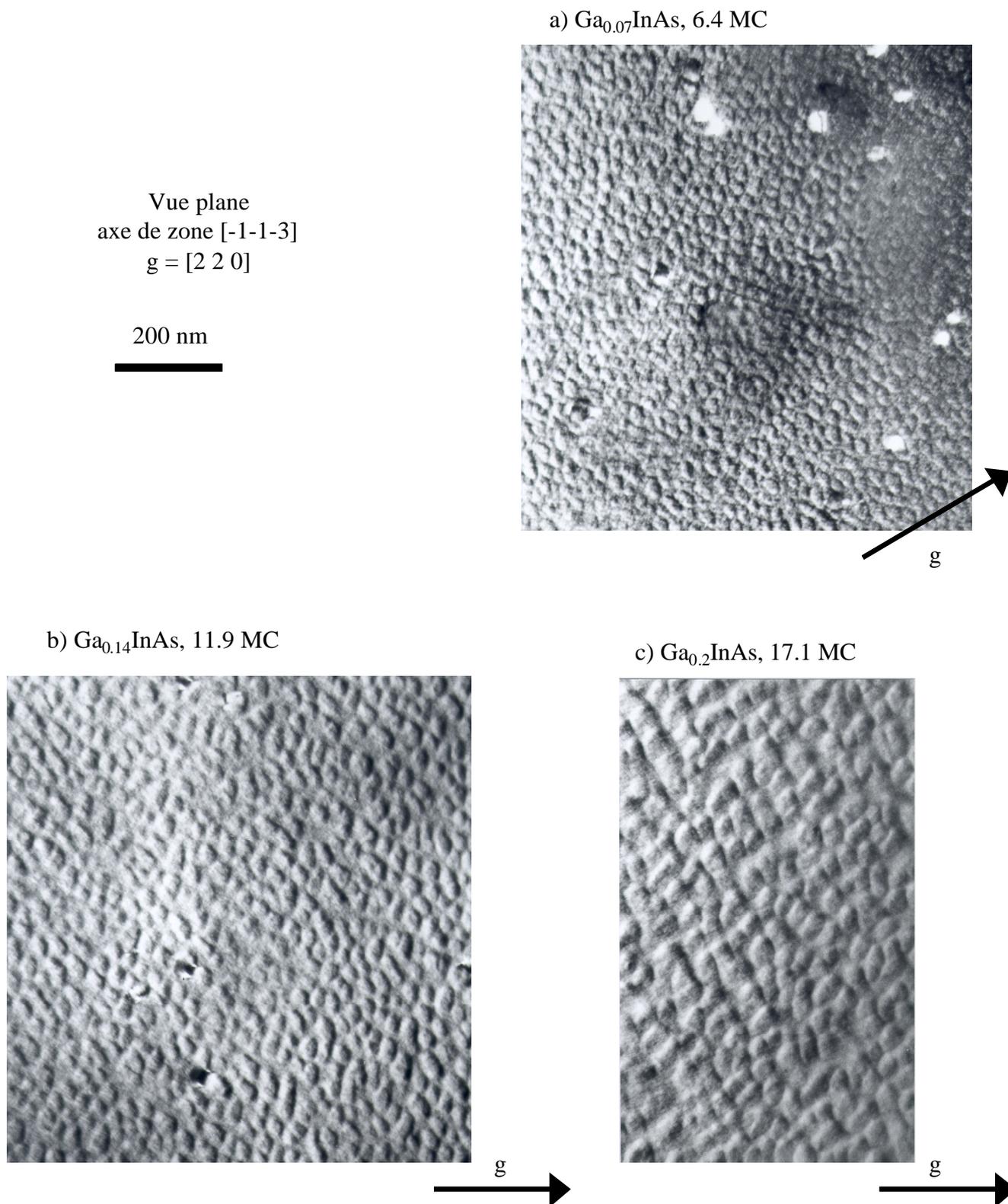


Figure 3: Clichés de TEM en vue plane sur des échantillons de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ recouverts, sur substrat orienté $(113)\text{B}$. Les trois images présentées correspondent à des couches de a) 7, b) 14 et c) 20% de Ga.

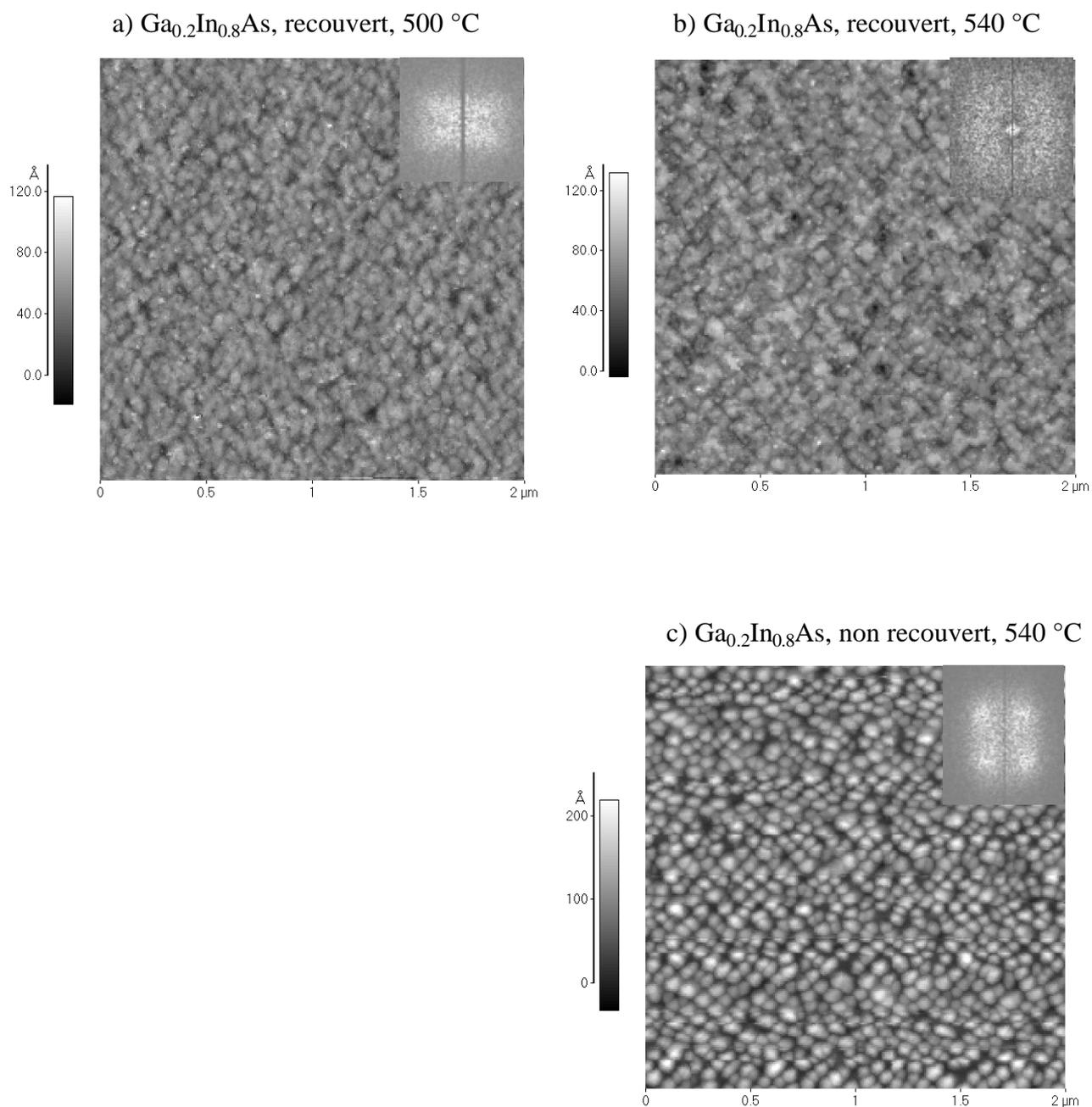


Figure 4: Images de microscopie à force atomique et en encart les transformées de Fourier correspondantes pour des couche de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ déposée sur substrat $\text{InP}(113)\text{B}$ à 500 et 540 °C.

a) et b) Images obtenues après attaque chimique d'échantillons recouverts élaborés respectivement à 500 °C et 540 °C.

c) Îlots non recouverts élaborés à 540 °C.

Les dimensions des îlots augmentent avec la concentration en Ga: le volume des îlots varie en sens inverse du désaccord paramétrique. Une proportion importante de la surface est occupée par les îlots. La densité est donc proche de la densité maximale et diminue lorsque les dimensions des îlots augmentent. Comme dans le cas d'InAs l'alignement des îlots se fait suivant des directions proche de 45° de $[1\bar{1}0]$.

Sur les figures 4a et 4b sont présentées deux images de microscopie à force atomique d'îlots de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ recouverts élaborés à deux températures différentes de 500 et 540 °C, après attaque chimique sélective de l'InP qui recouvre les couches. Sur ces deux échantillons une rugosité due à l'attaque chimique se superpose aux îlots et altère la netteté des images. En effet la sélectivité de l'attaque est plus faible pour la direction (113)B que pour (001), comme indiqué au début du chapitre IV. Les figures 3c et 4a proviennent du même échantillon. On observe une couverture similaire de la surface ainsi qu'une organisation des îlots dans le plan. Celle-ci est mise en évidence sur la transformée de Fourier présentée en encart de la figure 4a: on distingue quatre tâches significatives d'un alignement des îlots suivant des directions préférentielles. L'image de la couche épitaxiée à 540 °C présente une plus forte rugosité. L'arrangement apparaît moins clairement mais cela peut être imputé à l'attaque chimique.

Des îlots non recouverts de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ élaborés à 540 °C et observés par microscopie à force atomique sont présentés figure 4c. Ils ont une densité d'environ $200 / \mu\text{m}^2$ avec un diamètre inférieur à 1000 \AA . L'organisation dans le plan est visible tant sur l'image que sur la transformée de Fourier où quatre taches bien distinctes révèlent les fréquences spatiales et l'arrangement carré. La densité mesurée correspond à une distance centre à centre de 1000 \AA pour un arrangement carré parfait.

Les observations structurales ont mis en évidence une relaxation des couches de GaInAs en îlots sur substrat (113)B alors que suivant (001) des fils ont été observés. La meilleure organisation dans le plan est observée pour la couche de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$, ce qui est confirmé par l'observation de l'échantillon non recouvert. Ceci correspond aux observations faites pour GaInAs/GaAs(113)B pour une contrainte équivalente^{Nishi.97}. La corrélation entre le rapport distance entre îlots / diamètre moyen des îlots et l'arrangement dans le plan prouve l'importance des interactions via le substrat à faible distance^{Ponchet.98}.

La luminescence à 300 K est présentée figure 5. Sur le tableau ci-dessous sont indiquées les valeurs de la position en énergie du pic de luminescence et sa largeur à mi-hauteur à température ambiante.

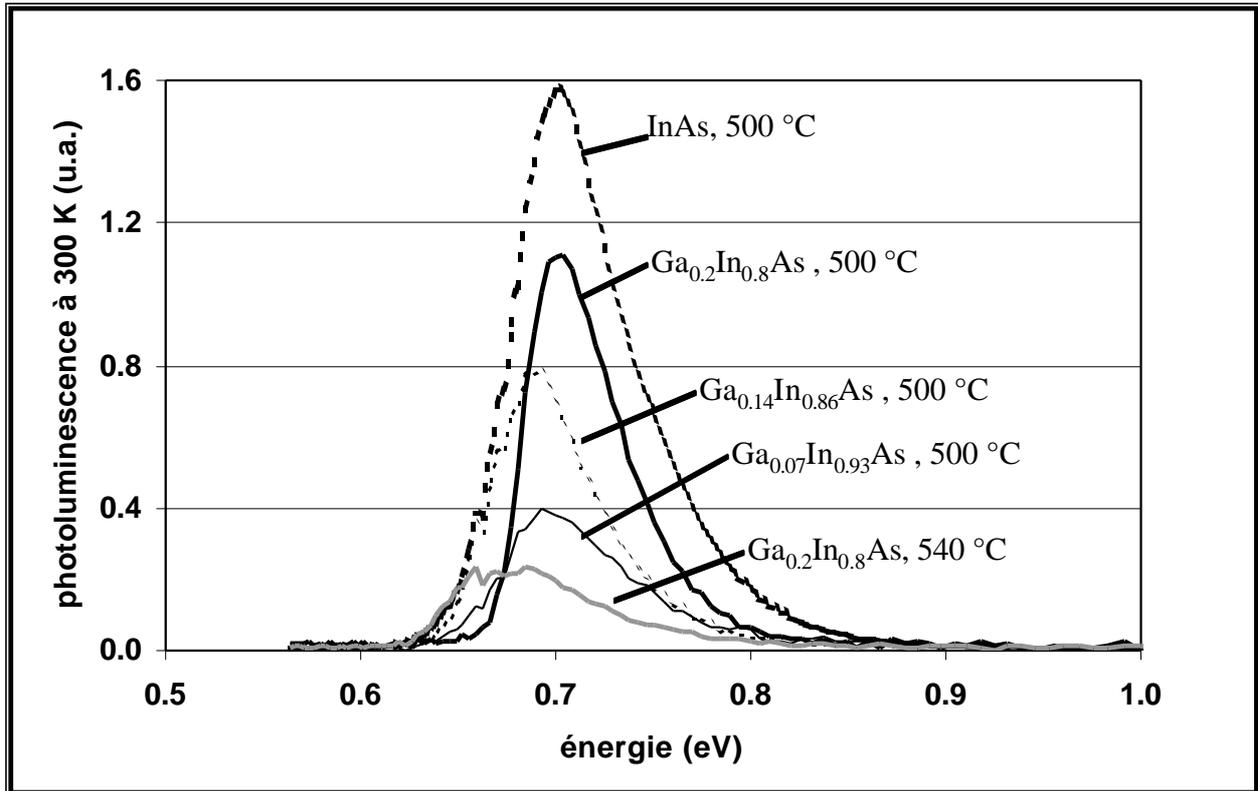


Figure 5: Photoluminescence à 300 K pour les échantillons ayant des concentrations en Ga de 0, 7, 14 et 20 %. Les quatre courbes en noir proviennent d'échantillons élaborés à 500 °C et celle en gris d'un échantillon à 20 % de Ga élaboré à une température de 540 °C.

La luminescence à 300 K se situe autour de 0.7 eV pour les différents échantillons. La diminution du confinement avec l'augmentation de la taille des îlots compense l'augmentation de l'énergie de bande interdite avec la concentration de Ga. De plus on constate une diminution de la largeur à mi-hauteur du pic de luminescence avec l'augmentation de l'épaisseur des couches, qui est due à la réduction du confinement. En effet l'épaisseur nominale des couches varie dans le même sens que la concentration en Ga pour être au-dessus de l'épaisseur critique^{Gendry.92}.

Température de croissance	Pic de photoluminescence à 300 K: énergie (eV) / largeur (meV)

x = 0.0	500 °C	0.70 / 65
x = 0.07	500 °C	0.695 / 63
x = 0.14	500 °C	0.69 / 59
x = 0.20	500 °C	0.70 / 55
x = 0.20	540 °C	0.67 / 86

Nous pouvons aussi comparer, sur la figure 5, les graphes de photoluminescence pour les deux échantillons de Ga_{0,2}In_{0,8}As élaborés à 500 et 540 °C (courbes en trait épais respectivement noir et gris). Pour la plus haute température, l'énergie se décale de 50 meV vers les basses énergies et le pic de luminescence s'élargit de 30 meV, avec une chute d'intensité d'un facteur 4 à 5. La relaxation de ce deuxième échantillon est donc plus avancée avec la présence éventuelle de dislocations.

2.3. Conclusion.

Nous venons de comparer la transition élastique 2D-3D de couches contraintes de (Ga)InAs sur des substrats InP orientés (001) et (113)B. On constate que la nucléation des îlots est favorisée suivant (113)B, ce qui explique les différences importantes de morphologie des couches suivant les deux orientations. En effet, pour les couches faiblement contraintes de Ga_{0,2}In_{0,8}As, seulement un début de relaxation est observé suivant (001), alors que suivant (113)B des îlots en grande densité se sont formés. De plus, à désaccord paramétrique équivalent, la densité des îlots d'InAs est beaucoup plus importante sur (113)B et les tailles des îlots sont plus petites et plus uniformes. Ces différences se traduisent par une luminescence à plus haute énergie suivant (113)B, proche de 1.55 μm , et un pic de luminescence plus étroit à température ambiante.

Le pic de luminescence des îlots d'InAs à température ambiante est proche de 1.55 μm . Ces premiers îlots sur un substrat InP (113)B montrent ainsi un grand intérêt pour la réalisation de dispositifs pour les télécommunications par fibre optique. Pour atteindre cette longueur d'onde, nous allons étudier les propriétés des îlots en fonction de l'épaisseur nominale déposée. En effet, nous avons constaté, suivant (001), une relation entre la quantité nominale d'InAs et la densité, la taille et l'énergie de luminescence des îlots.

3. Etude des îlots d'InAs.

Nous avons étudié la géométrie et les propriétés optiques d'îlots d'InAs en fonction de l'épaisseur nominale et des conditions de croissance. Notre objectif est ici de satisfaire au cahier des charges pour la réalisation d'un laser à îlots quantiques émettant à 1.55 μm .

3.1. Etude en fonction de l'épaisseur nominale déposée.

Pour un dépôt nominal de 2.1 MC, la densité d'îlots suivant (113)B est 10 fois supérieure à celle mesurée suivant (001), et un début d'organisation dans le plan est observable. Nous étudions maintenant des couches d'InAs pour des épaisseurs nominales comprises entre 0.3 et 5 MC.

3.1.1 Observations par microscopie à force atomique d'îlots non recouverts.

Les images de microscopie à force atomique (en vue plane) sont présentées figure 6. On constate qu'il existe déjà des îlots pour un dépôt de 0.3 MC d'InAs, avec une densité de 130 / μm^2 . Deux interprétations possibles peuvent être avancées. La première est qu'il n'y a pas d'épaisseur critique. La croissance est alors du type Volmer-Weber. La deuxième possibilité est qu'il peut alors se former une couche de GaInAsP contrainte en compression, qui joue le rôle de couche de mouillage ou participe à la formation des îlots. Celle-ci peut avoir pour origine la ségrégation de l'indium lors de la croissance du Q1.18, ou la désorption du phosphore provenant du Q1.18 pendant l'interruption de croissance sous pression d'arsenic.

La densité des îlots augmente continûment avec l'épaisseur nominale d'InAs (figure 7a). L'évolution de la densité en fonction du dépôt nominal suit une droite passant par l'origine jusqu'à 3 MC de dépôt, très différente de la courbe observée pour l'orientation (001) (chapitre IV, figure 12e). Pour 3 et 4 MC la densité des îlots se stabilise à une valeur de 900/ μm^2 , et diminue légèrement pour 5 MC déposées. Pour 4 et 5 MC, apparaissent sur la vue plane (figure 6) les premiers gros îlots (en blanc), probablement relaxés plastiquement par création de dislocations. Sur la figure 7a, est aussi tracée en trait épais la densité des îlots pour un arrangement carré et compact dans le plan, calculée en fonction de distance entre îlots. On constate que pour un diamètre de l'ordre de 300 Å, la densité atteint 1000 îlots / μm^2 . Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles mesurées pour les échantillons de 3 et 4 MC, et correspondent donc à la limite physique du nombre d'îlots par μm^2 (densité maximale) pour ce diamètre.

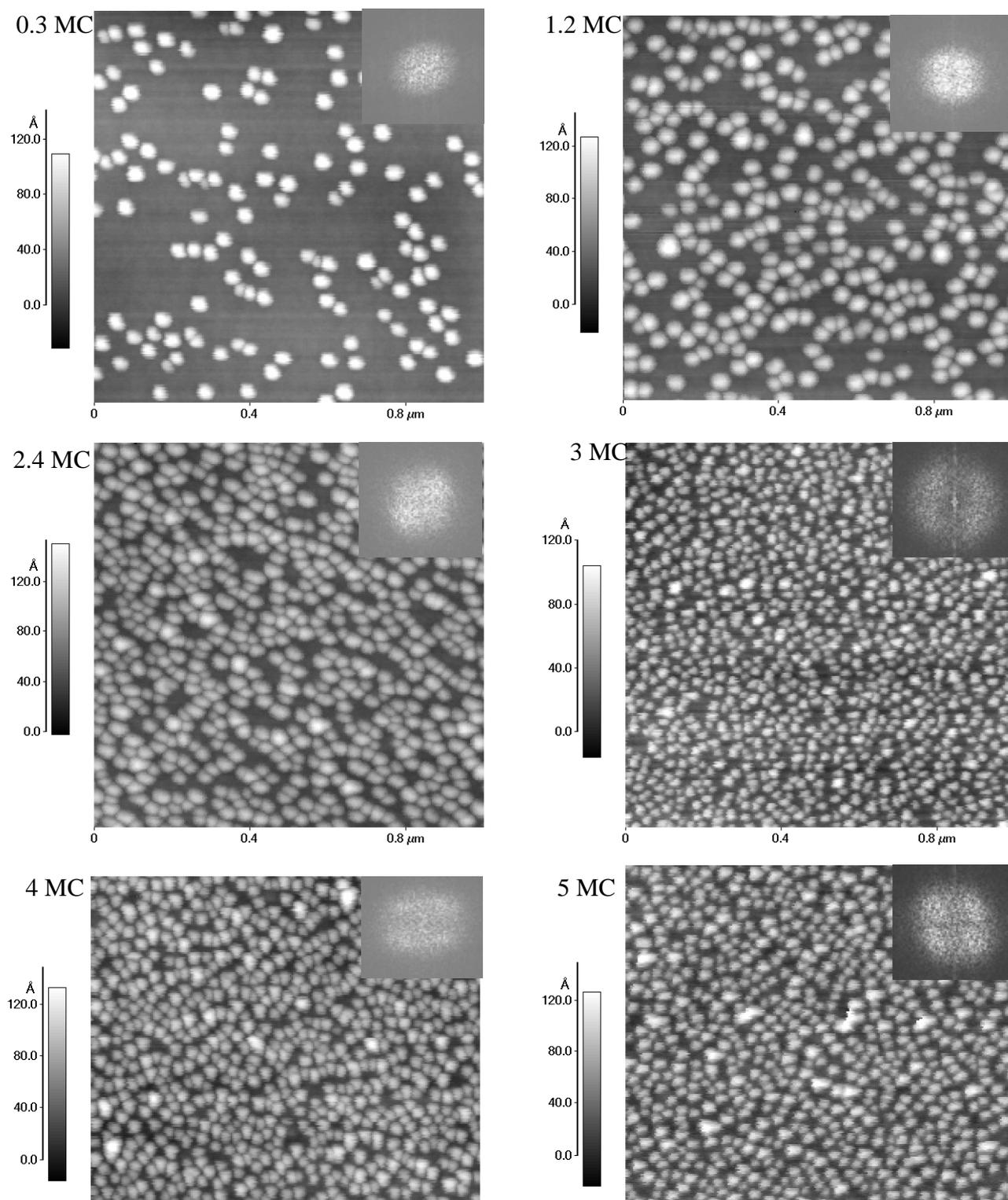


Figure 6: Images de microscopie à force atomique d'îlots d'InAs déposés sur une surface (113)B pour des épaisseurs nominales de 0.3, 1.2, 2.4, 3, 4 et 5 MC. En encart se trouve la transformée de Fourier de l'image correspondante.

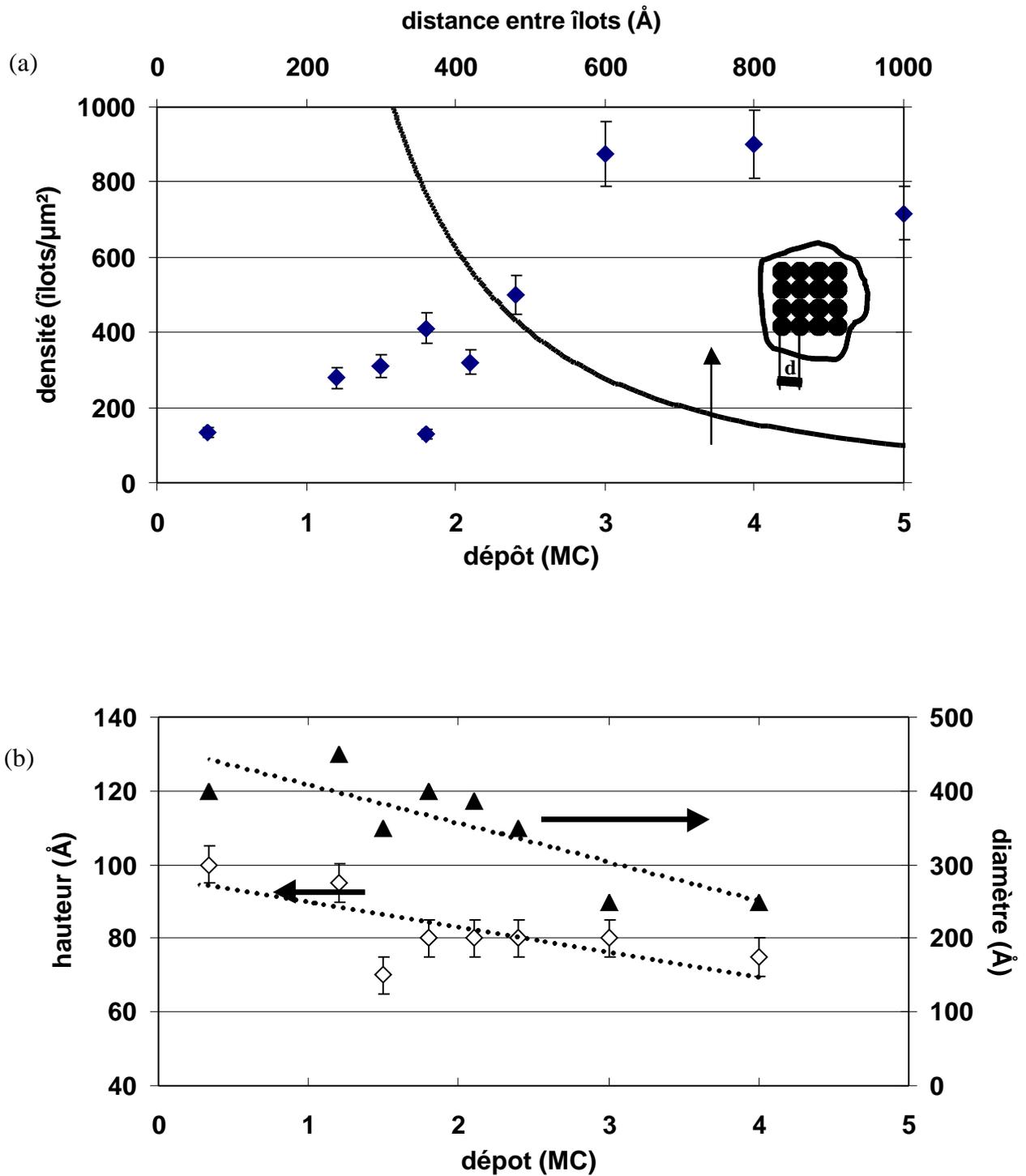


Figure 7: (a) Densité des îlots en fonction de l'épaisseur nominale déposée (abscisse du bas) et de la distance entre îlots calculée pour un réseau carré parfait et compact (abscisse du haut). A une densité de $1000 / \mu\text{m}^2$ correspond une distance entre îlots proche de 300\AA .

(b) Hauteur et diamètre des îlots en fonction de l'épaisseur nominale d'InAs déposée.

La figure 7b présente la hauteur et le diamètre des îlots pour les différents dépôts compris entre 0.3 et 4 MC. On constate pour les deux dimensions une tendance à la réduction des tailles lorsque l'épaisseur nominale, et donc la densité des îlots, augmente. Ce phénomène pourrait être attribué à une interaction entre îlots via le substrat (chapitre III, figure 10a) pour les fortes densités (figure 8c).

Sur la figure 8 sont présentées des vues 3D de clichés de $0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$ pour 0.3 et 4 MC d'épaisseur nominale. On constate sur la figure 8b un alignement des îlots suivant des directions particulières, à 45° des directions $[1\bar{1}0]$ et $[33\bar{2}]$. Cet alignement apparaît aussi sur les transformées de Fourier des vues 2D présentées en encart figure 6. Pour 5 MC, les quatre lobes sont caractéristiques d'un arrangement carré des îlots dans le plan. D'après A.Ponchet et coll.^{Ponchet.98-2}, lorsque la distance entre îlots tend vers une valeur proche de leur diamètre moyen, l'interaction entre îlots voisins est importante (figure 8c) et peut expliquer leur organisation. Shchukin et al.^{Shchukin.95} ont montré, dans le cas d'une croissance sur un substrat orienté suivant $[001]$, que l'énergie d'une collection d'îlots est minimale pour un réseau carré, orienté suivant $[100]$ et $[010]$ qui sont les directions de déformation facile. Nos observations peuvent s'expliquer avec ces prédictions. Il faut de plus noter que les directions dans le plan $(113)B$ qui sont à 45° de $[1\bar{1}0]$ et $[33\bar{2}]$ sont les projections de directions du type $[100]$.

A partir des clichés de microscopie à force atomique (figures 6 et 8) nous avons mesuré un diamètre moyen des îlots de 300 \AA malgré les réserves concernant l'effet de la pointe de mesure. Cette valeur a été confirmée grâce à des observations par microscopie électronique en transmission pour le dépôt de 1.8 MC. D'après l'analyse des images de microscopie à force atomique le diamètre diminue lorsque la densité des îlots augmente. La hauteur diminue de 100 à 75 \AA entre un dépôt de 0.3 et 4 MC. La mesure des hauteurs (figure 7) montre aussi une diminution lorsque la densité augmente. Une réduction des dimensions des îlots a été mise en évidence suivant (001) , avec l'existence de deux régimes d'îlots^{Ponchet.95} (chapitre IV, paragraphe 3.2), à la différence notable que dans le cas $(113)B$ l'évolution des dimensions est ici continue.

3.1.2 Photoluminescence.

Sur la figure 9, nous comparons l'énergie de photoluminescence à température ambiante pour les deux orientations cristallines du substrat (001) et $(113)B$. Pour la première, la transition 2D-3D a lieu autour de 1.5-1.8 MC. Pour les épaisseurs inférieures la luminescence

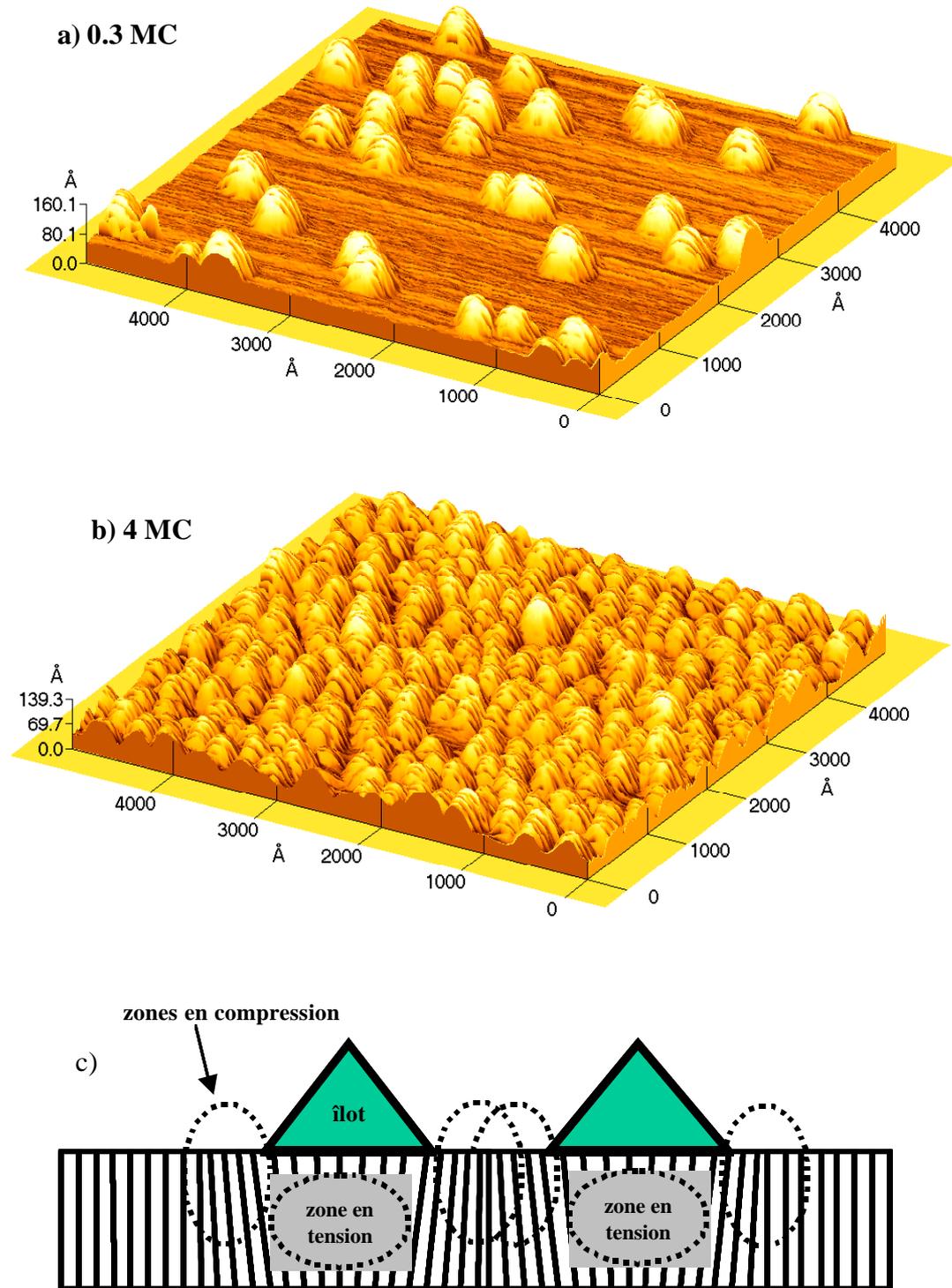


Figure 8: Vues 3D de clichés de microscopie à force atomique d'îlots observés pour un dépôt de (a) 0.3 et (b) 4 MC d'InAs. Sur l'image (b) on visualise une tendance à l'alignement des îlots suivant une direction à environ 45° de $[1-10]$ et $[33-2]$ correspondant aux bords des images (directions de clivage). c) Schéma de l'interaction entre deux îlots via la contrainte qui induite dans le substrat.

à haute énergie correspond à un puits quantique (couche 2D) et au delà elle provient des îlots quantiques qui luminescent à 0.65 eV en moyenne. Dans le cas du (113)B, le comportement est très différent. La fourchette des valeurs est comprise entre 0.69 et 0.74 eV jusqu'à 3 MC et 0.64 eV pour 4 MC; la moyenne se situant autour de 0.7 eV. On constate donc que la luminescence dans les îlots, en accord avec les mesures de microscopie à force atomique, change peu en fonction de l'épaisseur nominale. Cependant, alors que la hauteur des îlots se réduit lorsque le dépôt nominal augmente, l'énergie de photoluminescence augmente de 0.3 à 2.4 MC, puis diminue au delà. Ceci peut s'expliquer par l'augmentation de la densité des îlots qui, d'après la figure 7b, ont une distance moyenne de l'ordre de 450 Å pour 500 îlots/ μm^2 (2.4 MC) et 300 Å pour 900 îlots/ μm^2 (4 MC). Dans ce cas il peut y avoir couplage dans le plan entre îlots et création d'une mini-bande avec un abaissement de l'énergie.

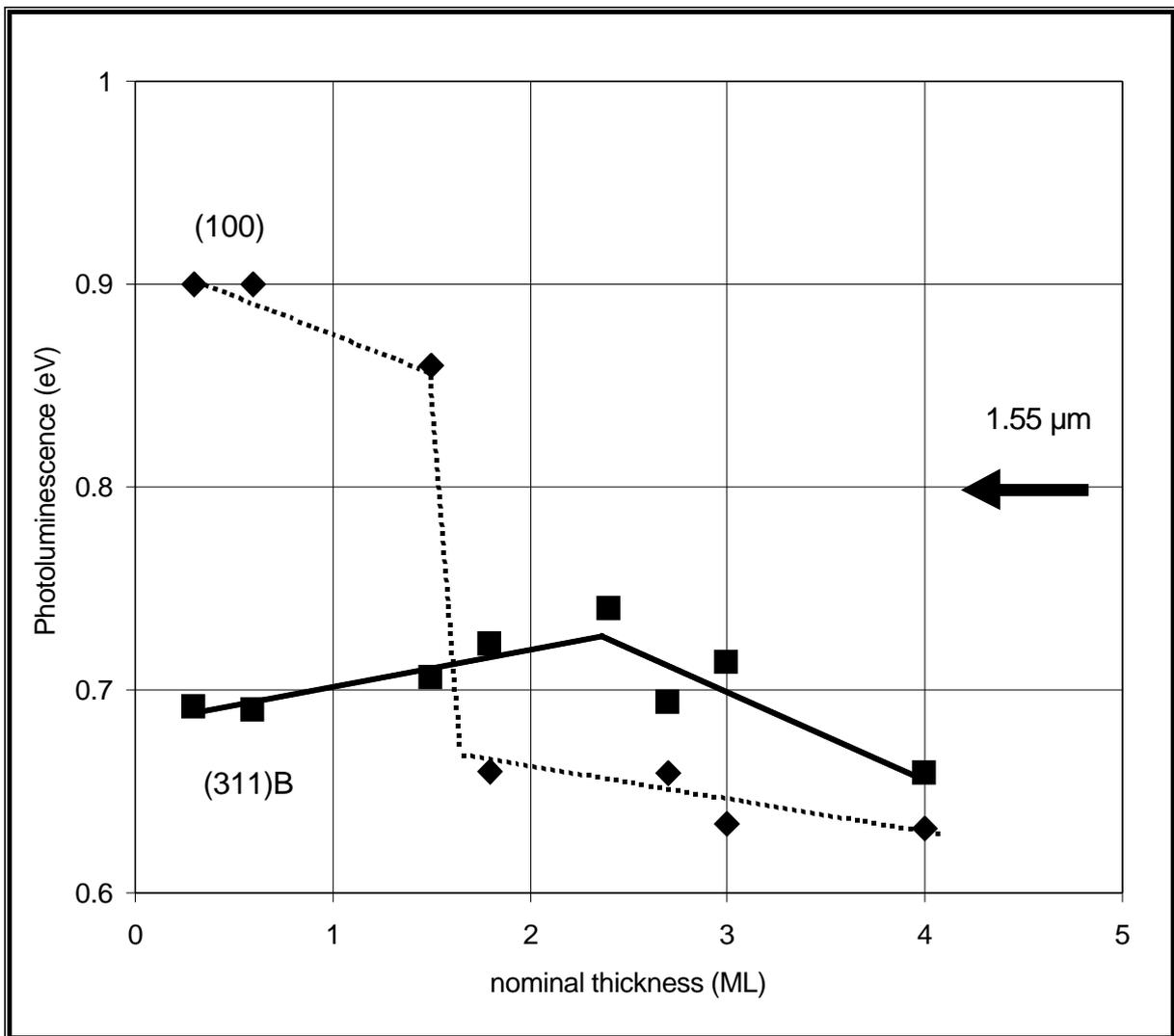


Figure 9: Energie de la photoluminescence à 300 K pour différents échantillons en fonction de l'épaisseur nominale déposée pour les deux orientations (001) et (113)B.

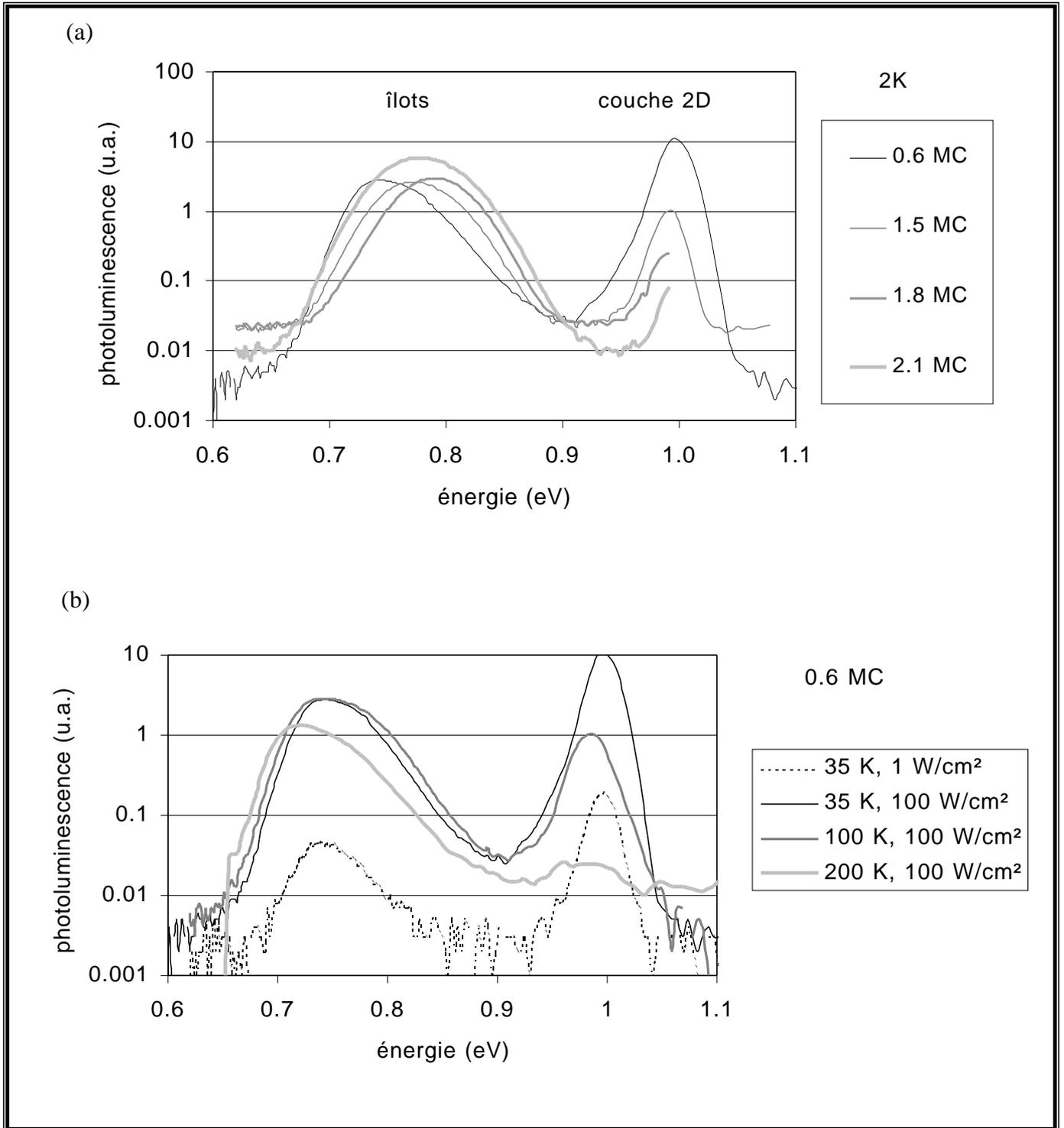


Figure 10: (a) Photoluminescence à 2 K pour des échantillons avec différentes épaisseurs nominales d'InAs.

(b) Photoluminescence à 35, 100 et 200 K pour 0.6 MC de dépôt nominal d'InAs.

La photoluminescence à basse température (figure 10a) montre l'existence d'un pic à haute énergie (1.0 eV), de 15 meV de large qui est donc probablement dû à une couche 2D. Ce pic est à la même énergie quelle que soit l'épaisseur nominale d'InAs et donc la densité des îlots. On constate cependant que lorsque la couverture des îlots croît, le rapport des intensités des pics dus à la couche 2D et aux îlots change en faveur des îlots.

La figure 10b présente la photoluminescence de l'échantillon de 0.6 MC pour des températures de 35, 100 et 200 K. A 35 K, on constate que en fonction de la puissance d'excitation, les intensités intégrées respectives des îlots et de la couche 2D restent dans le même rapport. A basse température, il n'y a donc pas transfert des porteurs de la couche 2D vers les îlots. Le pic de luminescence des îlots est situé autour de 0.7 eV et varie peu en intensité en fonction de la température alors que le pic à haute énergie (1 eV) chute notablement. On remarque de plus une très légère remonté du pic de luminescence des îlots entre 35 et 100 K, qui pourrait être due au transfert des porteurs de la couche 2D vers les îlots. Ces résultats laissent penser qu'il peut exister une faible barrière d'énergie entre les îlots et la couche 2D.

Quelle est la nature de cette couche 2D? Pour répondre à cette question, nous avons élaboré un échantillon dans les mêmes conditions de croissance mais sans dépôt d'InAs. Dans ces conditions apparaît un pic de photoluminescence à température ambiante à une énergie de 0.96 eV, correspondant à la couche 2D en l'absence d'îlots. La ségrégation de l'indium durant la croissance du Q1.18 ou les échanges As/P lors de l'arrêt de croissance sous arsenic peuvent être à l'origine de cette couche 2D. Il s'agit plus probablement d'une combinaison de ces deux phénomènes. Pour déterminer sa composition et son épaisseur nous ne connaissons que l'énergie de photoluminescence: la figure 11a présente le résultat du calcul de l'énergie de transition e_1-hh_1 dans un puits quantique de $Ga_xIn_{1-x}As_yP_{1-y}$, élaboré sur une couche de Q1.18 et recouvert d'InP. L'énergie de la couche 2D est égale à celle d'un puits d'InAs de 3 MC, d'un puits de $Ga_{0.2}In_{0.8}As$ de 4 MC ou d'un puits de $Ga_{0.2}In_{0.8}As_{0.9}P_{0.1}$ de 5 MC. Le profil de potentiel de la couche 2D, résultant des deux phénomènes que nous venons de citer, est certainement différent d'un puit carré. Il est cependant difficile à déterminer.

Comment expliquer l'évolution de la luminescence de la couche 2D lorsque la température augmente? A basse température, les porteurs peuvent être localisés par une rugosité possible de cette couche 2D, expliquant la forte intensité de luminescence. A partir des remarques précédentes, on peut toutefois avancer une autre explication: la figure 11b propose une configuration du plan des îlots, dans laquelle il existerait une barrière d'énergie entre les îlots et la couche 2D. En effet, alors que la ségrégation de l'indium peut former une couche riche en indium homogène sur toute la surface avant la formation des îlots, ce n'est pas le cas pour les échanges As/P. Ces derniers se produisent après la formation des îlots, et donc sur la surface exposée du Q1.18, entre les îlots. De plus, l'accumulation de la contrainte en compression dans le substrat, dans la zone située en bord d'îlot (chapitre III, figure 10), ne favorise pas les échanges des atomes de phosphore par des atomes d'arsenic. Il peut dans ces

conditions se créer une barrière d'énergie qui limite la diffusion des porteurs vers les îlots à basse température. La faible localisation des porteurs disparaît à température ambiante, et ces derniers diffusent alors vers les îlots qui sont des pièges très efficaces.

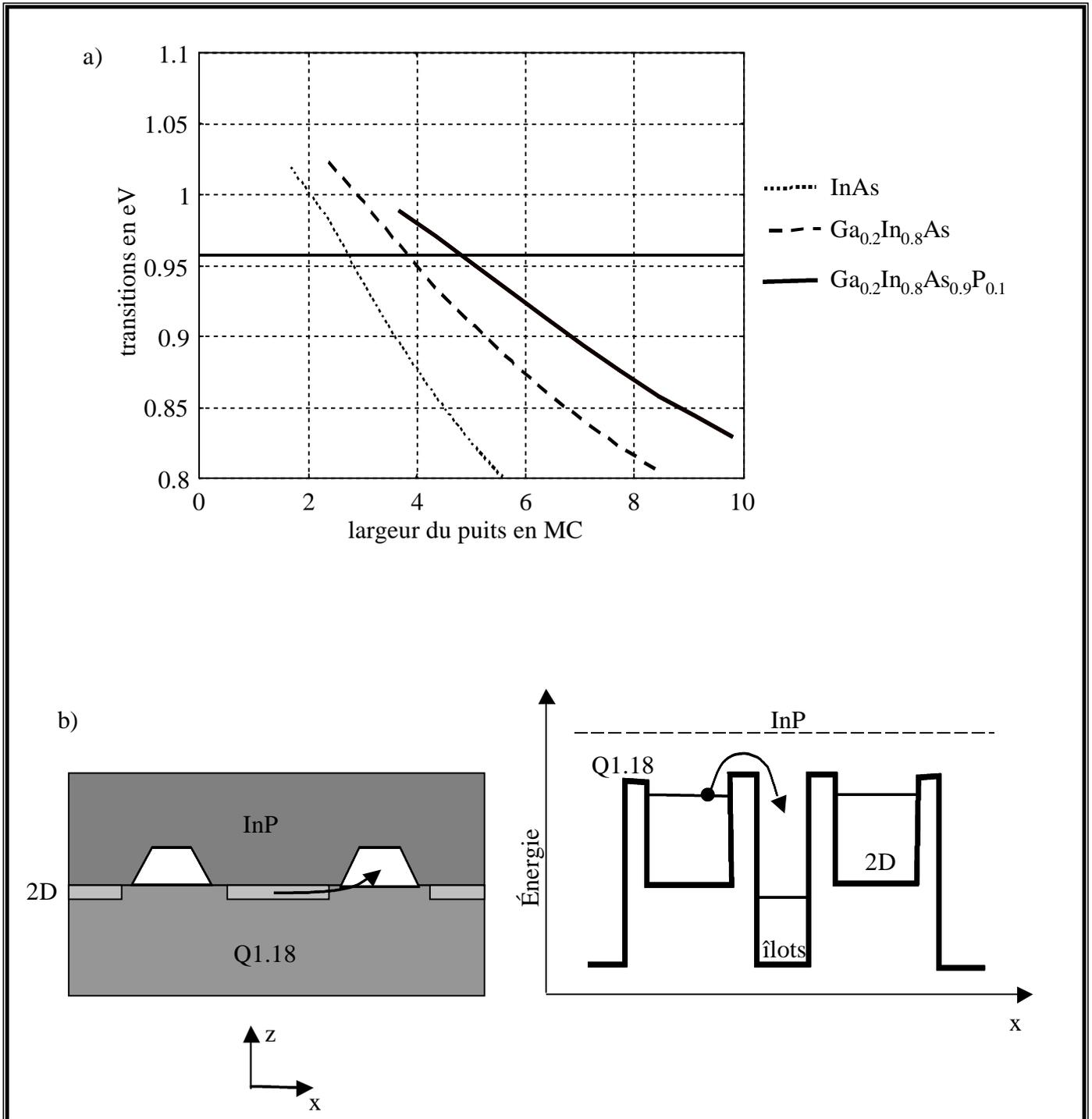


Figure 11: a) Calcul de la transition e_1-hh_1 à 300 K dans un puits quantique contraint $Ga_xIn_{1-x}As_yP_{1-y}$ pour différentes compositions x et y , dans des barrières de Q1.18 et d'InP.

b) Structure envisagée pour expliquer ces différentes observations. Il existe une faible barrière d'énergie entre la couche 2D et les îlots. L'échelle de niveaux de gris symbolise les différences d'énergie de bande interdite des composés en présence.

3.2. Influence des paramètres de croissance.

Quelle que soit l'épaisseur d'InAs initialement déposée, les îlots émettent autour de 0.7 eV à température ambiante, c'est à dire autour de la longueur d'onde 1.75 μm . Pour les télécommunications par fibre optique, la longueur d'onde intéressante est 1.55 μm , équivalente à une énergie de 0.8 eV.

Nous avons étudié l'effet sur l'évolution des îlots d'un arrêt de croissance prolongé sous atmosphère d'arsenic ou de phosphore. Avec un arrêt de croissance sous phosphore, nous espérons que les échanges As/P permettrons de modifier la taille des îlots et ajuster ainsi l'énergie de luminescence. Pour ce faire, nous avons étudié des échantillons élaborés à différentes températures.

3.2.1 Interruption de croissance sous As_2 .

Nous avons étudié différents échantillons avec un dépôt nominal de 2.1 MC d'InAs suivi d'un arrêt de croissance sous arsenic de 30 et 300 s avant l'encapsulation par une couche d'InP. Nous avons aussi observé par microscopie à force atomique et microscopie électronique en transmission des échantillons non recouverts avec un dépôt nominal de 1.8 MC suivi d'une interruption de croissance de 30 et 300 s sous flux d'arsenic avant la descente en température du porte-échantillon toujours sous flux d'arsenic.

La luminescence (figure 12) à température ambiante montre une évolution des couches. Entre 30 et 300 s, le pic se décale de 50 meV vers les basses énergies et s'élargit pour atteindre une centaine de meV de largeur à mi-hauteur. Un recuit prolongé sous arsenic ne permet donc pas de décaler l'énergie de luminescence vers 0.8 eV. On constate au contraire un décalage vers les basses énergies, indiquant une diminution du confinement et donc une augmentation des tailles des îlots. De plus, celle-ci s'accompagne d'un élargissement du pic de photoluminescence alors que le confinement diminue. La luminescence à basse température montre l'existence du pic de la couche 2D dont l'énergie est de 1.0 eV pour 30 s et 0.92 eV pour 300 s (figure 11b). Ce décalage de quelques dizaines de meV prouve que les échanges se poursuivent durant l'arrêt de croissance, provoquant une augmentation de l'épaisseur de la couche 2D ou/et de la concentration en arsenic (figure 11a).

Pour confirmer l'évolution des îlots, nous avons observé par microscopie à force atomique des échantillons non recouverts de 1.8 MC d'InAs, et des interruptions de croissance sous arsenic de 30 s (figure 13a) et 300 s (figure 13b). Pour le premier la densité des îlots est de 400/ μm^2 et la distribution des hauteurs d'îlots est centrée autour de 80 Å. Pour le second, la

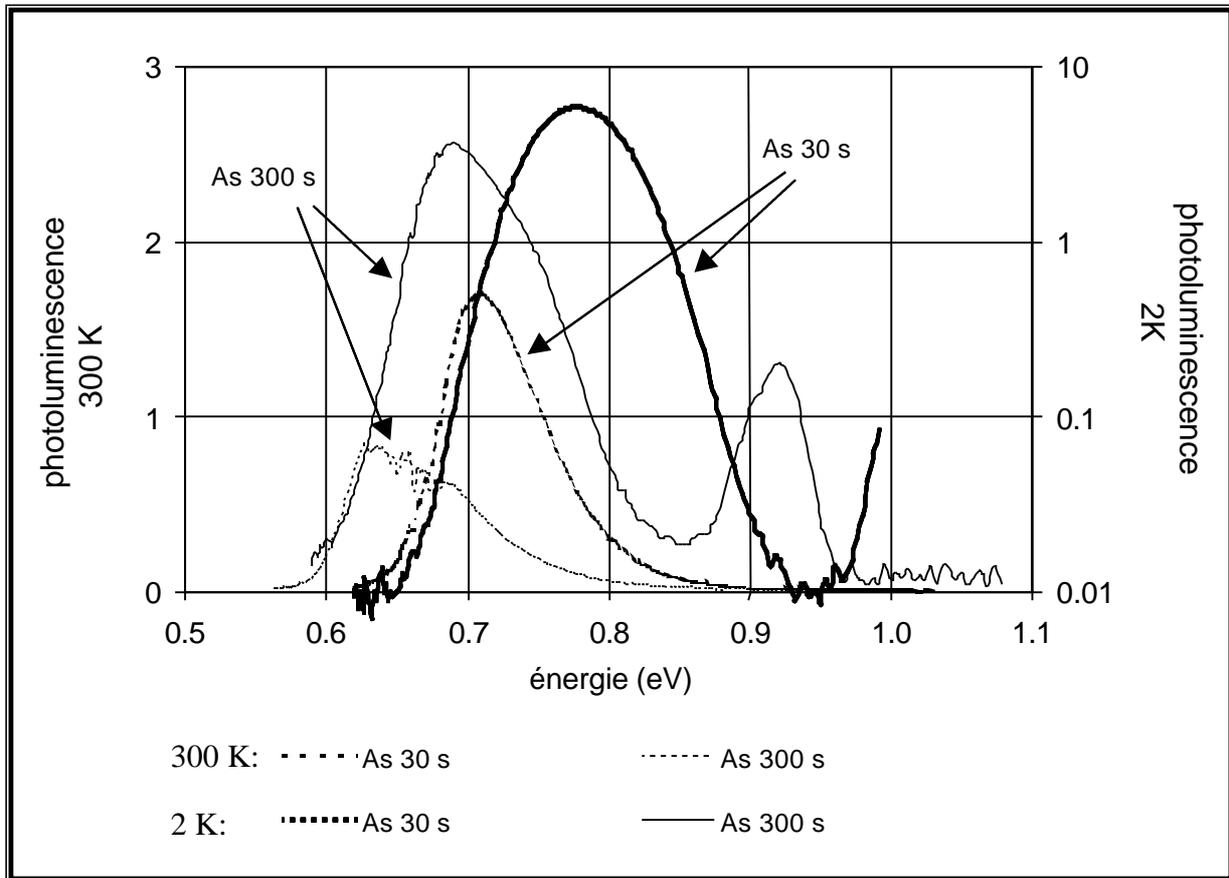


Figure 12: Photoluminescence à température ambiante et 2 K pour un échantillon de 2.1 MC d'InAs et différents temps de recuit sous As.

densité est équivalente ($400/\mu\text{m}^2$) avec une distribution binomiale des hauteurs autour des valeurs 80 et 120 Å (figure 13c).

Une pointe de très bonne qualité a été utilisée pour mettre en évidence les facettes des îlots pour l'échantillon ayant subi une interruption de croissance de 300 s (figure 14). On constate que les îlots ont une forme de trapèzes. La base est parallèle à $[1\bar{1}0]$ et le plan de symétrie est suivant $[33\bar{2}]$. Les angles des facettes et l'orientation du substrat, déterminée par les angles de clivage, montrent que ces facettes sont du type $\{1\bar{1}0\}$, $\{100\}$, et sans doute aussi $(111)\text{B}$ qui sont des plans de grande densité. Ainsi, le nombre de liaisons pendantes est minimal, et donc l'énergie de surface est minimale. Ces types de facettes ont déjà été observés par Guo et coll.^{Guo.97} sur des îlots d'InAs déposés sur GaAs $(112)\text{B}$. Les îlots ont dans ce cas une base rectangulaire avec deux faces triangulaires de type (110) et (100) (de base, la largeur du rectangle) et deux autres faces trapézoïdales (001) et $(111)\text{B}$.

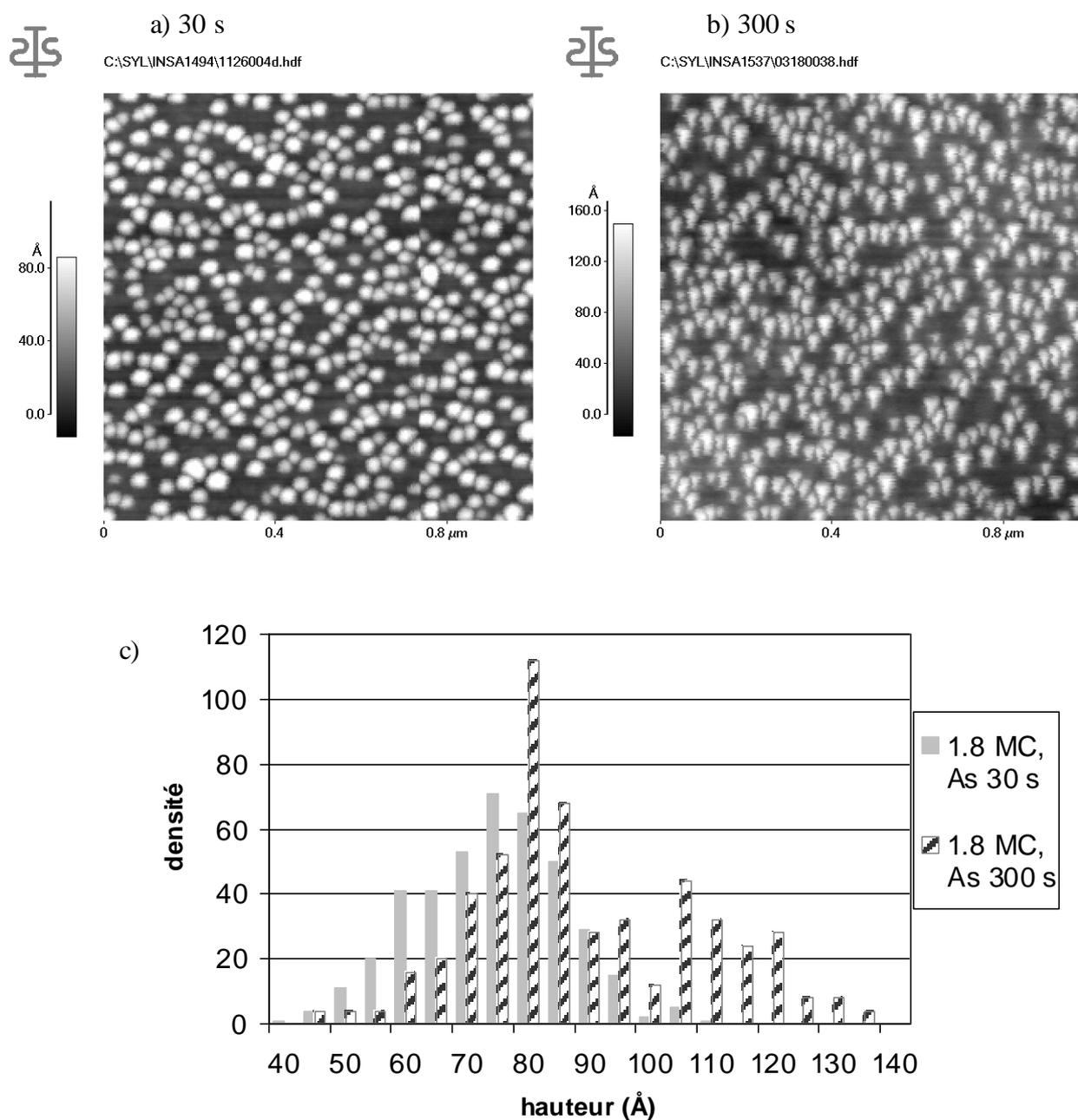


Figure 13: vues planes de clichés de microscopie à force atomique d'échantillons non recouverts d'InAs de 1.8 MC d'épaisseur nominale, avec un arrêt de croissance sous arsenic de a) 30 s, et b) 300 s.

c) histogramme des hauteurs des îlots obtenu après analyse des images précédentes.

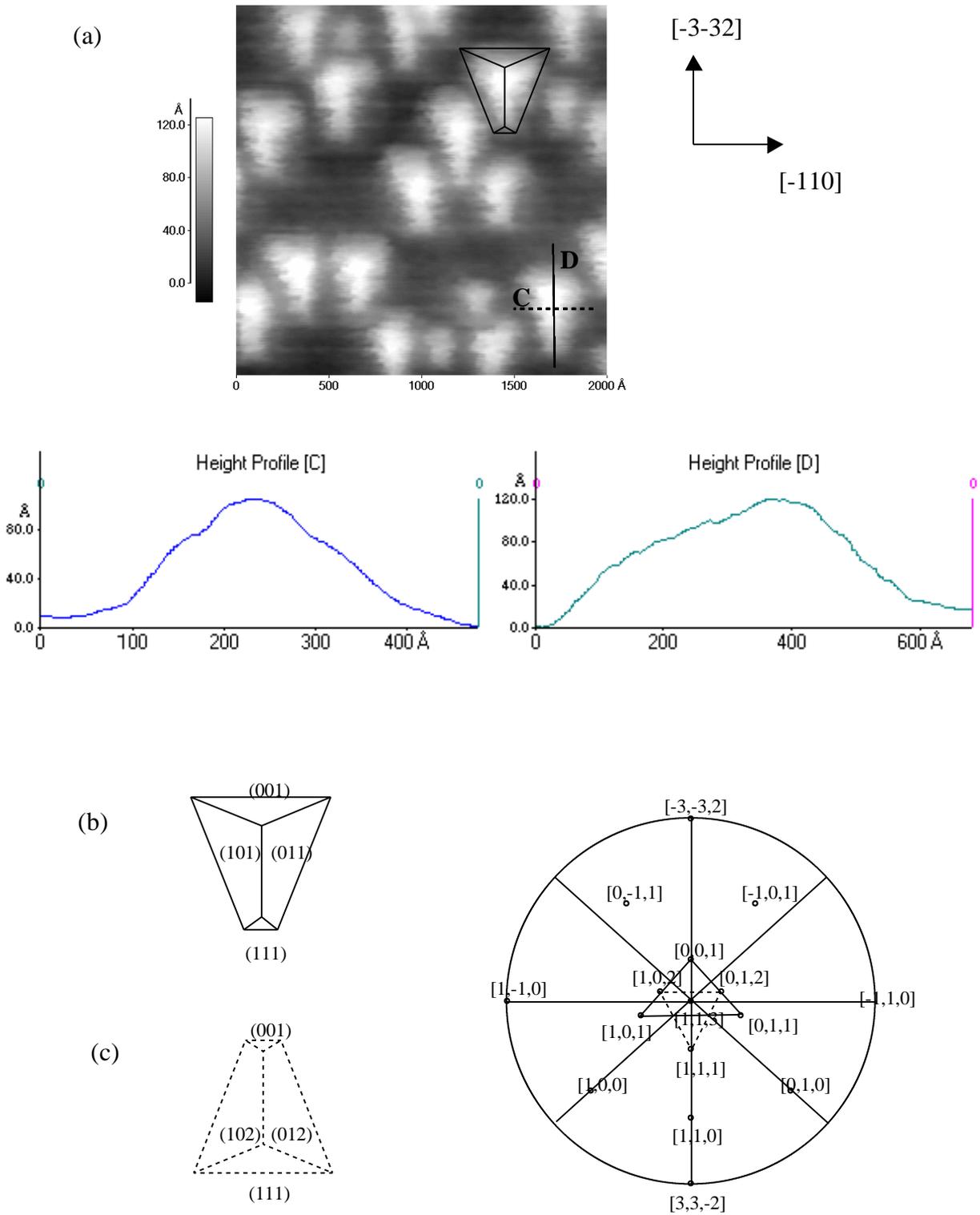
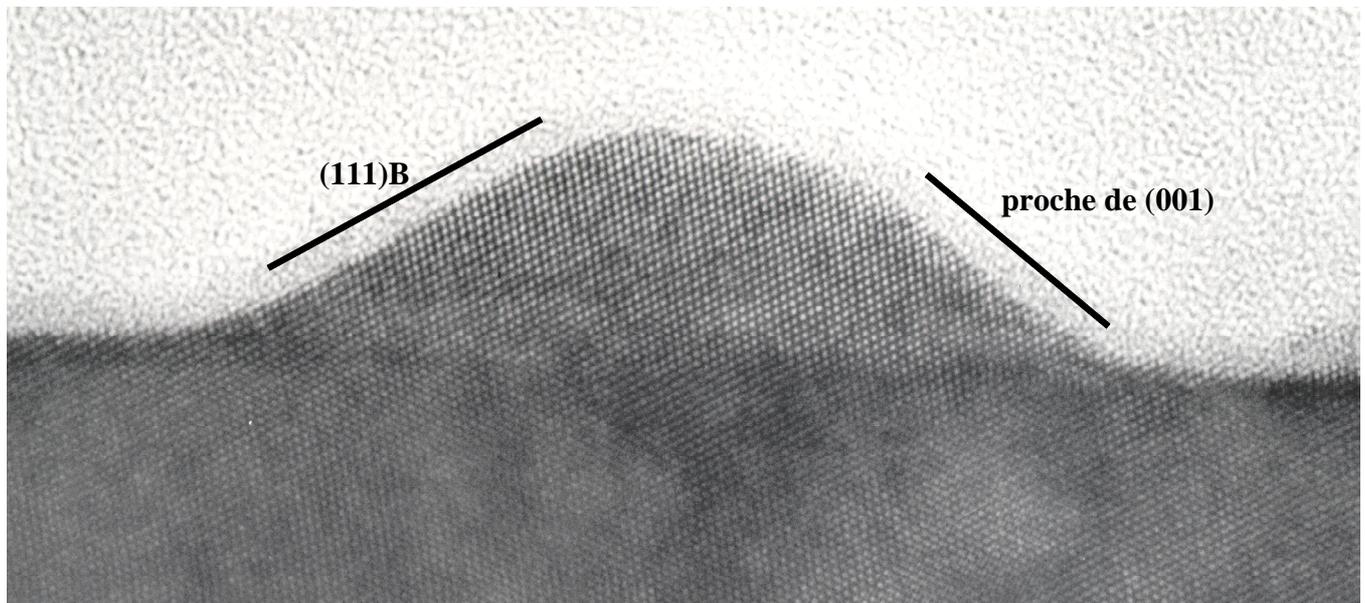


Figure 14: Une pointe AFM de très bonne qualité a été utilisée pour mettre en évidence les facettes des îlots . (a) Image de microscopie à force atomique et profils d'un îlot suivant $[-110]$ et $[-3-32]$. Deux possibilités (b) et (c) peuvent être envisagées pour les indices des facettes, d'après la comparaison de l'image AFM avec la projection stéréographique. Nous n'avons indiqué ici que les directions utiles.

L'existence de facettes de bas indice a été confirmée par des observations de microscopie électronique en transmission haute résolution sur des îlots d'InAs^{Lacombe.98-2} et des îlots de Ga_{0,2}In_{0,8}As^{Lacombe.98}. Les figures 15a et 15b présentent deux clichés correspondant à deux échantillons de 1.8 MC d'InAs soumis à une interruption de croissance respectivement de 30 ou 300 s (figure 15). Dans les deux cas les îlots observés sont cohérents, c'est à dire sans dislocations. Les dimensions des îlots sont du même ordre de grandeur que celles déterminées par microscopie à force atomique. Ils présentent des facettes de bas indice (111)B et proche de (001).

Pour l'échantillon soumis à une interruption de croissance de 300 s, une double distribution des tailles d'îlots a été observée par microscopie à force atomique (figure 13c). En microscopie électronique en transmission on observe que certains îlots ont des tailles et un profil inchangés par rapport à l'échantillon 30 s, et qu'une deuxième distribution d'îlots, de 110 Å de hauteur moyenne, apparaît. Le profil de ces derniers diffère légèrement des précédents: la facette (111)B diminue au profit de la facette (001).



100 Å

Figure 15: Clichés de microscopie électronique en transmission à haute résolution en section transverse suivant $[-110]$ d'îlots d'InAs (dépôt nominal 1.8 MC).

a) échantillon soumis à une interruption de croissance de 30 s sous arsenic.

b) échantillon soumis à une interruption de croissance de 300 s sous arsenic.

3.2.2 Interruption de croissance sous P₂.

Pour tenter d'ajuster l'énergie de luminescence à 1.55 μm (0.8 eV), nous avons procédé à une exposition des îlots à un flux de phosphore, à la suite de l'exposition au flux d'arsenic, pendant l'interruption de croissance. L'objectif est d'utiliser les échanges As/P pour réduire la taille des îlots, de manière à augmenter le confinement et décaler l'énergie de luminescence vers 1.55 μm à température ambiante.

Sur la figure 16a est présentée la photoluminescence à 300 K pour quatre échantillons avec des îlots d'InAs. Le spectre de photoluminescence à plus basse énergie correspond à un dépôt de 2.1 MC d'InAs à 500 °C suivi d'un arrêt de croissance de 30 s sous As avant recouvrement de 500 Å d'InP. Les trois autres échantillons ont été élaborés dans les mêmes conditions, avec une interruption de croissance supplémentaire sous phosphore de 5, 10 et 15 s avant le dépôt d'InP. On constate que l'interruption de croissance sous phosphore provoque un décalage vers les hautes énergies et un élargissement du spectre de photoluminescence. Le pic de luminescence est proche de 1.55 μm pour 10 s. Pour 0 et 10 s d'interruption de croissance sous phosphore, la largeur des pics est respectivement de 84 et 120 meV. Si l'on modélise les îlots par des puits quantiques contraints, les largeurs à mi-hauteur correspondent dans les deux cas à des fluctuations de hauteur de 11 MC. L'interruption de croissance supplémentaire sous phosphore n'accentue donc pas la dispersion des tailles des îlots. Ainsi, l'interruption de croissance sous phosphore après formation des îlots permet d'ajuster l'énergie de luminescence. Cependant, celle-ci varie rapidement avec le temps d'exposition ce qui entraîne des problèmes de reproductibilité. Nous avons alors réalisé des échantillons similaires à une plus basse température de 460 °C pour tenter de limiter les échanges As/P et mieux contrôler l'énergie de luminescence des îlots.

Les résultats de photoluminescence pour les deux séries élaborées à 500 et 460 °C sont reportés figure 16b. En abscisse, le temps de recuit sous P et en ordonnée le nombre de monocouches équivalent à l'énergie de transition. Dans les deux cas la variation de hauteur des îlots est quasiment linéaire avec le temps d'arrêt de croissance sous phosphore. On constate que les échanges As/P sont effectivement mieux contrôlés, car plus lents, à plus basse température: l'énergie de luminescence varie plus lentement en fonction de la durée d'exposition des îlots au flux de phosphore. La longueur d'onde de 1.55 μm est atteinte pour une durée d'exposition de 20 s à 460 °C, comparativement à 10 s pour une température de 500 °C.

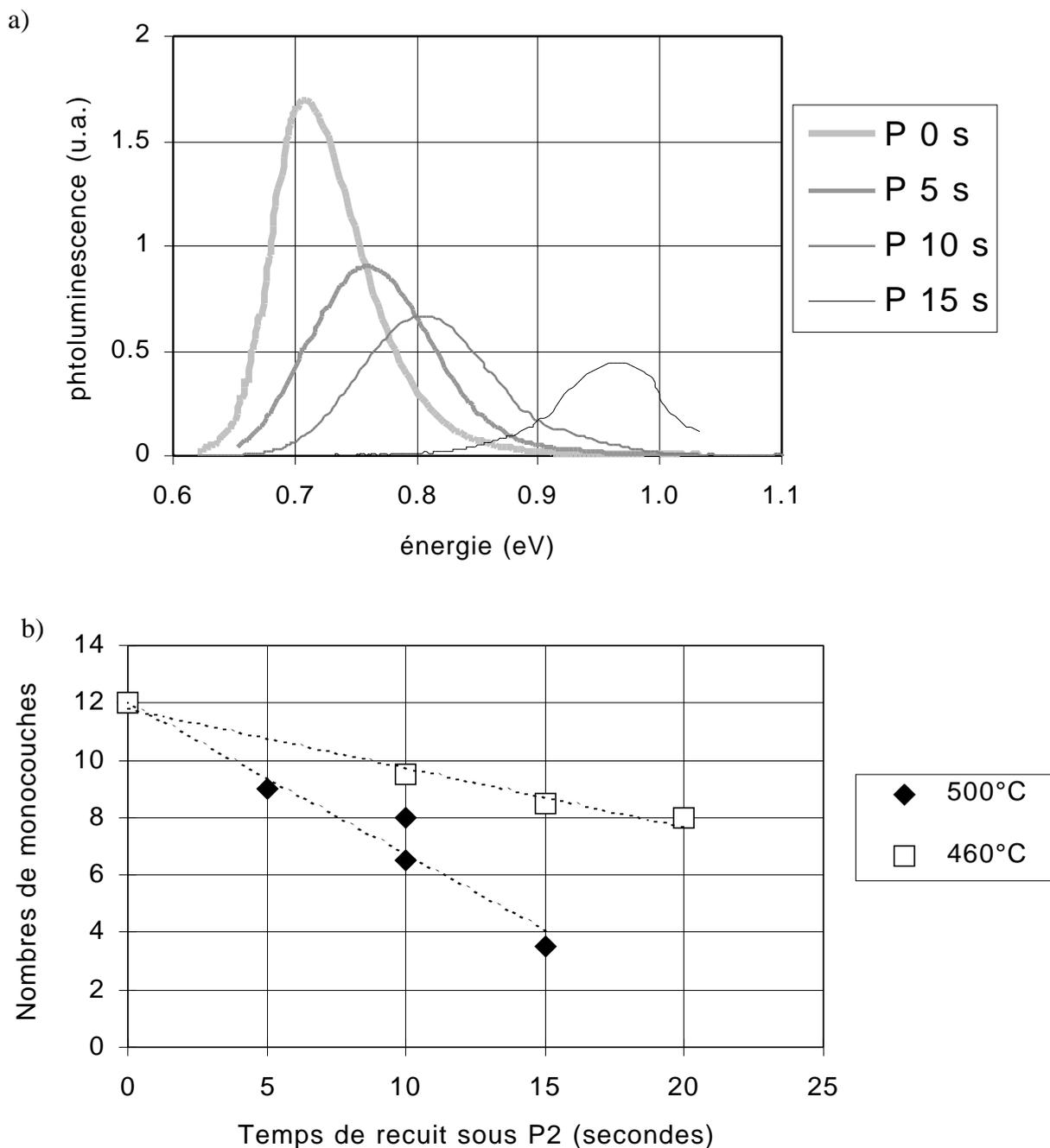


Figure 16: échantillons de 2.1 MC d'InAs, avec une interruption de croissance sous arsenic de 30 s et sous phosphore de 0 à 20 s.

a) Photoluminescence à 300 K pour une croissance à 500 °C

b) Nombre de monocouches des hauteurs des îlots déduit de l'énergie de transition de photoluminescence pour une température de croissance de 500 et 460 °C.

La figure 17 montre la luminescence en fonction de la température pour une croissance à 500 °C, avec une interruption de croissance sous flux d'arsenic (30 s) puis de phosphore (10 s). A température ambiante le pic de photoluminescence est centré sur 0.8 eV. Lorsque la température diminue, apparaît un deuxième pic à plus haute énergie, comme dans le cas de la seule exposition au flux d'arsenic (figure 10). Ce pic, attribué à une couche de quaternaire $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{P}_{1-y}$ provenant du Q1.18 (figure 11), ne disparaît pas lors de l'arrêt de croissance sous phosphore. De plus, le rapport d'intensité de ce pic par rapport à celui des îlots est plus important, comparativement au cas de la figure 10. Ceci peut s'expliquer par une différence d'énergie plus faible entre la couche 2D et les îlots, dont le pic de luminescence se décale vers les hautes énergies lorsqu'ils sont soumis au flux de phosphore.

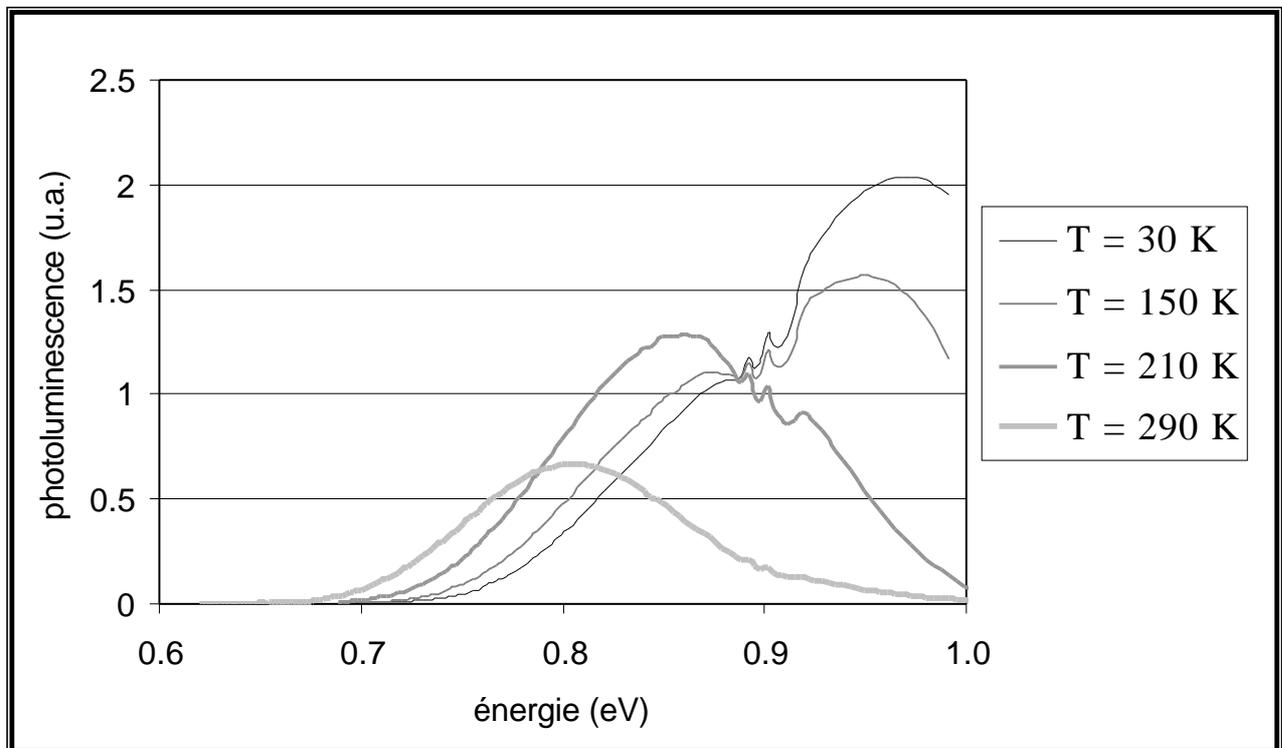


Figure 17: Photoluminescence en fonction de la température pour un dépôt nominal de 2.1 MC d'InAs à 500 °C, suivi d'une interruption de croissance de 30 s sous arsenic et de 10 s sous phosphore.

3.3. Synthèse des résultats.

La relaxation en îlots sur les deux orientations cristallines (001) et (113)B de InP donne des densités très différentes: pour 2.1 MC d'épaisseur nominale d'InAs, elle est dix fois plus élevée sur (113)B que sur (001). Nous avons mesuré respectivement 500 et 50 îlots / μm^2 par microscopie à force atomique. Cette augmentation de la densité s'accompagne d'une réduction des tailles d'un facteur 2 sur le diamètre et sur la hauteur. Ce résultat nous a encouragé à poursuivre l'étude des îlots sur (113)B, avec l'objectif d'obtenir une émission à 1.55 μm et une densité d'états 0D pour la réalisation de structures laser.

En augmentant le dépôt nominal d'InAs nous espérons augmenter la densité des îlots et réduire ainsi leurs tailles, comme cela a été observé sur (001)^{Ponchet.95}. Les résultats montrent un comportement très différent de celui observé pour une croissance suivant (001). La première différence réside dans le fait que, pour nos conditions de croissance nous n'avons pas observé d'épaisseur critique, la densité des îlots étant proportionnelle à la quantité d'InAs déposée en deçà de 3 MC. Cette corrélation directe permet un bon contrôle de la densité des îlots, avec une bonne reproductibilité. La deuxième différence importante est que la taille des îlots varie peu avec leur densité. Tant les mesures de microscopie à force atomique que celles de photoluminescence confirment ce résultat. Cette constance de la taille des îlots sur (113)B entraîne une émission de photoluminescence autour de 0.7 eV à température ambiante quelle que soit l'épaisseur déposée. Ainsi un autre paramètre de croissance doit être utilisé pour obtenir un pic à 0.8 eV correspondant à 1.55 μm .

Comme paramètre supplémentaire nous avons choisi le recuit sous arsenic. Son importance a déjà été démontrée sur (001): le temps de recuit contrôle le passage 2D-plateaux-îlots. Nous avons mené une première étude en fonction du recuit sous As pour étudier la stabilité du système. Celle-ci a montré une évolution des îlots vers une double distribution de tailles mais la longueur d'onde de 1.55 μm n'a pas été atteinte. L'utilisation d'un recuit sous phosphore à la suite de l'interruption de croissance sous arsenic a permis de décaler le pic d'émission vers les hautes énergies. Un contrôle précis et reproductible de l'énergie de luminescence est réalisé à une température de croissance de 460 °C alors qu'à 500 °C le décalage d'énergie en fonction du temps de recuit sous phosphore est trop rapide pour permettre un ajustement reproductible de cette énergie.

4. Discussion.

La plus grande densité des îlots d'InAs sur substrat (113)B est due à une plus forte nucléation. Elle peut être expliquée qualitativement à l'aide du modèle de Tersoff (voir chapitre 3). Sur la figure 18a est schématisé le passage 2D-3D. Le calcul de l'énergie du système fait intervenir deux termes: la contrainte et l'énergie de surface. Alors que le premier est favorable à la relaxation élastique, l'énergie de surface est minimale pour une surface plane.

Sur la figure 18b est représentée l'énergie totale en fonction du volume de l'îlot. L'origine est prise pour une couche 2D. On constate que, en deçà du volume critique, le nucléus est énergétiquement défavorable. Au delà il a tendance à croître indéfiniment. Son volume est en fait limité par le manque de matière ou d'autres phénomènes qui ne sont pas pris en compte dans ce modèle analytique.

Les expressions du volume de l'îlot critique V_c et son énergie E_{max} (qui est l'énergie d'activation de la nucléation) sont données ci-dessous pour un îlot pyramidal. Elles dépendent de:

- un terme d'énergie de surface^{Tersoff.93} $\Gamma = g_e \cdot \csc(\varphi) - g_s \cdot \cot(\varphi)$ ou g_e est l'énergie par unité de surface des cotés des îlots et g_s est celle de la couche de mouillage lors du passage 2D-3D, φ étant l'angle des facettes des îlots avec la surface du substrat.
- c , proportionnel au désaccord paramétrique élevé au carré.

$$V_c = \left(\frac{4 \cdot \Gamma}{9 \cdot c} \right)^3 \cdot \cot^2(\varphi)$$

$$E_{max} = \frac{1}{3} (4 \cdot \Gamma)^3 \cdot (9 \cdot c)^{-2} \cdot \cot(\varphi)$$

A partir d'un substrat orienté (001), on suppose que la création de facettes de hauts indices s'ajoute à l'augmentation de l'aire de la surface totale et "coûte" de l'énergie au système. En effet, les surfaces de hauts indices ont un nombre de liaisons pendantes par unité de surface supérieur à une surface de plus bas indices et par conséquent une énergie par unité de surface supérieure. *A contrario* la création d'une facette de type (001), (110) ou (111) comme déterminée sur un substrat (113)B est supposée moins coûteuse en énergie. On a dans ce cas:

$$g_e(001) > g_e(113)B \text{ et } g_s(001) < g_s(113)B$$

$$\text{d'ou } G(001) > G(113) \text{ et}$$

$$V_c, E_{max}(001) > V_c, E_{max}(113) .$$

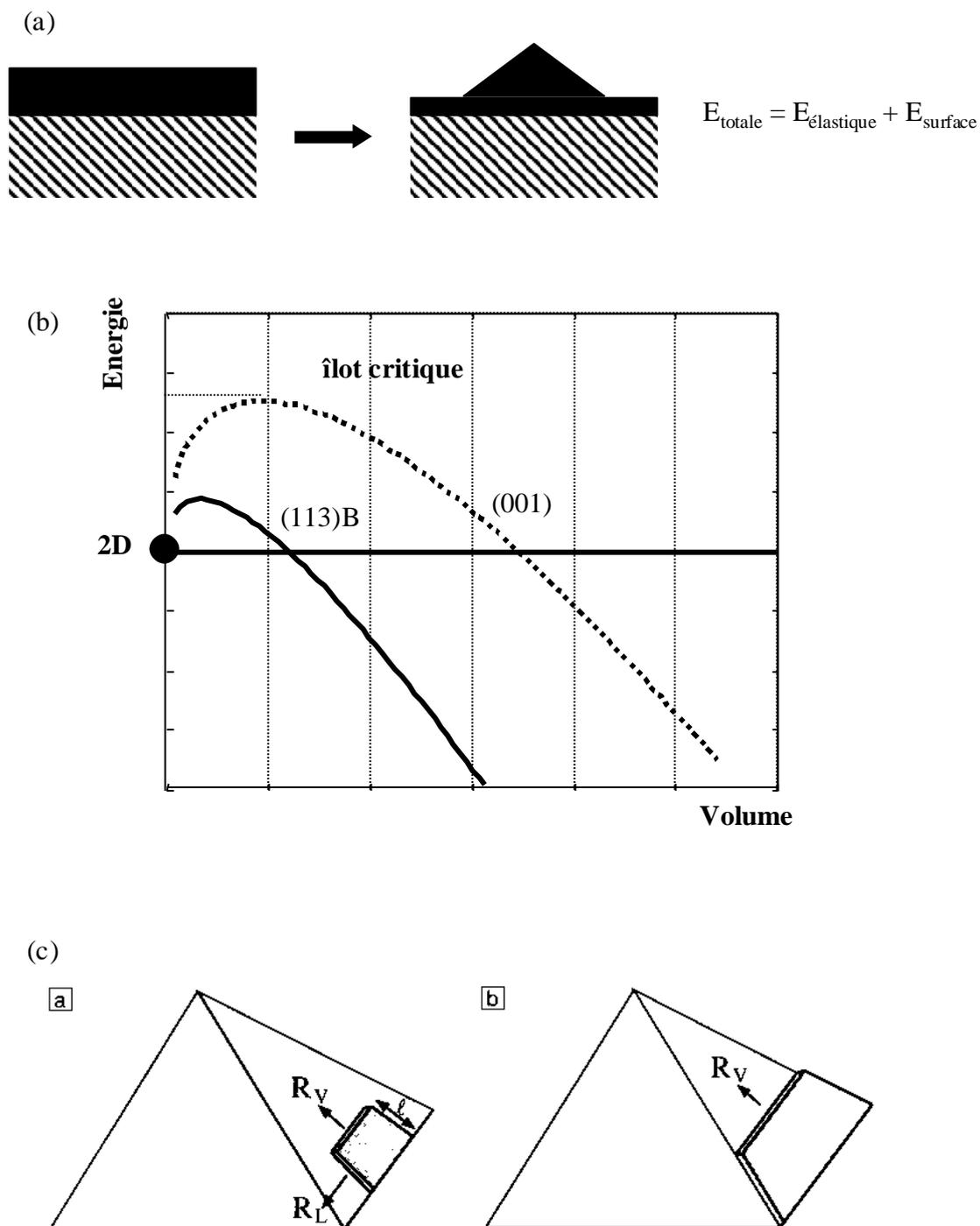


Figure 18: (a) Passage 2D-3D: relaxation élastique d'une couche contrainte.

(b) représentation qualitative de la différence de nucléation entre les orientations (001) et (113)B à partir du modèle de Tersoff.

(c) modèle de Jesson de la croissance des îlots par nucléation sur les facettes.

Le volume du nucléus critique et l'énergie d'activation du modèle de Tersoff sont plus faibles sur (113)B que sur (001), ce qui est représenté qualitativement sur la figure 18b. La nucléation est plus facile sur une surface de hauts indices et la densité finale des îlots est donc plus importante. Cependant les énergies de surface étant des grandeurs mal connues, il est difficile d'estimer quantitativement leur rôle dans le processus de transition élastique 2D-3D. Un autre résultat important concerne les dimensions des îlots d'InAs qui sont plus petits que ceux observés sur (001), environ d'un facteur 2 sur le diamètre et la hauteur et donc d'un facteur 8 sur le volume. Leur diamètre est compris entre 250 et 400 Å et leur hauteur moyenne est de 80 Å. Leurs dimensions varient peu avec la quantité nominale d'InAs: on observe une diminution de la hauteur de 20 % pour des dépôts allant de 0.3 à 5 MC (figure 7a). Un effet important limite donc la taille des îlots. En effet nous avons étudié leur évolution au cours d'un recuit de 300 s sous arsenic. Apparaît alors une double distribution d'îlots correspondant à des hauteurs de 80 et 120 Å. Cependant, il n'y a ni coalescence ni nucléation de dislocations (d'après les observations par microscopie électronique en transmission), ce qui indique une grande stabilité des îlots.

La limitation de la taille des îlots est un point important pour la réalisation de boîtes réellement 0D. Deux phénomènes peuvent expliquer la différence observée entre la croissance sur un substrat orienté (001) et (113)B. D'une part, une plus forte nucléation suivant (113)B: la quantité de matière disponible pour chaque îlot est alors inférieure au cas d'une nucléation sur (001). D'autre part, l'existence de facettes de bas indices pour les îlots obtenus sur (113)B. Le modèle de Jesson^{Jesson.96} (voir chapitre 3) pour la croissance des îlots est basé sur la nucléation de facettes bien définies: il existe alors une énergie d'activation pour la création d'une nouvelle facette correspondant à un nucléus critique qui croît ensuite pour former une nouvelle facette (figure 18c).

Nous avons aussi comparé des couches de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ élaborées à 500 °C sur substrats (001) et (113)B. Dans le premier cas, la relaxation élastique est limitée à des vallées (chapitre IV, figure 15c) alors que sur le substrat (113)B une forte densité d'îlots se forme. De plus cette étude nous a montré l'influence de la contrainte sur la taille des îlots. On constate une augmentation du diamètre lorsque la contrainte diminue, ce qui est en accord avec le modèle de Tersoff^{Tersoff.94}. En effet le volume de l'îlot critique V_c , ainsi que l'énergie d'activation, dépendent fortement du désaccord paramétrique (voir chapitre III). La densité d'îlots nucléés est donc plus faible et leur volume est plus important. De plus, d'après un autre calcul dû à Chen et coll.^{Chen.96}, la barrière d'énergie en bord d'îlot qui limite sa croissance est

proportionnelle au désaccord paramétrique au carré. Celle ci est donc plus faible pour (Ga)InAs que pour InAs sur InP et explique la différence de tailles observée.

Les îlots d'InAs et de GaInAs déposés sur (113)B présentent un arrangement visible dans le plan qui se traduit par une perte de symétrie centrale de la transformée de Fourier des images contrairement aux échantillons (001). L'alignement se fait préférentiellement suivant des directions proches de 45° des directions $[\bar{1}10]$ et $[\bar{3}\bar{3}2]$. Elles correspondent à la projection de directions du type [100], qui sont des directions de déformation facile. Un arrangement carré suivant les directions [100] et [010] a été identifié comme étant le plus favorable énergétiquement pour des îlots sur substrat (001)^{Shchukin.95}.

Pour les échantillons d'InAs, l'arrangement s'accroît avec la densité des îlots (jusqu'à $900 / \mu\text{m}^2$ pour des îlots qui font entre 250 et 400 Å de diamètre). Cette densité correspond à une distance centre à centre pour un réseau carré de 300 Å, ce qui signifie que les îlots sont très proches les uns des autres. La meilleure organisation est observée pour 17.1 MC de $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$. Les îlots font au plus 1000 Å de large et leur densité est de $100 / \mu\text{m}^2$. Cette densité correspond effectivement à une distance centre à centre de 1000 Å pour un arrangement carré. Les îlots en forte densité interagissent entre eux par la contrainte qu'ils induisent dans le substrat. A.Ponchet a calculé cette interaction en modélisant les îlots par éléments finis^{Ponchet.98}. Elle devient importante lorsque la distance entre îlots (de forme pyramidale à base carrée) devient inférieure à deux fois le diamètre, ce qui est le cas ici.

En conclusion, la nucléation des îlots suivant (113)B est très différente des phénomènes observés suivant (001). Elle serait favorisée par une augmentation plus faible, voire une diminution, de l'énergie de surface lors du passage 2D-3D. Les densités maximales d'îlots obtenues sont alors bien plus importantes que suivant (001). Dans ces conditions la distance entre îlots diminue et ils s'organisent dans le plan, les interactions via le substrat devenant importantes.

Nous avons pu contrôler la longueur d'onde d'émission de ces îlots et l'ajuster à 1.55 μm . Ils présentent donc un grand intérêt pour la réalisation de dispositifs opto-électroniques pour les télécommunications par fibre optique.

- Chen.⁹⁶ Y.Chen and J.Washburn, "Structural transition in large-lattice-mismatch heteroepitaxy", *Phys.Rev.Lett.* 77(19), pp.4046-4049 (1996). Commentaire de I.Daruka and A.-L.Barabási, "Island formation and critical thickness in heteroepitaxy", et réponse de Y.Chen and J.Washburn, *Phys.Rev.Lett.* 78 (15), pp.3027-3028 (1997).
- Dobbs.⁹⁷ H.T. Dobbs, D.D.Vvedensky and A.Zangwill, "Mean-field theory of quantum dot formation", *Phys.Rev.Lett.* 79(5), pp.897-900 (1997). H.T.Dobbs et col., "Theory of quantum dot formation in Stanski-Krastanow systems.", In proceedings of ICFSI 6' (International Conference on the formation of semiconductor interfaces): 1997 June 23-27; *Appl.Surf.Sci* 1997, inpress.
- Fréchengues.⁹⁸⁻² S. Fréchengues, V. Drouot, N. Bertru, B. Lambert, S. Loualiche, and A. Le Corre, "Self-organised InAs islands on InP(311)B substrates emitting around 1.55 μm .", MBE-X, Cannes (sept.98), to be published in *J.Cryst. Growth* (1999).
- Gendry.⁹² M.Gendry, V.Drouot, C.Santinelli and G.Hollinger, "Critical thicknesses of highly strained InGaAs layers grown on InP by molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 60 (18), pp.2249-2251 (1992).
- González.⁹⁶ P.P.González-Borrero, D.I.Lubyshev, E.Marega Jr., E.Petitprez and P.Basmaji, "Self-organized InGaAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy on (100), (711)A/B, (511)A/B, (311)A/B, (211)A/B, (111)A/B oriented GaAs", *J.Crys.Growth* 169, pp.424-428 (1996).
- Guo.⁹⁷ S.P.Guo et col., "InAs self-organized quantum dashes grown on GaAs (211)B", *Appl.Phys.Lett.* 70(20), pp.2738-2740 (1997).
- Henini.⁹⁷ M.Henini, S.Sanguinetti, L.Brusaferri, E.Grilli, M.Guzzi, M.D.Upward, P.Moriarty and P.H.Beton, "Structural and optical characterization of self-assembled InAs-GaAs quantum dots grown on high index surfaces.", *Microelectronics J.* 28, pp.933-938 (1997). Jesson'96 D.E.Jesson et col., *Phys.Rev.Lett.* 77(7), pp.1330-1333 (1996).
- Lacombe.⁹⁸ D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert and A.Le Corre, "Elastic relaxation phenomena in compressive Ga_{0.2}In_{0.8}As grown on (001) and (113)B InP at low lattice mismatch.", MBE-X, Cannes (sept.98), to be published in *J.Cryst. Growth* (1999).
- Lacombe.⁹⁸⁻² D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert and A.Le Corre, "Formation of low index facets in Ga_{0.2}In_{0.8}As and InAs islands on a InP(113)B substrate.", submitted to *Appl.Phys.Lett.* (1998).
- Nishi.⁹⁶ K.Nishi, R.Mirin, D.Leonard, G.Medeiros-Ribeiro, P.M.Petroff and A.C.Gossard, "Structural and optical characterization of InAs/InGaAs self-assembled quantum dots grown on (311)B GaAs", *J.Appl.Phys.* 80(6), pp.3466-3470 (1996).
- Nishi.⁹⁷ K.Nishi, T.Anan, A.Gomyo, S.Kohmoto and S.Sugou, "Spontaneous lateral alignment of In_{0.25}Ga_{0.75}As self-assembled quantum dots on (311)B GaAs grown by gas source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 70(26), pp.3579-3581 (1997).
- Notzel.⁹⁴ R.Nötzel, J.Temmyo and T.Tamamura, "Self-organization of boxlike microstructures on GaAs (311)B surfaces by metalorganic vapor-phase epitaxy", *Jpn.J.Appl.Phys.* 33, pp.L275-L278 (1994).
- Platen.⁹⁷ J.Platen et col., "Geometric and electronic structure of molecular beam epitaxy-prepared GaAs (112) and (113) surfaces.", *Microelectronics Journal* 28, pp.969-976 (1997).

- Ponchet.⁹⁵ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert and S.Salaün, " Relationship between self-organization and size of InAs islands on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 67, 1850 (1995).
- Ponchet.⁹⁸⁻² A.Ponchet, D.Lacombes, L.Durand, D.Alquier and J.-M.Cardonna, "Elastic energy of strained islands: contribution of the substrate as a function of the island aspect ratio and inter-island distance", *Appl.Phys.Lett.* 72(23), pp.2984-2986 (1998).
- Shchukin.⁹⁵ V.A.Shchukin, N.N.Ledentsov, P.S.Kop'ev and D.Bimberg, "Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands.", *Phys.Rev.Lett.* 75, pp.2968-2971 (1995).
- Takahashi.⁹⁷ M.Takahashi et col. "Growth and fabrication of strained-alyer InGaAs/GaAs quantum well lasers grown on GaAs(311)A substrates using only a silicon dopant.", *J.Appl.Phys.* 82(9), pp. 4551-4557 (1997).
- Tersoff.⁹³ J.Tersoff and R.M.Tromp, "Shape transition in growth of strained islands: spontaneous formation of quantum wires", *Phys.Rev.Lett.* 70 (18), pp.2782-2785 (1993).
-

CONCLUSION

Mon objectif était d'utiliser les propriétés électroniques et optiques de nanostructures, réalisées par épitaxie d'une couche contrainte sur un substrat d'InP, dans des dispositifs opto-électroniques tels que les lasers et les structures photoréfractives rapides, destinés en particulier au domaine des télécommunications par fibre optique. J'ai pour cela étudié le processus de transition élastique 2D-3D en îlots ou fils de couches de (Ga)InAs contraintes sur substrat InP orienté (001) et (113)B.

La première partie de cette étude, menée sur des substrats orientés (001), a montré un phénomène de relaxation de InAs sur InP très différent de ce qui a été observé dans le système (Ga)InAs/GaAs. Nous avons observé une transition continue depuis la couche 2D de départ vers des plateaux, qui sont une étape intermédiaire du processus de formation des îlots. Par rapport à un puits 2D ces plateaux présentent une chute limitée de l'intensité de luminescence lorsqu'on augmente la température. Chaque épaisseur de plateaux, équivalente à un nombre entier de monocouches, est à l'origine d'un pic de luminescence distinct. Les propriétés des plateaux sont proches de celles de puits quantiques 2D, et présentent en outre l'avantage d'une moins grande sensibilité à la présence de défauts.

L'optimisation des conditions de croissance a permis d'obtenir la luminescence provenant d'une seule épaisseur de plateaux, cependant à plus courte longueur d'onde que 1.55 μm . La longueur d'onde de 1.55 μm est en effet atteinte pour des épaisseurs plus importantes des plateaux, c'est à dire à un stade avancé du processus de transition élastique 2D-3D, où ils ont évolué vers des îlots ayant une dispersion des tailles importante.

Lors d'un arrêt de croissance prolongé la couche évolue vers une configuration plus stable et les plateaux se transforment en îlots. Ces derniers donnent un unique pic de photoluminescence élargi et à basse énergie, au delà de 1.55 μm . J'ai étudié leurs propriétés structurales et optiques en fonction de la nature de la couche tampon sur laquelle se fait le dépôt et de l'épaisseur nominale déposée. Pour corréler les deux types d'analyse, J'ai développé et utilisé une attaque chimique sélective permettant de caractériser les îlots par photoluminescence puis microscopie à force atomique. Cette étude a montré que la largeur du pic de luminescence est directement liée à la dispersion des hauteurs des îlots. L'effet de l'encapsulation, qui gèle l'évolution des îlots, a ainsi été mesuré. Les îlots sont dans ce cas trois fois moins hauts que les îlots non recouverts, le diamètre étant équivalent.

La comparaison des observations faites sur une couche tampon d'InP et sur Q1.18 montre des différences importantes sur la densité et la forme des îlots. Ces différences peuvent être attribuées à une rugosité plus importante du composé quaternaire Q1.18, modifiant les phénomènes de surface lors de la transition élastique 2D-3D. En effet une rugosité de la surface génère des sites privilégiés de nucléation et peut aussi diminuer la longueur de diffusion des atomes mobiles. C'est le cas sur Q1.18, avec une densité finale des îlots plus importante et des tailles plus faibles que sur InP.

La différence de tailles avec le système InAs/GaAs peut provenir d'une concentration de la contrainte du substrat en bord d'îlot. Celle-ci dépend en effet du désaccord paramétrique qui est deux fois plus important pour InAs/GaAs. Ce phénomène pourrait aussi être responsable de la faible distribution des tailles d'îlots dans le cas de InAs/GaAs et de la difficulté d'y parvenir avec le système InAs/InP.

Pour augmenter les capacités de piégeage des îlots 3Dt, nous avons déposé des couches plus épaisses de matériau ternaire $Ga_xIn_{1-x}As$ ($0 < x < 0.47$) qui a un paramètre de maille inférieur et une énergie de bande interdite supérieure à InAs. Des îlots allongés et des fils ont été obtenus, en fonction du désaccord paramétrique. Ils présentent l'intérêt de limiter la diffusion des porteurs suivant une direction dans le plan de la couche, et sont de bons candidats pour le piégeage des porteurs dans un dispositif photoréfractif.

Les îlots d'InAs permettant de piéger les porteurs suivant les trois directions ont été utilisés pour réaliser des dispositifs photoréfractifs. Les couches de (Ga)InAs permettent le piégeage d'un plus grand nombre de porteurs, et peuvent aussi être utilisées dans des dispositifs photoréfractifs.

Avec les plateaux d'InAs, la longueur d'onde de $1.55 \mu m$ n'a pas été atteinte de manière reproductible. Quelle voie différente explorer avec l'objectif d'atteindre cette longueur d'onde? L'étude du modèle de Tersoff, auquel nos résultats ont été confrontés, a apporté une réponse. Il montre en effet que la nucléation dépend non seulement d'un terme d'énergie élastique mais aussi d'un terme d'énergie de surface. L'utilisation de substrats d'indice élevé est un moyen direct de jouer sur ces énergies de surface. La nucléation est favorisée en diminuant le terme d'énergie de surface défavorable à la relaxation en îlots.

J'ai étudié l'épitaxie de couches d'InAs et de (Ga)InAs sur InP orienté (113)B et comparé les résultats avec ceux obtenus sur (001). Le passage continu 2D-plateaux-îlots n'a pas été observé, la transition 3D étant plus rapide que suivant l'orientation de substrat (001). En outre, pour un même dépôt nominal la densité d'îlots finale est beaucoup plus importante.

En fonction de l'épaisseur nominale d'InAs la densité des îlots varie linéairement jusqu'à 3 MC, se stabilisant ensuite à $900/\mu\text{m}^2$. Les îlots sont plus petits que suivant (001) et possèdent des facettes de bas indice. Pour les densités importantes, les îlots interagissent via la contrainte qu'ils induisent dans le substrat. Ils s'ordonnent alors dans le plan selon un réseau carré dont les directions sont à 45° des directions $[1\bar{1}0]$ et $[33\bar{2}]$. Celles-ci correspondent à la projection dans le plan (113)B de directions du type $\langle 100 \rangle$.

La luminescence des îlots d'InAs sur (113)B est à plus haute énergie que sur (001) du fait du confinement plus important, le volume des îlots étant environ huit fois inférieur à celui des îlots obtenus sur (001). De plus, alors que l'élargissement du spectre des îlots réalisés sur (001) croît avec la température, il reste quasiment constant suivant (113)B. Ce résultat va dans le sens d'une densité d'états plus proche du 0D dans ce cas, ce qui est en concordance avec les plus faibles dimensions des îlots. Pour ajuster la longueur d'onde du pic de photoluminescence, nous avons utilisé les échanges d'éléments V arsenic et phosphore, et obtenu une émission des îlots à $1.55\ \mu\text{m}$ à température ambiante. Ce système est donc un candidat particulièrement intéressant pour la réalisation d'un laser à îlots émettant à $1.55\ \mu\text{m}$, longueur d'onde utilisée dans les télécommunications par fibre optique.

Des couches de ternaire $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ ont été étudiées pour les mêmes compositions que celles épitaxiées sur (001). La nucléation d'îlots a lieu pour un désaccord paramétrique de 1.85 % sur (113)B, avec la présence de facettes de bas indices, alors que suivant (001) la couche est de nature 2D. En diminuant le désaccord paramétrique, les tailles d'îlots obtenues sont plus importantes alors que leur densité reste élevée. La comparaison de la morphologie des couches suivant les deux indices de substrat confirment donc les conclusions de l'étude d'InAs, c'est à dire l'importance des énergies de surface et donc une nucléation d'îlots favorisée suivant l'orientation (113)B.

J'ai exploré différentes voies dans l'utilisation de la transition élastique 2D-3D de couches contraintes pour obtenir des couches aux propriétés nouvelles. Des îlots d'InAs sur InP (001) ont déjà été utilisés pour la réalisation de dispositifs photoréfractifs. L'intérêt d'un substrat InP orienté (113)B pour la réalisation d'îlots uniformes de petites dimensions est démontré. L'étape suivante consiste à empiler plusieurs plans d'îlots pour les utiliser comme zone active d'un laser, émettant à $1.55\ \mu\text{m}$ de longueur d'onde. L'émission de photoluminescence plus large que celle d'un puits 2D pourrait être mise à profit dans des composants tels que les lasers accordables, utilisés pour le multiplexage en longueur d'onde dans la transmission des données par fibre optique.

- Ando.⁹³ S.Ando, T.Honda and N.Kobayashi, "Self limited facet growth for GaAs tetrahedral quantum dots", *Jpn.J.Appl.Phys.* 32, pp.L 104-L 106 (1993).
- Arakawa.⁸² Y.Arakawa and H.Sakaki, "Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current.", *Appl.Phys.Lett.* 40, pp.939-941 (1982).
- Barabási.⁹⁷ A.L.Barabási, "Self-assembled island formation in heteroepitaxial growth.", *Appl.Phys.Lett.* 70, pp.2565-2567(1997).
- Bauer.⁹² G.Bauer and G.Springholz, *Vacuum* 43(5-7), pp.357-365 (1992).
- Bensoussan.⁹⁴ M.Bensoussan, "Les nouvelles technologies photoniques." dans "Les communications optiques", *mémento technique* N° 3, CNET- France télécom, p.43 (juin 1994).
- Boisset.⁹⁴ M.-C. Boisset et C. Frétygny, "Monocouche de billes de latex ou de silice: utilisation pour la calibration et pour le contrôle des pointes en AFM", *Microsc. Microanal. Microstruct.* 5 (1994), 71-77.
- Brault.⁹⁸ J.Brault et M.Gendry, communication privée (1998). J.Brault, M.Gendry, G.Grenet, G.Hollinger, Y.Desières and T.Benyattou, "Role of buffer surface morphology and alloying effects on the properties of InAs nanostructures grown on InP (001), *Appl.Phys.Lett.* 73, 2932-2934 (1998).
- Carlin.⁹¹ J.F.Carlin, R.Houdré, A.Rudra and M.Ilegems, "Island formation in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 59(23), pp.3018-3020 (1991).
- Carlin.⁹² J.F.Carlin, A.Rudra, R.Houdré, P.Rutenara and M.Ilegems, "Effect of growth interruptions on ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy.", *J.Crys.Growth* 120, pp.155-156 (1992).
- Carlsson.⁹⁸ N.Carlsson, T.Junno, L.Montelius, M.-E.Pistol, L.Samuelson and W.Seifert, "Growth of self-assembled InAs and InAs_xP_{1-x} by metalorganic vapour phase epitaxy.", *J.Crys.Growth* 191, pp.347-356 (1998).
- Chadi.⁸⁴ D.J.Chadi, "Theoretical study of the atomistic structure of silicon (211), (311) and (331) surfaces.", *Phys.Rev.B* 29(2), pp.785-792 (1984).
- Chemla.⁹³ Daniel S.Chemla, "Nonlinear optics in quantum-confined structures", *Physics Today*, June 1993, pp.46-52.
- Chen.⁹⁶ Y.Chen and J.Washburn, "Structural transition in large-lattice-mismatch heteroepitaxy", *Phys.Rev.Let.* 77(19), pp.4046-4049 (1996). Commentaire de I.Daruka and A.-L.Barabási, "Island formation and critical thickness in heteroepitaxy", et réponse de Y.Chen and J.Washburn, *Phys.Rev.Lett.* 78 (15), pp.3027-3028 (1997).
- Cheng.⁹⁸ W.Q.Cheng, Z.Y.Zhong, Y.Wu, Q.Huang and J.M.Zhou, "Multi-sheets In_{0.25}Ga_{0.75}As quantum dots grown by migration-enhanced epitaxy", *J.Crys.Growth* 183, pp.705-707 (1998).
- Cho.⁷⁵ A.Y.Cho et J.R.Arthur, *Proc.Solid State Chem.* 10, pp.157 (1975).
- Cirlin.⁹⁵ G.E.Cirlin, G.M.Guryanov, A.O.Golubok, S.Ya.Tipissev, N.N.Ledentsov, P.S.Kop'ev, M.Grundmann and D.Bimberg, "Ordering phenomena in InAs strained layer morphological transformation on GaAs (100) surface.", *Appl.Phys.Lett.* 67, pp.97-99 (1995).
- Déforges.⁹⁷ O.Déforges, N.Normand, *International Conf. On Image Processing '97*, Santa-Barbara (1997).
- De Matos.⁹⁶ C.De Matos, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, J.Pleumeekers and S.Gosselin, "Photorefractive *p-i-n* diode quantum well operating at 1.55 μm .", *Appl.Phys.Lett.* 68, pp.3576-3578 (1996).
- Desurvire.⁹⁷ E.Desurvire et J.Chesnoy, "Des millions de conversations dans une fibre optique.", *La Recherche* 297, pp.64-71 (avril 1997).

- Dobbs.⁹⁷ H.T. Dobbs, D.D.Vvedensky and A.Zangwill, J.Johansson, N.Carlsson, W.Seifert, "Mean-field theory of quantum dot formation", *Phys.Rev.Lett.* 79(5), pp.897-900 (1997). H.T.Dobbs, D.D.Vvedensky, A.Zangwill, "Theory of quantum dot formation in Stranski-Krastanow systems.", In proceedings of ICFSI 6' (International Conference on the formation of semiconductor interfaces): 1997 June 23-27; *Appl.Surf.Sci* **123**, 646-652 (1998).
- Drucker.⁹³ J.Drucker, "Coherent islands and microstructural evolution", *Phys.Rev.B* 48 (24), pp.18203-18206 (1993).
- Eaglesham.⁹⁰ D.J.Eaglesham and M.Cerullo, "Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si (100)", *Phys.Rev.Lett.* 64(16), pp.1943-1946 (1990).
- Ebiko.⁹⁸ Y.Ebiko et col., "Island size scaling in InAs/GaAs self-assembled quantum dots", *Phys.Rev.Lett.* 80(12), pp.2650-2653 (1998).
- Fiedler.⁸² F.Fiedler, A.Schlachetzki and G.Klein, "Material-selective etching of InP and an InGaAsP alloy.", *J.Materials Science* 17, pp.2911-2918 (1982).
- Folliot.⁹⁸ H.Folliot, S.Loualiche, B.Lambert and V.Drouot, "Effects of interface layers composition and strain distribution on optical transitions of InAs dots on InP", *Phys.Rev.B* 58(16), pp.10700-10703 (1998).
- Fréchengues.⁹⁷ S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert, D.Lemoine, S.Loualiche, A.Le Corre and H.L'Haridon, "Direct correlation of structural and optical properties of InAs self-assembled dots deposited on InP(100)", *Appl.Phys.Lett.* 71(19), pp.2818-2820 (1997).
- Fréchengues.⁹⁸ S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert, N.Bertru, S.Loualiche, A.Le Corre, H.L'Haridon and M.Baudet, "Achievement of highly uniform self-assembled InAs islands on (311)B InP substrates", submitted to *Appl.Phys.Lett.*
- Fréchengues.⁹⁸⁻² S. Fréchengues, V. Drouot, N. Bertru, B. Lambert, S. Loualiche, and A. Le Corre, "Self-organised InAs islands on InP(311)B substrates emitting around 1.55 μm .", MBE-X, Cannes (sept.98), to be published in *J.Cryst. Growth* (1999).
- Gendry.⁹² M.Gendry, V.Drouot, C.Santinelli and G.Hollinger, "Critical thicknesses of highly strained InGaAs layers grown on InP by molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 60 (18), pp.2249-2251 (1992).
- Gendry.⁹⁷ M.Gendry, G.Grenet, Y.Robach, P.Krapf, L.Porte and G.Hollinger, "Role of surface energy and surface reconstructions on the 2D-to-3D growth-mode transition of strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layers on InP(001)", *Phys.Rev.B* 56(15), pp.9271-9274 (1997).
- Gérard.⁹⁵ J.M.Gérard, "Confined electrons and photons, new physics and applications", eds C.Weisbuch and E.Burstein, NATO ASI Series, Plenum, New York (1995).
- Gérard.⁹⁵⁻² J.M.Gérard, J.B.Génin, J.Lefebvre, J.M.Moison, N.Lebouché and F.Barthe, "Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes", *J.Cryst.Growth* 150, pp.351-356 (1995).
- Gérard.⁹⁶ J.M.Gérard, O.Cabrol and B.Sermage, "InAs quantum boxes: highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si.", *Appl.Phys.Lett.* 68(22), pp.3123-3125 (1996).
- Goldstein.⁸⁵ L.Goldstein, F.Glas, J.Y.Marzin, M.N.Charasse and G.Le Roux, "Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices", *Appl.Phys.Lett.* 47, pp.1099-1101 (1985).
- González.⁹⁶ P.P.González-Borrero, D.I.Lubyshev, E.Marega Jr., E.Petitprez and P.Basmaji, "Self-organized InGaAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy on (100), (711)A/B, (511)A/B, (311)A/B, (211)A/B, (111)A/B oriented GaAs", *J.Cryst.Growth* 169, pp.424-428 (1996).
- Grandjean.⁹⁴ N.Grandjean, "Phénomènes de surface en croissance épitaxiale fortement contrainte de (In,Ga)As sur GaAs: relaxation élastique, transition 2D-3D, effet surfactant.", Thèse (1994).

- Grandjean.⁹⁷ N.Grandjean, J.Massies, and O.Tottereau, "Surface segregation in (Ga,In)As/GaAs quantum boxes", *Phys.Rev.B* 55, pp.R10189-R10192 (1997).
- Grilhé.⁹³ J.Grilhé, "Surface instabilities and dislocation formation at free surfaces of stressed solids", *Europhys.Lett.* 23(2), pp.141-146 (1993).
- Grinfel'd.⁸⁶ M.A.Grinfel'd, *Dokl.Akad.Nauk SSSR* 290, p.1358 (1986).
- Groenen.⁹⁶ J.Groenen, A.Mlayah, R.Carles, A.Ponchet, A.Le Corre and S.Salaün, "Strain in InAs islands grown on InP(001) analyzed by Raman spectroscopy", *Appl.Phys.Lett.* 69(7), pp.943-945 (1996).
- Groenen.⁹⁷ J.Groenen, thèse (1997).
- Grundmann.⁹⁵ M.Grundmann, J.Christen, N.N.Ledentsov, J.Böhrer, D.Bimberg, S.S.Ruvimov, P.Werner, U.Richter, U.Gösele, J.Heydenreich, V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, A.E.Zhukov, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots", *Phys.Rev.Lett.* 74, pp.4043-4046 (1995).
- Grundmann.⁹⁵⁻² M.Grundmann, O.Stier and D.Bimberg, "InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons and electronic structure", *Phys.Rev.B* 52(6), pp.11969-11981 (1995).
- Grundmann.⁹⁷ A.A.Darhuber et col., "Lateral and vertical ordering in multilayered self-organized InGaAs quantum dots studied by high resolution x-ray diffraction", *Appl.Phys.lett.* 70(8), pp.955-957 (1997).
- Grütter.⁹² P.Grütter, W.Zimmermann-Edling, and D.Brodbeck, "Tip artifacts of microfabricated force sensors for atomic force microscopy", *Appl.Phys.Lett.* 60(22), p.2741 (1992).
- Guha.⁹⁰ S.Guha, A.Madhukar and K.C.Rajkumar, "Onset of incoherency and defect introduction in the initial stages of molecular beam epitaxial growth of highly strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ on GaAs(100).", *Appl.Phys.Lett.* 57(20), pp.2110-2112 (1990).
- Guo.⁹⁷ S.P.Guo et col., "InAs self-organized quantum dashes grown on GaAs (211)B", *Appl.Phys.Lett.* 70(20), pp.2738-2740 (1997).
- Harris.⁹⁸ L.Harris, D.J.Mowbray, M.S.Skolnick, M.Hopkinson and G.Hill, "Emission spectra and mode structure of InAs/GaAs self-organized quantum dot lasers.", *Appl.Phys.lett.* 73, pp.969-971 (1998).
- Hasegawa.⁹⁸ Y.Hasegawa, H.Kiyama, Q.K.Xue and T.Sakurai, "Atomic structure of faceted planes of three-dimensional InAs islands on GaAs(001) studied by scanning tunneling microscope", *Appl.Phys.Lett.* 72(18), pp.2265-2267 (1998).
- Heinrichsdorff.⁹⁷ F.Heinrichsdorff, M.-H.Mao, N.Kirstaedter, A.Krost, D.Bimberg, A.O.Kosogov and P.Werner, "Room-temperature continuous-wave lasing from stacked InAs/GaAs quantum dots grown by metalorganic chemical vapor deposition", *Appl. Phys.lett.* 71(1), pp.22-24 (1997).
- Henini.⁹⁷ M.Henini, S.Sanguinetti, L.Brusafferri, E.Grilli, M.Guzzi, M.D.Upward, P.Moriarty and P.H.Beton, "Structural and optical characterization of self-assembled InAs-GaAs quantum dots grown on high index surfaces.", *Microelectronics J.* 28, pp.933-938 (1997).
- Hollinger.⁹⁰ G.Hollinger, D.Gallet, M.Gendry, C.Santinelli and P.Viktorovitch, "Structural and chemical properties of InAs layers grown on InP(100) surfaces by arsenic stabilization", *J.Vac.Sci.Technol.B* 8(4), pp.832-837 (1990).
- Houdré.⁹³ R.Houdré, J.F.Carlin A.Rudra, J.Ling and M.Ilegems,"Formation and optical properties of islands in ultra-thin InAs/InP quantum wells grown by chemical beam epitaxy", *Superlattice And Microstructures* 13(1), pp.67-70(1993).
- Imamura.⁹⁵ K.Imamura, Y.Sugiyama, Y.Nakata, S.Muto and N.Yokoyama, "New optical memory structure using self assembled quantum dots.", *Jpn.J.Appl.Phys.* 34, pp.L1445-L1447 (1995).

- Ito.⁹⁵ Hiroshi Ito and Tadao Ishibashi, "Selective and nonselective chemical etching of InGa(As)P/GaAs heterostructures.", *J.Electrochem.Soc.*, 142 (10), pp.3383-3386 (1995).
- Jesson.⁹³ D.E.Jesson, S.J.Pennycook, J.-M.Baribeau and D.C.Houghton, "Direct imaging of surface cusp evolution during strained layer epitaxy and implications for strain relaxation.", *Phys.Rev.Lett.* 71, pp.1744-1747 (1993).
- Jesson.⁹⁴ D.E.Jesson, S.J.Pennycook, J.-M.Baribeau and D.C.Houghton, "Surface stress, morphological development, and dislocation nucleation during SixGe1-x epitaxy.", *Scanning Microscopy* 8(4), pp.849-857 (1994).
- Jesson.⁹⁵ D.E.Jesson, K.M.Chen, S.J.Pennycook, T.Thundat and R.J.Warmack, "Crack-like sources of dislocation nucleation and multiplication in thin films", *Science* 268, pp.1161-1163 (1995).
- Jesson.⁹⁶ D.E.Jesson, K.M.Chen, S.J.Pennycook, T.Thundat and R.J.Warmack, "Morphological evolution of strained films by cooperative nucleation", *Phys.Rev.Lett.* 77(7), pp.1330-1333 (1996).
- Jesson.⁹⁶⁻² D.E.Jesson, K.M.Chen and S.J.Pennycook, "Kinetic pathways in strain relaxation in the Si-Ge system", *MRS Bulletin*, pp. 31-37 (april 1996).
- Jesson.⁹⁸ D.E.Jesson, G.Chen, K.M.Chen and S.J.Pennycook, "Self-limiting growth of strained faceted islands.", *Phys.Rev.Lett.* 80, pp.5156-5159 (1998).
- Joyce.⁹⁷ B.A.Joyce, S.L.Sudijono, J.G.Belk, H.Yamaguchi, X.M.Zhang, H.T.Dobbs, A.Zangwill, D.D.Vvedensky and T.S.Jones, "A scanning tunneling microscopy-reflection high energy electron diffraction-rate equation study of the molecular beam epitaxial growth of InAs on GaAs (001), (110) and (111)A — Quantum dots and two-dimensional modes, *Jpn.J.Appl.Phys.* 36, pp.4111-4117 (1997).
- Kash.⁹⁰ K.Kash, "Optical properties of III-V semiconductor quantum wires and dots", *J. of Luminescence* 46, 69-82 (1990).
- Keller.⁹¹ D.Keller, *Surf.science* 253, pp.353-364 (1991).
- Kern.⁷⁸ Raymond Kern, "Croissance épitaxiale (aspects topologiques et structuraux)", *Bull. Minéral.* 101, pp.202-233 (1978).
- Khor.⁹⁷ K.E.Khor and S.Das Sarma, "Surface morphology and quantum dot self-assembly in growth of strained-layer semiconducting films", *J.Vac.Sci.Technol.B* 15(4), pp.1051-1055 (1997).
- Kirstaedter.⁹⁴ N.Kirstaedter, N.N.Ledentsov, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, S.S.Ruvimov, M.V.Maximov, P.S.Kop'ev, Zh.I.Alferov, U.Richter, P.Werner, U.Gösele and J.Heydenreich, "Low threshold, large T_0 injection laser emission from (InGa)As quantum dots.", *Electron.Lett.* 30, pp.1416-1417 (1994).
- Kitabayashi.⁹⁵ H.Kitabayashi and T.Waho, "Atomic force microscope observation of the initial stage of InAs growth on GaAs substrates", *J. of Crystal Growth*, 150, pp.152-157 (1995).
- Klockenbrink.⁹⁴ R.Klockenbrink, E.Peiner, H.-H.Weihmann and A.Schlachetzki, "Wet chemical etching of alignment V-grooves in (100) InP through titanium or In_{0.53}Ga_{0.47}As masks.", *J.Electrochem.Soc.*, 141 (6), pp.1594-1599 (1994).
- Kobayashi.⁹⁶ N.P.Kobayashi, T.R.Ramachandran, P.Chen, and A.Madhukar, "*In situ*, atomic force microscope studies of the evolution of InAs three-dimensional islands on GaAs(001)." *Appl.Phys.Lett.* 68(23), pp.3299-3301 (1996).
- Krapf.⁹⁷ P.Krapf, Y.Robach, M.Gendry and L.Porte, "Role of step curvature in the stabilization of coherently strained epitaxial structures", *Phys.Rev.B* 55(16), pp.R10229-R10232 (1997).
- Krapf.⁹⁷⁻² P.Krapf, thèse (1997).
- Lacombe.⁹⁷ D.Lacombe et A.Ponchet, communications privées (1997-1998).

- Lacombes.⁹⁸ D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert and A.Le Corre, "Elastic relaxation phenomena in compressive Ga_{0.2}In_{0.8}As grown on (001) and (113)B InP at low lattice mismatch.", MBE-X, Cannes (sept.98), to be published in J.Cryst. Growth (1999).
- Lacombes.⁹⁸⁻² D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert and A.Le Corre, "Formation of low index facets in Ga_{0.2}In_{0.8}As and InAs islands on a InP(113)B substrate.", submitted to Appl.Phys.Lett. (1998).
- Lagally.⁹³ M.G.Lagally and D.E.Savage, "Quantitative electron diffraction from thin films", MRS Bulletin, Jan.1993.
- Lambert.⁹⁸ B. Lambert, A. Le Corre, V. Drouot, H.L'Haridon, and S. Loualiche, "High photoluminescence efficiency of InAs/InP self-assembled quantum dots emitting at 1.5-1.6 μm", Semicon. Sci. Technol. 13, p. 143 (1998).
- Lebouché.⁹⁷ N.Lebouché-Girard, A.Rudra and E.Kapon, "Growth and transformation of ultra-thin InAs/InP layers obtained by chemical beam epitaxy", J.Crys.Growth 175/176, pp.1210-1216 (1997).
- Le Corre.⁹⁵ A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün and A.Ponchet, Proceedings of the VIII Euro-MBE Conference, Sierra Nevada – Granada, Spain, March 1995.
- Le Corre.⁹⁷ A.Le Corre, C.De Matos, H.L'Haridon, S.Gosselin and B.Lambert, "Photorefractive multiple quantum well device using quantum dots as trapping zones.", Appl.Phys.Lett. 70, pp.1575-1577 (1997).
- Ledentsov.⁹⁷ N.N.Ledentsov, N.Kirstaedter, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, I.V.Kochnev, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Three-dimensional arrays of self-ordered quantum dots for laser applications.", Microelectronics Journal 28, pp.915-931 (1997).
- Lee.⁹⁷ H.Lee, R.Lowe-Webb, W.Yang and P.C.Sercel, "Formation of InAs/GaAs quantum dots by molecular beam epitaxy: reversibility of the islanding transition.", Appl.Phys.Lett. 71, pp.2325-2327 (1997).
- Lee.⁹⁸ Hao Lee, R.Lowe-Webb, W.Yang and P.C.Sercel, "Determination of the shape of self-organized InAs/GaAs quantum dots by reflection high energy electron diffraction.", Appl.phys.lett. 72(7), pp.812-814 (1998).
- Leonard.⁹³ D.Leonard, M.Krishnamurthy, C.M.Reaves, S.P.Denbaars and P.M.Petroff, "Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces", Appl.Phys.Lett. 63, pp.3203-3205 (1993).
- Leonard.⁹⁴ D.Leonard, K.Pond and P.M.Petroff, "Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs", Phys.Rev.B 50 (16), pp.11687-11692 (1994).
- Leon.⁹⁵ R.Leon, S.Fafard, D.Leonard, J.L.Merz and P.M.Petroff, "Visible luminescence from semiconductor quantum dots in large ensembles", Appl.Phys.Lett.67(4), pp.521-523 (1995).
- Li.⁹¹ Y. Li and S. M. Lindsay, "Polystyrene latex particules as a size calibration for the atomic force microscope", Rev. Sci. Instrum. 62, p. 2630 (1991).
- Madhukar.⁹⁴ A.Madhukar, Q.Xie, P.Chen and A.Konkar, "Nature of strained InAs three-dimensional island formation and distribution on GaAs(100).", Appl.Phys.Lett. 64, pp.2727-2729 (1994).
- Marchand.⁹⁷ H.Marchand, P.Desjardins, S.Guillon, J.E.Paultre, Z.Bougrioua, R.Y.-F.Yip and R.A.Masut, "Metalorganic vapor phase epitaxial growth and structural characterization of self-assembled InAs nanometer-sized islands on InP(001).", J.Electr.Mat. 26, pp.1205-1213 (1997).
- Marchand.⁹⁷⁻² H.Marchand, P.Desjardins, S.Guillon, J.E.Paultre, Z.Bougrioua, R.Y.-F.Yip and R.A.Masut, "Metalorganic vapor phase epitaxial growth of coherent self-assembled InAs nanometer-sized islands on InP(001).", Appl.Phys.Lett. 71, pp.527-529 (1997).
- Marti.⁹¹ A.Marti Ceschin and J.Massies, J.Crys.Growth 114, pp.693-699 (1991).

- Marzin.⁹⁴ J.Y.Marzin, J.-M.Gérard, A.Izraël, D.Barrier and G.Bastard, "Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs", *Phys.Rev.Lett.* 73, pp.716-719 (1994).
- Marzin.⁹⁴⁻² J.Y.Marzin and G.Bastard, "Calculation of the energy levels in InAs/GaAs quantum dots", *Solid State Comm.* 92, pp.437-442 (1994).
- Massies.⁹³ J.Massies and N.Grandjean, "Oscillation of the lattice relaxation in layer-by-layer epitaxial growth of highly strained materials", *Phys.Rev.Lett.* 71(9), pp.1411-1414 (1993).
- Maximov.⁹⁸ M.V.Maximov, Yu.M.Shernyakov, A.F.Tsatsul'nikov et al., "High-power continuous-wave operation of a InGaAs/AlGaAs quantum dot laser.", *J.Appl.Phys.* 83, pp.5561-5563 (1998).
- Mirin.⁹⁶ R.Mirin, A.Gossard and J.Bowers, "Room temperature lasing from InGaAs quantum dots", *Electron.Lett.* 32, pp.1732-1734 (1996).
- Mo.⁹⁰ Y.W.Mo, D.E.Savage, B.S.Swartzentruber and M.G.Lagally, "Kinetic pathway in Stranski-Krastanov growth of Ge on Si(001).", *Phys.Rev.Lett.* 65, pp.1020-1023 (1990).
- Moison.⁹⁴ J.M.Moison, F.Houzay, F.Barthe, L.Leprince, E.André and O.Vatel, "Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs", *Appl.Phys.Lett.* 64(2), pp.196-198 (1994).
- Montelius.⁹³ L.Montelius and J.O.Tegenfeldt, "Direct observation of the tip in scanning probe microscopy", *Appl.Phys.Lett.* 62, pp.2628-2630 (1993).
- Nabetani.⁹⁴ Y.Nabetani, T.Ishikawa, S.Noda and A.Sasaki, "Initial growth stage and optical properties of a three-dimensional InAs structure on GaAs", *J.Appl.Phys.* 76 (1), pp.347-351 (1994).
- Nakata.⁹⁷ Y.Nakata, Y.Sugiyama, T.Futatsugi and N.Yokoyama, "Self-assembled structures of closely stacked InAs islands grown on GaAs by molecular beam epitaxy", *J.Crys.Growth* 175, pp.713-719 (1997).
- Neave.⁸³ J.H.Neave, B.A.Joyce, P.J.Dobson and N.Norton, *Appl.Phys.A* 31, 1 (1983).
- Neves.⁹³ Silmara das Neves and Marco-A. de Paoli, "A quantitative study of chemical etching of InP." *J.Electrochem.Soc.*, 140 (9), pp.2599-2603 (1993).
- Nishi.⁹⁶ K.Nishi, R.Mirin, D.Leonard, G.Medeiros-Ribeiro, P.M.Petroff and A.C.Gossard, "Structural and optical characterization of InAs/InGaAs self-assembled quantum dots grown on (311)B GaAs", *J.Appl.Phys.* 80(6), pp.3466-3470 (1996).
- Nishi.⁹⁷ K.Nishi, T.Anan, A.Gomyo, S.Kohmoto and S.Sugou, "Spontaneous lateral alignment of In_{0.25}Ga_{0.75}As self-assembled quantum dots on (311)B GaAs grown by gas source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 70(26), pp.3579-3581 (1997).
- Nishi.⁹⁸ K.Nishi, M.Yamada, T.Anan, A.Gomyo and S.Sugou, "Long-wavelength lasing from InAs self-assembled quantum dots on (311) B InP.", *Appl.Phys.Lett.* 73, pp.526-528 (1998).
- Notzel.⁹⁴ R.Nötzel, J.Temmyo and T.Tamamura, "Self-organization of boxlike microstructures on GaAs (311)B surfaces by metalorganic vapor-phase epitaxy", *Jpn.J.Appl.Phys.* 33, pp.L275-L278 (1994).
- Notzel.⁹⁴⁻² R.Nötzel, T.Fukui and H.Hasegawa, "Atomic force microscopy study of strained InGaAs quantum disks self-organizing on GaAs (n11)B substrates", *Appl.Phys.Lett.* 65(22), pp.2854-2856 (1994).
- Notzel.⁹⁵ R.Nötzel et col., "Ordered quantum dots: atomic force microscopy study of a new self-organizing growth mode on GaAs (311)B substrates", *Jpn.J.Appl.Phys.* 34, pp.L 872-L 875 (1995).
- Notzel.⁹⁵⁻² R.Nötzel, J.Temmyo, A.Kozen, T.Tamamura, T.Fukui and H.Hasegawa, "Self organization of strained GaInAs microstructures on InP(311) substrates grown by metalorganic vapor-phase epitaxy.", *Appl.Phys.Lett.* 66, pp.2525-2527 (1995).

- Orr.⁹² B.G.Orr, D.Kessler, C.W.Snyder and L.Sander, "A model for strain-induced roughening and coherent island growth", *Europhys.Lett.* 19, pp.33-38 (1992).
- Oshinowo.⁹⁴ J.Oshinowo, M.Nishioka, S.Ishida and Y.Arakawa, "Highly uniform InGaAs/GaAs quantum dots (~15nm) by metalorganic chemical vapor deposition", *Appl.Phys.Lett.* 65, pp.1421-1423 (1994).
- Oshinowo.⁹⁴⁻² J.Oshinowo, M.Nishioka, S.Ishida and Y.Arakawa, "Highly uniform InGaAs/GaAs quantum dots (~15nm) by MOVPE on GaAs", *J.Crys.Growth* 145, pp.986-987 (1994).
- Ozanyan.⁹⁷ K.B.Ozanyan, P.J.Parbrook et al., "*In situ* monitoring of the surface reconstructions on InP(001) prepared by molecular beam epitaxy.", *J.Appl.Phys.* 82(1), pp.474-476 (1997).
- Ozasa.⁹⁷ K.Ozasa et col., *Appl.Phys.Lett.* 71(6), pp. 797-799 (1997).
- P.A.⁹⁸ P.A., "Le multiplexage en longueur d'onde optique va se banaliser.", *Electronique International* 302, p.26 (avril 1998).
- Pak.⁹⁸ Kangsa Pak et col., *J.Crys.Growth* 186, pp.21-26 (1998).
- Panish.⁸⁵ M.B.Panish, H.Temkin and S.Sumski, *J.Vac.Sci.Technol. B* 3 (1985).
- Parker.⁸⁵ "The technology and physics of molecular beam epitaxy" edited by E.H.C.Parker, Plenum Press, New York (1985).
- Partovi.⁹⁵ A.Partovi, "Photorefractive multiple quantum well materials and applications to signal processing", *Optical Materials* 4, pp.330-338 (1995).
- Pehlke.⁹⁶ E.Pehlke, N.Moll and M.Scheffler, "The equilibrium shape of InAs quantum dots grown on a GaAs(001) substrate.", 23rd International Conference on The Physics of Semiconductors, Berlin July 21-26 (1996), edited by M.Scheffler and R.Z.Immermann, World Scientific, Singapore.
- Pehlke.⁹⁷ E.Pehlke, N.Moll, A.Kley and M.Scheffler, "Shape and Stability of quantum dots", *Appl.Phys.A* 65(6), p.526 (1997).
- Pelekanos.⁹⁵ N.T.Pelekanos, B.Deveaud, C.Guillemot, J.M.Gérard, P.Gravey, B.Lambert, A.Le Corre and J.E.Viallet, "Fast photorefractive materials using quantum wells.", *Optical Materials* 4, pp.348-353 (1995).
- Petroff.⁹⁴ P.M.Petroff and S.P.DenBaars, "MBE and MOCVD growth and properties of self-assembling quantum dot arrays in III-V semiconductor structures", *Superlatt. and Microstructures* 15, pp.15-21 (1994).
- Pistol.⁹⁵ M.-E.Pistol, N.Carlsson, C.Persson, W.Seifert and L.Samuels, "Observation of strain effects in semiconductor dots depending on cap layer thickness", *Appl.Phys.Lett.* 67(10), pp.1438-1440 (1995).
- Platen.⁹⁷ J.Platen et col., "Geometric and electronic structure of molecular beam epitaxy-prepared GaAs (112) and (113) surfaces.", *Microelectronics Journal* 28, pp.969-976 (1997).
- Ponchet.⁹⁵ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert and S.Salaün, " Relationship between self-organization and size of InAs islands on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy", *Appl.Phys.Lett.* 67, pp.1850-1852 (1995).
- Ponchet.⁹⁶ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, J.Groenen and R.Carles, "Structural aspects of the growth of InAs islands on InP substrate", *Solid State Electronics* 40, pp.615-619 (1996).
- Ponchet.⁹⁷ A.Ponchet, communication privée, note n°1, février 1997.
- Ponchet.⁹⁸ A.Ponchet, A.Le Corre, H.L'Haridon, B.Lambert, S.Salaün, L.Durand, D.Alquier and D.Lacombe, "The effect of the growth procedure and the InAs amount on the formation of strain-induced islands in the InAs/InP(001) system.", *Appl.Surf.Sc.* 123, 751 (1998).
- Ponchet.⁹⁸⁻² A.Ponchet, D.Lacombe, L.Durand, D.Alquier and J.-M.Cardonna, "Elastic energy of strained islands: contribution of the substrate as a function of the island aspect ratio and inter-island distance", *Appl.Phys.Lett.* 72(23), pp.2984-2986 (1998).

- Priester.⁹⁵ C.Priester and M.Lannoo, "Origin of self-assembled quantum dots in highly mismatched heteroepitaxy", *Phys.Rev.Lett.* 75(1), pp.93-96 (1995).
- Priester.⁹⁷ C.Priester and M.Lannoo, "Growth aspects of quantum dots", *Current Opinion in Solid State & Materials Science* 2, pp.716-721 (1997).
- Ramachandran.⁹⁷ T.R.Ramachandran, R.Heitz, P.Chen and A.Madhukar, "Mass transfert in Stranski-Krastanow growth of InAs on GaAs.", *Appl.Phys.Lett.* 70, pp.640-642 (1997).
- Ratsh.⁹⁴ C.Ratsh, A.Zangwill and P.Smilauer, "Scaling of heteroepitaxial island sizes", *Surf.Sci.* 314, pp.L937-L942 (1994).
- Regreny.⁹⁷ P.Regreny, "Préparation et évaluation de substrats d'InP adaptés à différents types d'épitaxie.", Thèse (1997).
- Rosenauer.⁹⁷ A.Rosenauer, U.Fisher, D.Gerthsen and A.Förster, "Composition evaluation of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Stranski-Krastanow-island structures by strain state analysis", *Appl.Phys.Lett.* 71(26), pp.3868-3870 (1997).
- Rudra.⁹⁴ A.Rudra, R.Houdré, J.F.Carlin and M.Ilegems, "Dynamics of island formation in the growth of InAs/InP quantum wells", *J.Crys.Growth* 136, pp.278-281 (1994).
- Ruvimov.⁹⁵ S.Ruvimov, P.Werner, K.Scheerschmidt, U.Gösele, J.Heydenreich, U.Richter, N.N.Ledentsov, M.Grundmann, D.Bimberg, V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, P.S.Kop'ev and Zh.I.Alferov, "Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix.", *Phys.Rev.B* 51(20), pp.14766-14769 (1995).
- Saito.⁹⁷ H.Saito, K.Nishi, S.Sugou and Y.Sugimoto, "Controlling polarization of quantum-dot surface-emitting lasers by using structurally anisotropic self-assembled quantum dots.", *Appl.Phys.Lett.* 71, pp.590-592 (1997).
- Sasaki.⁹⁶ A.Sasaki, "Initial growth layers and critical thicknes of InAs heteroepitaxy on GaAs substrates.", *J.Crys.Growth* 160, pp.27-35 (1996).
- Schneider.⁹⁰ R.P.Schneider, Jr. and B.W.Wessels, "InAs/InP strained single quantum wells grown by atmospheric pressure organometallic vapor phase epitaxy.", *Appl.Phys.Lett.* 57, pp.1998-2000 (1990).
- Schujman.⁹⁷ S.B.Schujman et col. *Surf.Sci.* 385, pp.L965-L970 (1997).
- Seifert.⁹⁴ W.Seifert, D.Hessman, X.Liu and L.Samuelsan, "Formation of interface layers in $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ heterostructures: A re-evaluation using ultrathin quantum wells as a probe.", *J.Appl.Phys.* 75, pp.1501-1510 (1994).
- Seifert.⁹⁶ W.Seifert, N.Carlsson, M.Miller, M.-E.Pistol, L.Samuelsan and L.R.Wallenberg, "In situ growth of quantum dot structures by the Stranski-Krastanow growth mode", *Prog.Crystal Growth and Charact.* 33, pp.423-471 (1996).
- Seifert.⁹⁷ W.Seifert, , N.Carlsson, J.Johansson, M.-E.Pistol, L.Samuelsan, "In situ growth of nano-structures by metal-organic vapour phase epitaxy", *J. of Crystal Growth* 170, pp.39-46 (1997).
- Shoji.⁹⁶ H.Shoji, Y.Nakata, K.Mukai, Y.Sugiyama, M.Sugawara, N.Yokoyama and H.Ishikawa, "Room temperature CW operation at the ground state of self-formed quantum dot lasers with multi-stacked dot layer.", *Electron.Lett.* 32, pp.2023-2024 (1996).
- Shchukin.⁹⁵ V.A.Shchukin, N.N.Ledentsov, P.S.Kop'ev and D.Bimberg, "Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands.", *Phys.Rev.Lett.* 75, pp.2968-2971 (1995).
- Snyder.⁹¹ C.W.Snyder, B.G.Orr, D.Kessler and L.M.Sander, "Effect of strain on surface morphology in highly strained InGaAs films.", *Phys.Rev.Lett.* 66, pp.3032-3035 (1991).
- Snyder.⁹² C.W.Snyder, J.F.Mansfield and B.G.Orr, "Kinetically controlled critical thickness for coherent islanding and thick highly strained pseudomorphic films of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ on GaAs(100).", *Phys.Rev.B* 46, pp.9551-9554 (1992).
- Solomon.⁹⁵ G.S.Solomon, J.A.Trezza and J.S.Harris Jr., "Substrate temperature and monolayer coverage effects on epitaxial ordering of InAs and InGaAs islands on GaAs.", *Appl.Phys.Lett.* 66, pp.991-993 (1995).

- Solomon.⁹⁷ G.S.Solomon, S.Komarov, J.S.Harris and Y.Yamamoto, "Increased size uniformity through vertical quantum dot columns", *J.Crys.Growth* 175, pp.707-712 (1997).
- Spencer.⁹⁷ B.J.Spencer and J.Tersoff, "Equilibrium shapes and properties of epitaxially strained islands", *Phys.Rev.Lett.* 79 (24), pp.4858-4861 (1997).
- Tabata.⁹⁴ A.Tabata, T.Benyattou, G.Guillot, M.Gendry, G.Hollinger and P.Viktorovitch, "Optical properties of InAs/InP surface layers formed during the arsenic stabilization process.", *J.Vac.Sci.Technol.B* 12(4), pp.2299-2304 (1994).
- Takahashi.⁹⁷ M.Takahashi et col. "Growth and fabrication of strained-alyer InGaAs/GaAs quantum well lasers grown on GaAs(311)A substrates using only a silicon dopant.", *J.Appl.Phys.* 82(9), pp. 4551-4557 (1997).
- Taskinen.⁹⁷ M.Taskinen, M.Sopanen, H.Lipsanen, J.Tulkki, T.Tuomi and J.Ahopelto, "Self-organized InAs islands on (100) InP by metalorganic vapor-phase epitaxy.", *Surf.Sci.* 376, pp.60-68 (1997).
- Tersoff.⁹³ J.Tersoff and R.M.Tromp, "Shape transition in growth of strained islands: spontaneous formation of quantum wires", *Phys.Rev.Lett.* 70 (18), pp.2782-2785 (1993).
- Tersoff.⁹⁴ J.Tersoff and F.K.Le Goues, "Competition relaxation mechanisms in strained layers", *Phys.Rev.Lett.* 72 (22), pp. 3570-3573 (1994).
- Ustinov.⁹⁷ V.M.Ustinov, A.Yu.Egorov, A.R.Kovsh et al., "Low-threshold injection lasers based on vertically coupled quantum dots.", *J.Cryst.Growth* 175/176, pp.689-695 (1997).
- Ustinov.⁹⁸ V.M.Ustinov et al., "Effect of matrix on InAs self-organized quantum dots on InP substrate", *Appl.Phys.Lett.* 72, pp.362-364 (1998).
- Ustinov.⁹⁸⁻² V.M.Ustinov, A.E.Zhukov, A.Yu.Egorov et al., "Low threshold quantum dot injection laser emitting at 1.9 μm .", *Electron.Lett.* 34, pp.670-672 (1998).
- Utzmeier.⁹⁶ T.Utzmeier, P.A.Postigo, J.Tamayo, R.García and F.Briones, "Transition from self-organized InSb quantum-dots to quantum dashes", *Appl.Phys.Lett.* 69(18), pp. 2674-2676 (1996).
- Wang.⁹⁸ B.Wang, F.Zhao, Y.Peng, Z.Jin, Y.Li and S.Liu, "Self-organized InAs quantum dots formation by As/P exchange reaction on (001) InP substrate.", *Appl.Phys.Lett.* 72, pp.2433-2435 (1998).
- Weisbuch.⁹³ C.Weisbuch, "Fundamental research and device applications of molecular beam epitaxy grown heterostructures", *J.Vac.Sci.Technol. A* 12(4), pp.1191-1200 (1994).
- Woggon.⁹⁷ U.Woggon, W.Langbein, J.M.Hvam, A.Rosenauer, T.Remmele, and D.Gerthsen, "Electron microscopic and optical investigations of the indium distribution in GaAs capped $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ islands.", *Appl.Phys.Lett* 71, pp.377-379 (1997).
- Wu.⁹⁷ Warren Wu et col., "Atom-resolved scanning tunneling microscopy of vertically ordered InAs quantum dots", *Appl. Phys.lett.* 71(8), pp.1083-1085 (1997).
- Xie.⁹⁵ Q.Xie, P.Chen, A.Kalburge, T.R.Ramachandran, A.Nayfonov, A.Konkar and A.Madhukar, "Realization of optically active strained InAs island quantum boxes on GaAs(100) via molecular beam epitaxy and the role of island induced strain fields.", *J.Crys.Growth* 150, pp.357-363 (1995).
- Zinke-Allmang.⁹² M.Zinke-Allmang, L.C.Feldman and M.H.Grabow, "Clustering on surfaces", *Surf.Sci.Reports* 16, pp.377-463 (1992).

Liste des publications

- S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert, D.Lemoine, S.Loualiche, A.Le Corre and H.L'Haridon, "Direct correlation of structural and optical properties of InAs self-assembled dots deposited on InP(100).", *Appl.Phys.Lett.* 71 (1997), p. 2818-2820.
- S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert, S.Loualiche and A.Le Corre, "Self-organized InAs islands on InP(311)B substrates emitting around 1.55 μm .", Tenth International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Cannes 1998, à paraître dans *J.Crys.Growth* (1998).
- D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert, A.Le Corre, "Elastic relaxation phenomena in compressive $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ grown on (001) and (113)B InP at low lattice mismatch.", Tenth International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Cannes 1998, à paraître dans *J.Crys.Growth* (1998).
- D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert, A.Le Corre, "Formation of low index facets in $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ and InAs islands on a InP(113)B substrate.", soumis à *Appl.Phys.Lett.*
- S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert, N.Bertru, S.Loualiche, A.Le Corre, H.L'Haridon, D.Lacombe and A.Ponchet, "Evidence of self-organization and lateral quantum confinement in (Ga)InAs dots grown on (311)B InP substrates.", soumis à *Semicond.Sci.Technol.*
- S. Fréchengues, N. Bertru, V. Drouot, B. Lambert, S. Robinet, S. Loualiche, D. Lacombe and A. Ponchet, " Wavelength tuning of InAs quantum dots grown on (311)B InP", soumis à *Appl.Phys.Lett.*

Liste des conférences

- V.Drouot, S.Fréchengues, B.Lambert, S.Loualiche, A.Le Corre, H.L'Haridon and M.Baudet, "Growth study of self-assembled $GaxIn_{1-x}As$ islands on InP.", The 9th. International Conference of InP and Related Materials, IEEE, M.A., 1996 p. 463-466.
- S.Fréchengues, V.Drouot, B.Lambert, D.Lemoine, S.Loualiche, A.Le Corre and H.L'Haridon, "Propriétés géométriques des îlots quantiques mesurées par AFM et comparaison avec la photoluminescence.", 6èmes Journées Nationales de Microélectronique et Optoélectronique III-V, CNRS, Chantilly, 1997 p.34.
- V.Drouot, S.Fréchengues, B.Lambert, S.Loualiche, A.Le Corre and H.L'Haridon, "Etude de la croissance d'îlots auto organisés $GaxIn_{1-x}As$ sur InP.", 6èmes Journées Nationales de Microélectronique et Optoélectronique III-V, CNRS, Chantilly, 1997 p.36.
- S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert, S.Loualiche, A.Le Corre, " Self assembled InAs islands on InP (100) and (311)B: influence of the substrate orientation on the island distribution and organisation.", Tenth International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Cannes 1998.
- D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert, A.Le Corre, "Elastic relaxation phenomena in compressive $Ga_{0.2}In_{0.8}As$ grown on (001) and (113)B InP at low lattice mismatch.", Tenth International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Cannes 1998.
- N.Bertru, S.Fréchengues, V.Drouot, O.Dehease, S.Loualiche et B.Lambert, "Réalisation d'empilements d'îlots quantiques émettant à $1,55\mu m$ avec une grande intensité lumineuse.", 7èmes Journées Nationales de Microélectronique et Optoélectronique III-V, CNRS, 1998.
- D.Lacombe, A.Ponchet, S.Fréchengues, V.Drouot, N.Bertru, B.Lambert, A.LeCorre, "De la croissance 2D à la croissance 3D dans le système GaInAs/InP", 7èmes Journées Nationales de Microélectronique et Optoélectronique III-V, CNRS, 1998.
- S.Hinooda, N.Bertru, V.Drouot, S.Fréchengues, B.Lambert, S.Loualiche, X.Marie, T.Armand, N.McEntee, "Capture des porteurs dans les îlots quantiques InAs/InP.", 7èmes Journées Nationales de Microélectronique et Optoélectronique III-V, CNRS, 1998.

Résumé:

Nous nous sommes intéressés à la croissance et aux propriétés de couches contraintes de (Ga)InAs relaxées élastiquement, pour des compositions en gallium comprises entre 0 et 20 %, déposées sur un substrat InP orienté (001) et (113)B dans un bâti d'épitaxie par jets moléculaires à sources gazeuses. Sur InP(001) la relaxation est progressive au cours de l'interruption de croissance qui suit la croissance bidimensionnelle. La photoluminescence a montré que la couche d'InAs passe d'abord par une morphologie en « plateaux » de 2 à 8 MC d'épaisseur. Ces plateaux présentent l'intérêt de localiser les porteurs jusqu'à température ambiante et de limiter la diffusion latérale des porteurs, ce qui maintient une forte intensité de luminescence à température ambiante. Les plateaux d'InAs sont équivalents à des puits 2D indépendants les uns des autres. Si on laisse évoluer les plateaux (si ils ne sont pas tout de suite encapsulés par une couche d'InP), des îlots apparaissent. Ils ont été observés par microscopie électronique en transmission et microscopie à force atomique. Les îlots d'InAs/InP sont plus gros, moins homogènes et en densité plus faible que pour le système InAs/GaAs avec lequel nous les avons comparés. La mise au point d'une nouvelle technique de caractérisation nous a permis d'attribuer la largeur du pic de luminescence à la distribution des hauteurs des îlots. Lorsque la concentration en Ga augmente (désaccord paramétrique inférieur et épaisseur nominale plus importante), la morphologie des couches ternaires de (Ga)InAs évolue vers des fils d'orientation bien déterminée. Nous avons interprété ces différents résultats à l'aide d'un modèle énergétique et décrit le phénomène de relaxation élastique. Pour favoriser la nucléation des îlots nous nous sommes alors intéressés à l'orientation (113)B. Son attrait provient d'une moindre augmentation du terme d'énergie de surface lors de la transition 2D-3D qui est alors favorisée. Nous avons obtenu des îlots d'InAs de tailles inférieures et plus homogènes, présentant des facettes de bas indices. Leur densité est contrôlée par l'épaisseur nominale et peut atteindre des valeurs élevées pour lesquelles ils s'organisent dans le plan. Grâce à une interruption de croissance sous flux de phosphore, nous avons ajusté la longueur d'onde d'émission de la photoluminescence à 1.55 μm , qui est utilisée pour les télécommunications par fibre optique.

DISCIPLINE: Physique et opto-électronique

MOTS-CLES: épitaxie – microscopie à force atomique – photoluminescence – InAs/InP – transition élastique 2D-3D – îlots quantiques.

Realization and study of (Ga)InAs nanostructures grown by epitaxy on InP substrates

We have studied the structural and optical properties of self-assembled (Ga)InAs quantum dots grown by gas source molecular beam epitaxy on (001) and (113)B InP substrates.

The elastic relaxation process (i.e. the 2D to 3D growth mode transition) of the strained (Ga)InAs layer on the (001) orientation, evolves continuously from the two-dimensional growth to the formation of 2–8 monolayer high platelets, and then to quantum dots if the growth is interrupted for a sufficient time. In the platelets, the in-plane diffusion of the electrons is limited and the non-radiative recombination at room temperature is reduced. The high optical efficiency of the platelets could make them suitable candidates for the active zone of a laser, but the control of their size and emission wavelength is very difficult.

The InAs/InP quantum dots are twice as big as the InAs/GaAs ones and the dot density is lower. Using a new characterization technique, we demonstrate that the photoluminescence linewidth is directly related to the distribution of the dot sizes. The dots also are good traps for carriers up to the room temperature and have been successfully used in the trapping zone of photorefractive devices. For (Ga)InAs layers with different gallium concentrations, we have observed an elongation of the dots along the $[1\bar{1}0]$ crystallographic direction, which is enhanced by a lower lattice mismatch and a higher nominal thickness of the layers.

High index (113)B InP substrates favor the elastic relaxation of the strain and gives rise to a higher dot density. The resulting quantum dots are smaller with a narrower size distribution than on the (100) InP substrate and are defined by low index facets. The dot density increases linearly with the amount of InAs deposited and at high density the dots tend to form a square array. Finally, we have exposed the dots to a phosphorous overpressure and reduced the dot size through arsenic/phosphorous exchange. We have achieved a reproducible luminescence emission wavelength at 1.55 μm , which is of great interest for optical telecommunications.

KEYWORDS: quantum dots – epitaxy – InAs/InP – elastic relaxation – atomic force microscopy – photoluminescence.