

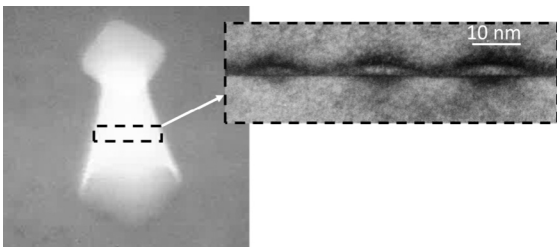
1994 : NAISSANCE D'UN ATOME ARTIFICIEL POUR LA PHOTONIQUE QUANTIQUE

Jean-Michel GERARD*

Université Grenoble Alpes, CEA, Grenoble INP, IRIG, PHELIQS, Grenoble, France

En 1994, Ingénieur DGA/DRET mis à disposition du Centre National d'Etude des Télécommunications de Bagnaux

*jean-michel.gerard@cea.fr



<https://doi.org/10.1051/photon/20412632>

Article publié en accès libre sous les conditions définies par la licence Creative Commons Attribution License CC-BY (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0>), qui autorise sans restrictions l'utilisation, la diffusion, et la reproduction sur quelque support que ce soit, sous réserve de citation correcte de la publication originale.

La photonique quantique exploite aujourd'hui très largement les BQs comme « atomes artificiels », capables de générer à la demande des impulsions lumineuses à un photon. Ces nanostructures semiconductrices sont aujourd'hui quasi-exclusivement obtenues par auto-assemblage en cours de croissance épitaxiale. Cependant, cette méthode découverte par accident au CNET Bagnaux en 1984 [1] a mis une dizaine d'années pour s'imposer par rapport aux approches plus classiques basées sur

En 1994, l'équipe du CNET Bagnaux animée par Jean-Yves Marzin a présenté pour la première fois le spectre d'émission d'une boîte quantique unique de bonne qualité, obtenue par croissance épitaxiale. L'observation d'une raie d'émission très fine a mis en lumière le caractère discret des états électroniques de cette nanostructure, lui conférant ainsi un statut « d'atome artificiel ». Cette expérience a stimulé un foisonnement d'études spectroscopiques sur les boîtes quantiques (BQ), a assuré la prééminence de cette méthode de fabrication particulière et ouvert la voie à l'exploitation de ces atomes artificiels en photonique quantique.

la nanofabrication en salle blanche. Après avoir rappelé le contexte scientifique de l'époque, je présenterai une expérience clef qui a fait advenir les BQs au statut d'atome artificiel : l'étude optique de BQs isolées, menée par Jean-Yves Marzin et ses collaborateurs en 1993-94 [2]. L'observation d'une raie de fluorescence ultrafine, plus de 10 fois plus étroite que la limite imposée par la distribution thermique des électrons dans un semiconducteur massif, a mis en lumière pour la première fois le caractère discret des états électroniques confinés dans ces nanostructures.

À LA QUÊTE DES BOÎTES QUANTIQUES

Le développement des nanostructures semiconductrices à partir des années 1970 a été stimulé par les perspectives d'application aux diodes lasers. Les méthodes de croissance épitaxiale couche par couche ont permis de fabriquer des puits quantiques de haute qualité et des lasers à double hétérostructure performants. Deux concepts importants ont été introduits au début des années 80. Les laboratoires Sandia et le CNET Bagnaux ont introduit vers 1982 les puits quantiques contraints, fabriqués à partir de

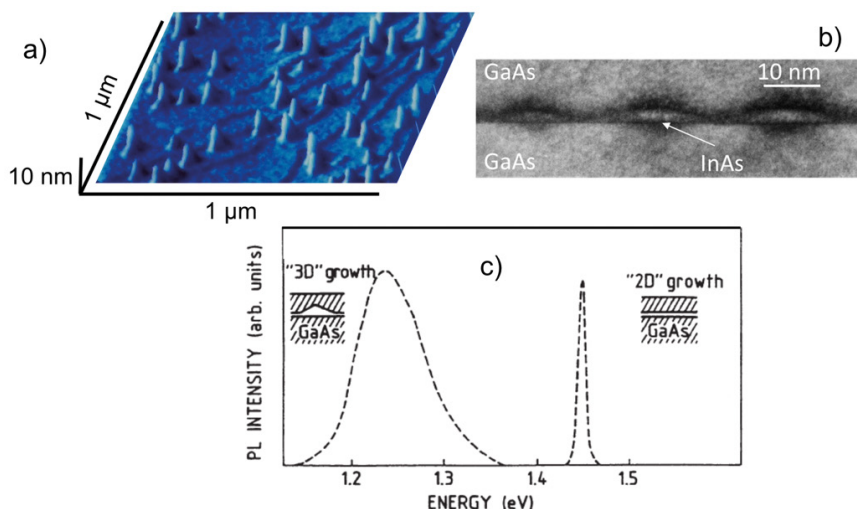


Figure 1. a) Étude par microscopie à force atomique d'une couche d'InAs d'épaisseur moyenne 0.6 nm déposée sur GaAs par épitaxie par jets moléculaires, montrant la formation d'îlots de taille Nanométrique (J.M. Moison, CNET 1994). b) Vue en coupe par microscopie électronique en transmission des inclusions riches en indium obtenues après encapsulation des îlots d'InAs par une couche de GaAs (A. Ponchet, CNRS 1995). c) Spectres de photoluminescence à 10K obtenus pour deux couches minces d'InAs dans GaAs formant un puits quantique (croissance bidimensionnelle ou « 2D ») ou un plan d'inclusions (croissance « 3D »).

matériaux semi-conducteurs présentant une légère différence (de l'ordre de 1%) entre leurs paramètres de maille cristalline [3]. L'empilement sans défaut de couches minces reste possible, la différence de maille cristalline étant accommodée par une déformation élastique de la couche « puits ». L'introduction de puits contraints a permis d'élargir la gamme de longueur d'onde couverte par les lasers à puits quantiques et de tirer parti de modifications de la structure de bande induites par la contrainte. Les diodes lasers commerciales, qui sont massivement employées aujourd'hui notamment dans les réseaux de communication à haut débit sont quasi exclusivement des diodes à puits quantiques contraints.

Cette même année 1982, Arakawa et Sakaki ont introduit le concept très différent de laser à BQs [4], qui était appelé à surclasser le laser à puits quantique, si tant est que les boîtes soient de taille très similaires (voir insert 1). Cette proposition fondatrice a stimulé une intense activité de recherche ciblant la fabrication de BQs en salle blanche, en s'appuyant sur les méthodes et outils éprouvés de la microélectronique. A titre d'exemple, Jean-Yves Marzin et Alice

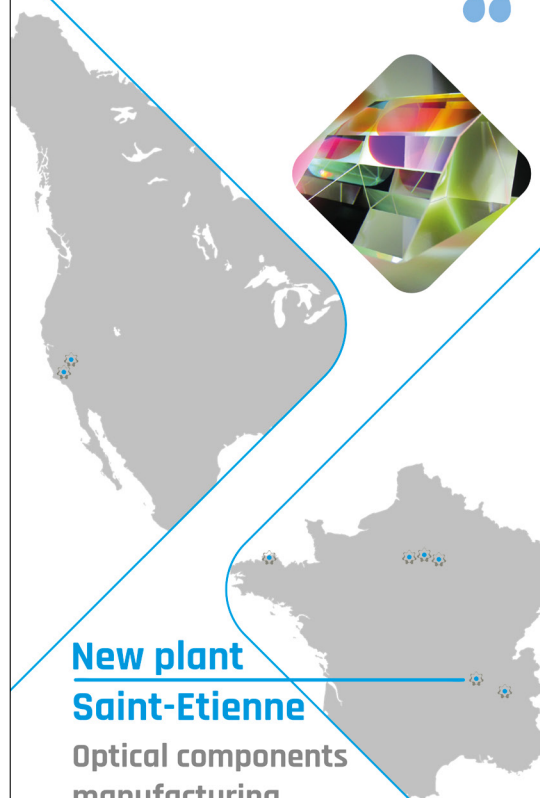
Izraël ont étudié au CNET des boîtes de 20nm de taille latérale obtenues en utilisant la lithographie électronique pour fabriquer un masque sur une structure à puits quantique, puis la gravure ionique réactive pour définir les bords latéraux des boîtes quantiques [5]. L'interdiffusion des matériaux formant un puits quantique ou encore la croissance localisée sur des substrats structurés à l'échelle nanométrique ont aussi permis de fabriquer des boîtes quantiques. En dépit des efforts consacrés de 1985 à 1994 environ, ces approches de fabrication « top-down » n'ont pas débouché, d'une part du fait de fluctuations trop grandes des tailles latérales, d'autre part du fait de la médiocrité des propriétés optiques des boîtes obtenues.

À partir de 1995 environ, l'auto-assemblage en cours de croissance épitaxiale devait s'imposer comme la méthode de choix pour la fabrication des BQs. C'est la seule méthode employée à ce jour au plan industriel pour fabriquer des composants à BQs, tels que les diodes lasers et les sources de photons uniques. Le principe de ce procédé est illustré par la Figure 1, dans le cas du système le mieux connu, InAs/GaAs. InAs et GaAs présentent

Manufacturer of precision optics

8 subsidiaries
250 employees

“ HEF Photonics, today on 2 continents and tomorrow with you around the world. ”



New plant Saint-Etienne

Optical components manufacturing
1000 m²

Expertises:

- Optical manufacturing
- Optical Coating (single layer to complex stack)
- Photolithography (masking, lift off)
 - Laser texturing
- Vacuum and Materials

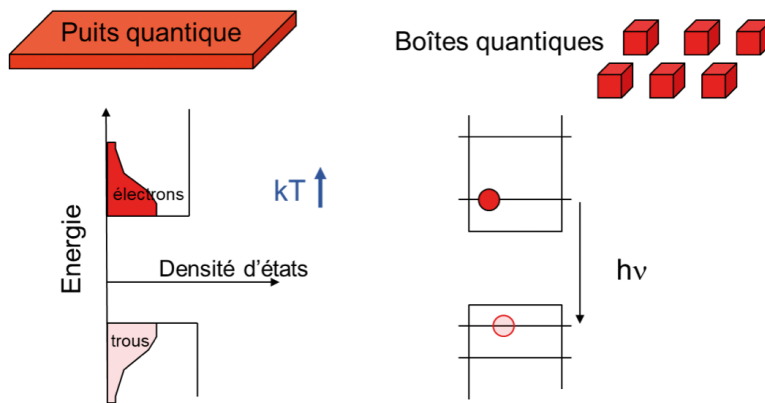
un désaccord de paramètre de maille très élevé, voisin de 7% en valeur relative. Quand on dépose par épitaxie par jet moléculaire (EJM) une couche fine d'InAs sur GaAs, on observe la formation spontanée d'îlots d'InAs de taille nanométrique sur la surface. Ce changement de morphologie permet de relaxer efficacement l'énergie élastique

de la couche d'InAs, sans pour autant créer des défauts structuraux tels que les dislocations d'interface. On peut ensuite recouvrir ces îlots en déposant à nouveau du GaAs. Bien que cette étape modifie la forme, la taille et même la composition des îlots du fait d'une redistribution des atomes d'indium, on obtient des inclusions nanométriques

riches en indium, avec une bande interdite plus petite que celle du matériau GaAs qui les entoure et qui constituent par conséquent des BQs.

Ce procédé de fabrication de BQs par auto-assemblage a été découvert par accident par Goldstein, Glas, Marzin et leurs collaborateurs en 1984 [1]. A l'époque, ils voulaient explorer les limites du système contraint InGaAs/GaAs et ont cherché à insérer des couches fines d'InAs pur dans GaAs. Ils ont observé pour certaines couches trop épaisses le passage à un mode de croissance tridimensionnel avec formation d'îlots en surface et ont été les premiers à remarquer la présence d'une raie d'émission spécifique, intimement liée à la présence d'inclusions riches en indium dans la structure. Dans leur article consacré à cette découverte, les auteurs soulignent que ces inclusions sans défauts structuraux présentent un grand intérêt pour l'étude des propriétés (intrinsèques) de BQs de bonne qualité. *A contrario*, ils n'ont pas mentionné de perspectives d'application. La raie d'émission associée aux BQs présentant une largeur spectrale (~100nm) bien supérieure à celle d'un puits quantique, il semblait exclu qu'on puisse les utiliser efficacement comme milieu actif dans un laser. De ce fait, l'importance de cette découverte n'a pas été immédiatement reconnue par la communauté scientifique.

L'INTÉRÊT DES BOÎTES QUANTIQUES TEL QUE VU EN 1982



Un puits quantique est constitué par une couche semiconductrice de quelques nanomètres d'épaisseur entourée d'un matériau de plus grande bande interdite, non représenté sur le schéma ci-dessus. Dans ce système bidimensionnel, les électrons et les trous sont confinés selon la direction verticale, mais libres de se mouvoir dans le plan du puits. Quand on injecte des électrons et des trous, par exemple en vue d'une application de diode laser, ceux-ci se distribuent dans les bandes d'états du puits selon la loi de Fermi-Dirac. Une toute petite partie des paires électron-trou injectées, situées au niveau du gap du puits, sont effectivement utiles pour donner du gain. En 1982, Arakawa et Sakaki ont proposé de remplacer le puits par un ensemble de boîtes quantiques. Du fait du confinement dans les trois directions de l'espace, les états permis sont discrets et bien séparés à l'échelle de l'énergie thermique kT (25 meV à 300K) si toutes les dimensions des BQs sont plus petites que 10 nm typiquement. Dans ce cas, les premières paires électron-trou injectées ne peuplent que les états de plus basse énergie. Si les BQs sont toutes de forme et de taille identique, toutes les paires injectées donnent du gain à une même fréquence ν , correspondant au gap commun à toutes les BQs, avec un impact positif sur les principales propriétés de la diode laser (courant de seuil, stabilité en température, gain différentiel et modulation en fréquence). En pratique, la dispersion en taille des BQs doit être très petite (quelques pour cents) pour que la courbe de gain soit plus piquée pour un plan de BQs que pour un puits. Les BQs n'ont trouvé de ce fait que quelques applications de niche dans le domaine des lasers.

ÉTUDE D'UNE BOÎTE QUANTIQUE UNIQUE

Nous avons conduit en 1992-1993 une étude approfondie de l'auto-assemblage des BQs, qui nous a permis de mettre en lumière le rôle crucial des paramètres dynamiques (par exemple la vitesse de croissance, qui joue *a contrario* un rôle très mineur dans le cas des puits quantiques), de rendre ce procédé parfaitement reproductible, et de diminuer un peu leur largeur spectrale en améliorant l'uniformité de taille des BQs [6]. Pour nous permettre d'entrevoir ce que seraient les propriétés d'un système de BQs de tailles et de formes parfaitement

identiques, Jean-Yves Marzin a alors proposé d'étudier les BQs à l'échelle individuelle, par spectroscopie de microphotoluminescence confocale. Le principe de l'expérience est illustré par la Figure 2. Nous disposions à l'époque de plans de BQs de haute densité surfacique (environ 400 BQs par μm^2), ne permettant pas de sélectionner un seul émetteur au sein de la tache de focalisation du faisceau excitateur. Pour réduire le nombre de BQs, nous avons défini des plots gravés de section carrée et de taille latérale L variable. Pour les plots les plus larges ($L=5\mu\text{m}$) contenant environ 10000 BQs, nous observons une raie large, très similaire à celle du plan de BQs (à l'exception près d'une structuration à courte échelle qui n'est pas

associée à du bruit). On observe un spectre radicalement différent pour un plot contenant en moyenne 100 BQs ($L=0.5\mu\text{m}$) ; il devient discret, constitué de raies dont la largeur en fréquence (limitée pour la plupart par la résolution du spectromètre) est au moins 10 fois plus faible que l'énergie thermique kT (1 meV à la température de l'échantillon, ici $T=10\text{K}$). Pour des plots encore plus petits ($L=0.15\mu\text{m}$) contenant en moyenne 8 BQs, on observe quelques raies fines seulement, à des fréquences variables d'un plot à l'autre. Enfin, en étudiant un grand nombre de ces petits plots, on peut construire un histogramme de distribution des fréquences d'émission, qui reproduit assez fidèlement la forme de la raie d'émission de l'ensemble

de BQs. On peut donc conclure que, au moins dans les conditions de l'expérience, chaque BQ émet une seule raie, très fine, à une fréquence qui lui est spécifique. La largeur du spectre d'ensemble est donc purement inhomogène, c'est-à-dire associée à la variation de fréquence d'émission d'une inclusion à une autre.

Cette expérience, très simple sur le plan conceptuel, est très riche d'enseignements quant à la dimensionnalité de l'émetteur isolé. L'observation de raies très fines à l'échelle de kT ne peut s'expliquer que si l'émission est induite par une transition entre des états électroniques discrets d'électrons et de trous. Une inclusion riche en indium se comporte donc bien comme une BQ (autrement dit comme un ●●●

JEAN-YVES MARZIN, BÂTISSEUR ET PIONNIER

Jean-Yves le bâtisseur est bien connu de notre communauté. Son charisme et sa longévité en tant que directeur de l'Institut des Sciences de l'Ingénierie et des Systèmes du CNRS (actuellement CNRS Ingénierie) ayant rendu légendaires sa figure et son écharpe rouge. Son rôle est reconnu également pour la structuration des nanotechnologies françaises à travers une forte action en faveur du réseau RENATECH de centrales de nanotechnologies et lors de la fusion du L2M et du Laboratoire de Bagnex du CNET, pour créer le Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, puis dans celle du LPN et de l'Institut d'Électronique Fondamentale qui a donné naissance au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies. Sa vision transdisciplinaire est probablement un peu moins connue. J'ai pu l'apprécier lors de la création du réseau C'Nano (aujourd'hui Unité d'Appui et de Recherche du CNRS) qu'il a favorisée aux côtés de Jean-Louis Robert, un autre cher collègue dont on regrette la disparition en 2023.

L'article de Jean-Michel Gérard nous rappelle une tout autre facette. Le Jean-Yves pionnier, lors de la première observation de boîtes quantiques auto-assemblées en semiconducteurs III-V et de la première mise en évidence de leur émission optique. Ces premières ont pour origine son travail de fond sur les puits quantiques contraints en semiconducteur.

Nous avons été nombreux, les collègues du CNET Bagnex, à avoir bénéficié de son programme de calcul des niveaux électroniques des puits quantiques, programme que nous avons utilisé pour comprendre leur réponse électronique et optique ou pour optimiser tel ou telle fonctionnalité photonique. Il y a aussi l'autre Jean-Yves, indissociable, celui qui a traversé toutes ces époques. L'empêchement de tourner en rond. Celui dont l'œil pétillant devançait la question qui secouait, dérangeait, voire énervait, la question qui dans tous les cas obligeait à s'interroger davantage, à mieux se positionner et à parfaire l'argumentaire. J'aime me souvenir de Jean-Yves sous toutes ces facettes et je sais ne pas être le seul. Nous serons nombreux, les 23 et 24 janvier 2025, aux journées organisées au C2N pour célébrer l'épopée de boîtes quantiques épitaxiées et la mémoire de Jean-Yves. Au nom de tous ceux qui ont eu le plaisir et le privilège de côtoyer Jean-Yves, j'adresse à son épouse Nakita et à leurs enfants Anahita, Azadeh et Sina nos profondes sympathies.

Ariel Levenson
Directeur de recherche CNRS au C2N
De 1985 à 1997 ingénieur au Centre
National d'Études des Télécommunications
de Bagnex, puis chercheur au LPN
Président sortant de la SFO

puits de potentiel) pour les électrons comme pour les trous. La fluctuation de la fréquence d'émission d'une inclusion à une autre en apporte une autre preuve, puisque celle-ci peut très naturellement être attribuée, sur la base de modélisations simples, aux variations de l'énergie de confinement quantique en fonction de la taille de l'inclusion. Enfin, l'absence de transitions optiques additionnelles à plus haute énergie, dans la gamme attendue pour les transitions entre états excités, prouve la relaxation très rapide des électrons et des trous vers leurs états fondamentaux respectifs. Ce point a été mis en exergue en [2], car un blocage de la relaxation, tel que prédit à l'époque par des modèles simples de relaxation assistée par phonons, aurait ruiné tout espoir d'application aux diodes laser ou autres composants photoniques.

UN HÉRITAGE FÉCOND

Dans un contexte où les études sur les BQs fabriquées par voie « top-down » n'avaient pas permis l'observation des raies fines attendues pour des BQs, cette expérience a largement contribué à établir l'auto-assemblage en cours de croissance épitaxiale comme la méthode de choix pour fabriquer des BQs de bonne qualité et explique au moins en partie l'abandon rapide des approches « top-down » à cette époque. L'étude spectroscopique de BQs à l'échelle individuelle est devenue un vaste champ expérimental. Grâce aux expériences conduites par des centaines d'équipes de par le monde, les propriétés des boîtes quantiques sont aujourd'hui connues très finement. D'autres propriétés intrinsèques ont été mises en évidence (par exemple la dépendance de la fréquence d'émission à l'état de charge de la BQ) ainsi que les perturbations induites sur la BQ par son environnement électrostatique, phononique ou de spin. De par ses états électroniques discrets, une BQ peut être vue comme un atome artificiel, qui présente des atouts uniques pour reproduire, dans un milieu solide, des expériences

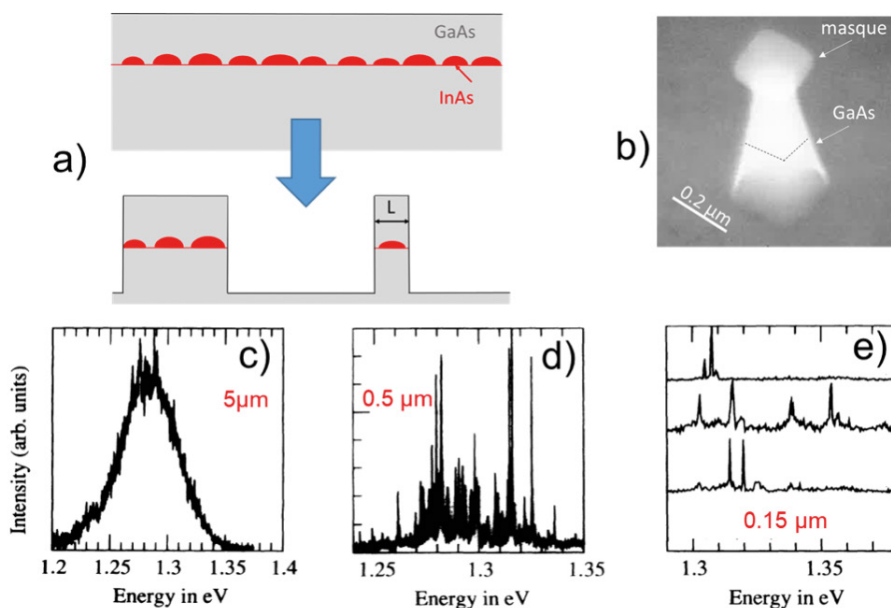


Figure 2. Illustration schématique de la méthode employée pour isoler quelques BQs : des plots sont gravés à partir d'une hétérostructure contenant un plan dense de BQs. b) Vue au microscope à balayage d'un des plus petits plots gravés. c)-e) Spectres de microphotoluminescence obtenus à 10 K pour des tailles latérales de plot décroissantes.

habituellement réalisées avec des atomes isolés. Dès 1995, l'équipe de Bagnoux a lancé des études d'électrodynamique quantique sur des BQs dans des microcavités optiques semiconductrices, inspirées par celles de Serge Haroche sur les atomes de Rydberg. Un tel atome artificiel permet aussi, comme l'atome de calcium isolé utilisé par Alain Aspect dans ses expériences pionnières, de générer des impulsions à un photon. En 2001, ces

études devaient déboucher à Bagnoux sur la démonstration de la première source brillante et monomode de photons uniques à la demande, constituée par une boîte unique dans une cavité de type micro-pilier à miroir de Bragg [7]. Le domaine de l'optique quantique avec des boîtes quantiques s'est considérablement développé depuis, et connaît depuis peu ses premières applications industrielles avec l'essaimage de la start-up Quandela par le CNRS. ●

RÉFÉRENCES

- [1] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, A.M. Charasse, G. LeRoux, *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099 (1985)
- [2] J.Y. Marzin, J.M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 716 (1994)
- [3] J.Y. Marzin and E.V.K. Rao, *Appl. Phys. Lett.* **43**, 560 (1983)
- [4] Y. Arakawa et H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982)
- [5] J.Y. Marzin, A. Izraël, L. Birotheau, *Solid-state Electron.* **37**, 1341 (1994)
- [6] J.M. Gérard, J.B. Génin, J. Lefebvre, J.M. Moison, N. Lebouché, F. Barthe, *J. Crystal Growth* **150**, 351 (1995)
- [7] E. Moreau, I. Robert, J.M. Gérard, I. Abram, L. Manin and V. Thierry-Mieg, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2865 (2001)