

Étude par spectroscopie pompe-sonde de la dynamique des porteurs de charges dans des nanostructures d'InAs/InAlAs/InP

par

Hugo Bourque

mémoire présenté au Département de physique en vue
de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ DES SCIENCES
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, avril 2005

Résumé

Ce mémoire présente les principales étapes de la mise en place d'un système de spectroscopie pompe-sonde en transmission ainsi que les résultats expérimentaux obtenus à l'aide de cette méthode sur des structures à fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP. Les dimensions de ces fils sont de quelques nanomètres seulement. Ces structures sont réalisées à l'aide d'une méthode de croissance appelée auto-organisée et sont optimisées pour la conception de dispositifs opto-électroniques pour les télécommunications par fibre optique à $1,55 \mu m$. Nous avons considéré trois séries d'échantillons afin d'étudier les effets i) de la pression d'arsenic durant la croissance, ii) de l'épaisseur des barrières d'InAlAs et iii) du dopage, sur la dynamique des porteurs en excès. Pour tous les échantillons, nous avons observé des temps de capture/relaxation des porteurs très courts (<7 ps) que nous avons attribués à la forte densité des fils. Les temps de recombinaison de ces porteurs varient sensiblement d'un échantillon à l'autre. Les deux premières séries d'échantillons permettent de constater que la pression d'arsenic et l'épaisseur des barrières ont un effet notable sur le temps de recombinaison. Ceci est probablement lié à l'importance plus ou moins grande des défauts dans les structures. Les temps de recombinaison les plus longs observés pour chaque série (380 et 680 ps) indiquent qu'il existe une pression optimale ($5,5 \times 10^{-6}$ Torr) et une épaisseur de barrières optimale (10 nm) pour lesquelles les structures possèdent moins de défauts. D'autre part, les résultats des cinétiques obtenues

pour les échantillons dopés montrent deux temps de recombinaison, dont un très rapide (21 ps) qui est probablement lié à la présence de défauts d'un autre type qui agissent comme centres de recombinaison non-radiatifs.

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier mon directeur Denis Morris pour m'avoir offert ce projet de maîtrise intéressant et m'avoir guidé durant toute la durée de ce travail, autant par son expertise au laboratoire que par ses connaissances théoriques.

Je souligne la participation importante de Bassem Salem, qui a effectué des mesures de photoluminescence sur le même type d'échantillons à l'INSA de Lyon et qui fut d'une aide précieuse lors de l'interprétation des résultats. Merci également à Michel Gendry de l'École Centrale de Lyon pour les échantillons d'îlots quantiques.

Le travail en laboratoire est impossible sans l'aide de techniciens. Je tiens à remercier Stéphane Melançon en particulier pour son aide précieuse et sa disponibilité impressionnante. Merci aussi à Jacques Corbin, André Paradis, Marcel Zakorzermy pour leur expertise. Je dois également souligner la participation de nos collègues du CHUS, le professeur Daniel Houde, pour le système d'acquisition et Tiberius Brastaviceanu pour le programme d'acquisition.

Merci à mes parents pour leur soutien constant dans tout ce que j'entreprends et leur confiance en moi inébranlable.

Enfin, les derniers mais certainement pas les moindres, mes amis et collègues du département de physique qui ont toujours été là pour m'aider. Ce travail aurait été définitivement plus difficile sans eux. Alain, François, Charles, Stéphane, Marie-Christine, Dany, Marie-Ève, Jacques, Jonathan, Émilie, Alex, Aurélie et tout les autres, merci !

Table des matières

Résumé	i
Remerciements	iii
Table des figures	xi
Introduction	1
1 Théorie	5
1.1 Effet du confinement	5
1.1.1 Matériau massif	7
1.1.2 Puits quantique	8
1.1.3 Fil quantique	8
1.1.4 Boîte quantique	9
1.2 Dynamique des porteurs	11
1.2.1 Capture et relaxation	11
1.2.2 Recombinaison	13
1.3 Spectroscopie pompe-sonde	14

2	Description des matériaux	17
2.1	Fabrication	17
2.1.1	Croissance auto-assemblée	20
2.1.2	Mode de croissance Stranski-Krastanov	20
2.2	Échantillons étudiés	22
3	Méthode expérimentale	27
3.1	Préparation des échantillons	27
3.2	Caractérisation expérimentale des échantillons	29
3.3	Spectroscopie pompe-sonde	30
3.3.1	Source d'impulsions courtes	31
3.3.2	Montage optique et échantillon	34
3.3.3	Système de détection	35
4	Résultats et discussion	38
4.1	Mesures préliminaires	39
4.1.1	Colorant	39
4.1.2	GaAs	41
4.2	Îlots quantiques d'InAs/InAlAs/InP	43
4.2.1	Photoluminescence	44
4.2.2	Premiers résultats de spectroscopie pompe-sonde	45
4.2.3	Optimisation des paramètres expérimentaux	47

4.3	Étude des échantillons d'îlots quantiques	49
4.3.1	Effet de la pression d'arsenic	50
4.3.2	Effet de l'épaisseur des barrières d'InAlAs	54
4.3.3	Étude en fonction de la longueur d'onde de l'impulsion sonde . . .	59
4.3.4	Échantillons dopés	65
4.3.5	Étude en fonction de la température	69
	Conclusion	72
	Annexe A : Procédure de lissage des données expérimentales	75
	Bibliographie	81

Table des figures

1.1	La formation d'un puits quantique entre deux semiconducteurs de bande interdite plus grande que celle du semiconducteur central	6
1.2	Densité d'états et énergie propre en fonction de la dimensionnalité.	10
1.3	Quelques processus de relaxation et de recombinaison des porteurs dans une nanostructure semiconductrice après excitation à une énergie supérieure à la bande interdite.	12
2.1	Description des trois modes de croissance possibles lors de l'hétéro-épitaxie de semiconducteurs	21
2.2	Structure générale des échantillons étudiés	23
2.3	Images AFM de boîtes et de fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP[1]	24
2.4	Image de microscopie électronique à transmission en coupe transverse d'une structure empilée de fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP. (Source : O. Marty, LENAC, Université de Lyon 1)	25
2.5	Principales caractéristiques physiques des échantillons de fils quantiques étudiés.	26
3.1	Schéma du montage de photoluminescence	30
3.2	Schéma du montage de spectroscopie pompe-sonde	32
3.3	Principe de conversion de fréquences dans l'OPA	34

3.4	Échantillon collé sur un support circulaire et fixé sur un support à trois axes.	36
3.5	Recouvrement des faisceaux pompe et sonde sur l'échantillon	36
4.1	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde sur le colorant HITC (pompe 750 nm, sonde 800 nm).	41
4.2	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde sur un substrat de GaAs aminci pour des longueurs d'onde d'impulsion sonde de 850 et 870 nm	43
4.3	Principe de la mesure de spectroscopie pompe-sonde. L'impulsion pompe possède une énergie supérieure à la bande interdite des barrières et l'impulsion sonde est en résonance avec le niveau fondamental des fils.	44
4.4	Photoluminescence à 300 K sur les échantillons d'îlots quantiques élaborés à différentes pression d'arsenic.	45
4.5	Photoluminescence à 300 K sur les échantillons d'îlots quantiques possédants des barrières d'InAlAs de hauteurs différentes ou un dopage.	46
4.6	Premier résultat de spectroscopie pompe-sonde sur un échantillon d'îlots quantique.	47
4.7	Effet de la puissance de l'impulsion pompe sur la cinétique pour l'échantillon d'îlots quantique M744.	48
4.8	Effet de la puissance de l'impulsion sonde sur la cinétique sur un échantillon d'îlots quantique M930.	49
4.9	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M930 (Pression d'arsenic de $7,5 \times 10^{-6}$ Torr.).	51
4.10	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M937 (Pression d'arsenic de $3,5 \times 10^{-6}$ Torr.).	51
4.11	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M938 (Pression d'arsenic de $5,5 \times 10^{-6}$ Torr.).	52

4.12	Photoluminescence à 8 K sur les échantillons élaborés à différentes pression d'arsenic. (M930 : $7,5 \times 10^{-6}$ Torr, M937 : $3,5 \times 10^{-6}$ Torr, M938 : $5,5 \times 10^{-6}$ Torr) [2].	55
4.13	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M749 (Barrières de 5 nm).	56
4.14	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M704 (Barrières de 10 nm).	57
4.15	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M744 (Barrières de 15 nm).	57
4.16	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M744 pour une impulsion sonde de 1200 nm.	59
4.17	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M744 pour une impulsion sonde de 1500 nm.	60
4.18	Modèle à 2 niveaux d'énergie dans les fils quantiques pour l'échantillon M744.	62
4.19	Photoluminescence à 8 K sur l'échantillon M744[2].	63
4.20	Modèle à 2 familles de fils quantiques pour l'échantillon M744.	65
4.21	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M499 (dopé n).	66
4.22	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M500 (dopé p).	66
4.23	Discontinuité de bande de conduction et de valence pour le système InAs/InAlAs.	68
4.24	Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M930 à 77 et 300 K.	70
4.25	Illustration des niveaux d'énergie des défauts et des fils quantiques.	71
4.26	Système à trois niveaux simplifié modélisant les temps de capture/relaxation et de recombinaison des porteurs dans les échantillons de fils quantique.	76

4.27	Lissage d'une cinétique sur l'échantillon M930 à l'aide de l'équation 4.9 .	79
4.28	Lissage indépendant de la montée et de la descente sur l'échantillon M930.	80

Introduction

Les techniques modernes de fabrication de dispositifs semiconducteurs permettent d'atteindre un niveau de miniaturisation très important. Des structures ayant des dimensions typiques de quelques nanomètres sont désormais fabriquées de façon routinière. Cette miniaturisation des composants électroniques permet l'intégration d'un plus grand nombre de composants sur un espace restreint, ce qui permet aussi d'augmenter l'efficacité des dispositifs et de diminuer les coûts de production. La réduction de la taille des structures offre aussi la possibilité de concevoir des dispositifs nouveaux tirant profit des effets quantiques qui surviennent lorsque les structures atteignent certaines dimensions critiques. En confinant les électrons dans une ou plusieurs dimensions, l'énergie accessible aux porteurs de charges et la densité d'état sont modifiées considérablement. Des études théoriques sur les effets du confinement des porteurs dans de telles nanostructures ont donné l'espoir d'obtenir des dispositifs plus performants. Par exemple, en utilisant des boîtes quantiques comme milieu actif de lasers, on s'attend à obtenir un gain plus élevé, un courant seuil plus faible et une plus faible influence de la température sur les propriétés du laser[3][4].

On fabrique aujourd'hui des nanostructures à confinement tridimensionnel (boîtes quantiques) ou bidimensionnel (fils quantiques) par une technique appelée auto-assemblage. La fabrication de telles structures se fait par épitaxie à jets moléculaires (MBE) ou par

épitaxie en phase vapeur de composés organo-métalliques (MOCVD). Dans certaines conditions particulières, des îlots se forment spontanément sur la surface lorsqu'un matériau est déposé sur un substrat qui possède un paramètre de maille plus faible que celui du matériau déposé. En contrôlant bien les conditions de croissance, on parvient à maîtriser la plupart des paramètres structuraux des îlots quantiques ainsi formés.

Les boîtes quantiques d'InAs/GaAs figurent parmi les plus étudiées depuis quelques années. Les paramètres de fabrication sont bien contrôlés et on parvient à produire des lasers émettant à $1,3 \mu m$ avec un courant seuil autour de $13 A/cm^2$ [5]. Cependant, il est impossible d'atteindre $1,55 \mu m$, la longueur d'onde optimale pour les télécommunications, avec ce système. En effet, pour atteindre cette longueur d'onde, la taille des boîtes doit être augmentée. La différence de paramètre de maille est assez importante entre l'InAs et le GaAs (7%) et il est très difficile de déposer suffisamment d'InAs sans créer de dislocations dans le matériaux contraint. Il faut donc se tourner vers d'autres matériaux. Le système InAs/InP possède une différence de paramètre de maille de 3% et permet de fabriquer des nanostructures émettant à $1,55 \mu m$. Par contre, l'auto-organisation dans le cas de l'InAs/InP est plus difficile à contrôler, justement en raison de la différence de paramètre de maille plus faible que dans le cas de l'InAs/GaAs.

Étant donné les difficultés de fabrication, très peu de groupes de recherche travaillent sur l'InAs/InP et ses propriétés sont encore peu connues. Parmi les propriétés importantes, citons les temps de capture, de relaxation et de recombinaison des électrons et des trous dans les nanostructures. Ce sont des phénomènes ultra-rapides (de l'ordre de la picoseconde) qui conditionnent les performances des dispositifs. Pour les étudier, il faut utiliser des outils offrant une résolution temporelle plus grande que les temps caractéristiques de ces phénomènes. Une façon efficace d'y parvenir est d'utiliser des impulsions

laser ultra-courtes (inférieures à 100 femtosecondes) pour exciter l'échantillon pendant un bref instant et ensuite étudier le comportement des porteurs en fonction du temps par différentes méthodes. Une de ces méthodes est la spectroscopie pompe-sonde. Elle consiste à exciter l'échantillon à l'aide d'une impulsion courte et à sonder, à l'aide d'une seconde impulsion, l'effet de l'impulsion pompe. On mesure en général l'intensité de l'impulsion sonde transmise à travers l'échantillon. Puisque l'intensité transmise dépend de la population des niveaux d'énergie, en contrôlant le délai entre les impulsions pompe et sonde, on parvient à suivre l'évolution des porteurs en fonction du temps.

L'objectif de ce travail était de mettre en place un système de spectroscopie pompe-sonde et de l'utiliser pour étudier des échantillons de fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP. La mise en place d'un tel système suppose l'utilisation d'une source d'impulsions courtes, d'un montage optique et d'un système de détection et d'acquisition. Plusieurs mesures préliminaires sur des systèmes plus simples ont été nécessaires avant d'entreprendre l'étude de la dynamique des porteurs dans les nanostructures. L'effet des paramètres de croissance et des paramètres structuraux tels que la pression d'arsenic, l'épaisseur des barrières et le dopage a été étudiés.

Dans le premier chapitre de ce mémoire on retrouve quelques notions théoriques qui serviront à interpréter les résultats obtenus. L'effet du confinement sur l'énergie et la densité d'état est expliqué à l'aide d'un modèle simple appliqué au matériau massif, au puits quantique, au fil quantique et à la boîte quantique. On décrit également quelques processus de capture, de relaxation et de recombinaison des porteurs dans des îlots quantiques. Des notions importantes pour l'interprétation des résultats de spectroscopie pompe-sonde sont également introduites dans ce chapitre.

Le second chapitre est consacré à la description des échantillons. On y présente d'abord

quelques méthodes de fabrication de boîtes quantiques en insistant sur la croissance auto-assemblée et le mode Stranski-Krastanov. Les principales conditions de croissance et les paramètres structuraux des échantillons utilisés sont présentés en plus de certains aspects uniques aux îlots quantiques d'InAs/InAlAs/InP.

Au chapitre 3, la méthode expérimentale utilisée pour obtenir les résultats est décrite. La préparation des échantillons est exposée brièvement. Le montage de photoluminescence utilisé pour caractériser les échantillons est exposé. Finalement, les composants importants du montage de spectroscopie pompe-sonde sont décrits en détails.

Les résultats font l'objet du chapitre 4. On y résume les principales étapes qui ont permis de mettre en place le système de spectroscopie pompe-sonde et on présente les premiers résultats qui ont servi à caractériser le système. Les résultats de l'étude des échantillons à fils quantiques occupent la majeure partie du chapitre 4, les effets de la pression d'arsenic, de l'épaisseur des barrières d'InAlAs, du dopage et de la température sur les temps de capture, de relaxation et de recombinaison sont discutés. Une étude en fonction de la longueur d'onde du faisceau sonde est aussi présentée.

Chapitre 1

Théorie

Quelques notions théoriques qui serviront lors de l'interprétation des résultats sont abordées dans ce chapitre. On y présente l'effet du confinement des porteurs sur les propriétés des semiconducteurs et les étapes principales du calcul de l'énergie et de la densité d'états en fonction de la dimensionnalité. Quelques uns des mécanismes de relaxation et de recombinaison des porteurs sont discutés pour des boîtes et des fils quantiques. Enfin, le lien entre la mesure d'absorbance et l'occupation des niveaux d'énergie est exposé dans le cas particulier qui s'applique à nos mesures.

1.1 Effet du confinement

Avec les techniques de fabrication modernes, il est possible de réaliser des structures de taille nanométrique, qui offrent un confinement des porteurs dans une, deux ou trois directions de l'espace. Ceci modifie considérablement les propriétés du matériau puisque

les effets quantiques, négligeables au niveau macroscopique, deviennent déterminants à cette échelle. Pour confiner les porteurs dans un semiconducteur, il suffit de supprimer un ou plusieurs degrés de liberté. On élimine un degré de liberté dans une direction (par exemple z) en créant un puits de potentiel de largeur L_z comparable à la longueur d'onde de de Broglie λ_D^1 . En pratique, ceci est réalisé en combinant trois semiconducteurs de bandes interdites différentes. Si le matériau central de largeur L_z (où $L_z \sim \lambda_D$) possède une bande interdite plus faible que les deux autres, le mouvement des porteurs dans la direction z sera restreint. La structure ainsi formée est appelée un puits quantique (figure 1.1).

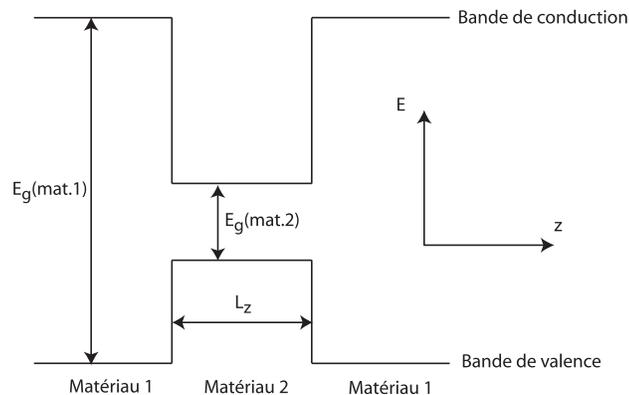


FIG. 1.1 – La formation d'un puits quantique entre deux semiconducteurs de bande interdite plus grande que celle du semiconducteur central

Le confinement entraîne la quantification de l'énergie des porteurs et modifie la densité d'états. Pour un électron dans un semiconducteur, dans l'approximation de la masse effective, l'équation de Schrödinger $\mathbf{H}\psi(\mathbf{r}) = \epsilon(k)\psi(\mathbf{r})$ devient :

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) \right] F_k(\mathbf{r}) = \epsilon F_k(\mathbf{r}) \quad (1.1)$$

¹ $\lambda_D = h/\sqrt{2m_e E}$, où h est la constante de Planck, m_e la masse effective d'une particule d'énergie E . λ_D est typiquement de l'ordre du nanomètre pour les porteurs dans un semiconducteur.

où \hbar est la constante de Planck divisée par 2π , m^* est la masse effective, $V(\mathbf{r})$ le potentiel de confinement au point \mathbf{r} , $F_k(\mathbf{r})$ est la fonction enveloppe dans la direction de confinement et ϵ est l'énergie de l'électron[6, p.5].

1.1.1 Matériau massif

Considérons d'abord le cas d'un électron dans un matériau massif 3D, c'est-à-dire sans confinement ($V(\mathbf{r}) = 0$). On obtient la solution suivante pour l'énergie permise

$$\epsilon = E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (1.2)$$

et la fonction d'onde

$$F_k(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{L^3}} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (1.3)$$

où L^3 est le volume du cristal et \mathbf{k} le vecteur d'onde qui satisfait aux conditions périodiques $k_x = (2\pi n_x)/L$, $k_y = (2\pi n_y)/L$ et $k_z = (2\pi n_z)/L$ avec n_i entiers. La densité d'états par unité de volume est en fait le nombre d'états dont l'énergie est comprise entre E et $E + dE$ et, connaissant l'énergie, on obtient :

$$D(E) = \frac{2}{L^3} \sum_{\mathbf{k}} \delta[E(\mathbf{k}) - E] = \frac{1}{2\pi^2} \left[\frac{2m^*}{\hbar^2} \right]^{3/2} E^{1/2} \quad (1.4)$$

où le facteur 2 tient compte de la dégénérescence des états de spin[6, p.6].

1.1.2 Puits quantique

La solution de l'équation 1.1 est modifiée lorsqu'un potentiel de confinement $V(\mathbf{r}) = V(z)$ est introduit en une dimension. Pour simplifier les calculs, considérons un potentiel $V(z)$ infini pour $|z| \geq L_z/2$ et nul pour $|z| < L_z/2$, où L_z est la largeur du puits quantique (figure 1.1). On observe alors une quantification de l'énergie selon z et l'expression 1.2 devient

$$\epsilon = E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2m^*} + E_{n_z} = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left[(k_x^2 + k_y^2) + \left(\frac{n_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \quad (1.5)$$

La densité d'états dans ce cas 2D devient donc

$$D(E) = \frac{2}{L^2 L_z} \sum_{n_z, k_x, k_y} \delta[E(\mathbf{k}) - E] = \frac{m^*}{\pi \hbar^2 L_z} \sum_{n_z} \Theta(E - E_{n_z}) \quad (1.6)$$

où Θ est la fonction marche de Heaviside[6, p.7].

1.1.3 Fil quantique

En confinant les porteurs dans une dimension supplémentaire par un potentiel $V(y)$ infini partout en y sauf pour $|y| < L_y/2$, on obtient un fil quantique. Cette fois encore l'énergie propre et la densité d'états sont modifiées par rapport aux cas 3D et 2D. On a pour l'énergie

$$\epsilon = E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} + E_{n_y} + E_{n_z} = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left[k_x^2 + \left(\frac{n_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{n_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \quad (1.7)$$

et pour la densité d'états

$$D(E) = \frac{2N_{fils}}{L} \sum_{n_y, n_z, k_x} \delta[E(\mathbf{k}) - E] = \frac{N_F \sqrt{2m^*}}{\pi \hbar} \sum_{n_y, n_z} \frac{\Theta(E - E_{n_y} - E_{n_z})}{\sqrt{E - E_{n_y} - E_{n_z}}} \quad (1.8)$$

où on a défini N_F la densité surfacique de fils dans le plan y - z [6, p.8].

1.1.4 Boîte quantique

Dans le cas d'une boîte quantique le confinement est dans toutes les dimensions ($V(\mathbf{r}) = V(x) + V(y) + V(z)$). Pour le calcul, supposons encore une fois un potentiel infini partout sauf pour $|x| < L_x/2$, $|y| < L_y/2$ et $|z| < L_z/2$ où il est nul. L'énergie propre est donnée par

$$\epsilon = E(\mathbf{k}) = E_{n_x} + E_{n_y} + E_{n_z} = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\left(\frac{n_x \pi}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{n_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{n_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \quad (1.9)$$

et la densité d'états est

$$D(E) = 2N_B \sum_{n_x, n_y, n_z} \delta[E - E_{n_x} - E_{n_y} - E_{n_z}] \quad (1.10)$$

où N_B est la densité volumique de boîtes[6, p.9].

La figure 1.2 montre une représentation graphique de la densité d'états et de l'énergie en fonction de la dimension. La densité d'états continue en 3D augmente en paliers en fonction de l'énergie pour le cas 2D, en \sqrt{E} pour le cas 1D et est discrète en 0D. La quantification de l'énergie dans la direction de confinement affecte les états d'énergie

accessibles en fonction de \mathbf{k} jusqu'à obtenir des niveaux d'énergie bien définis en 0D.

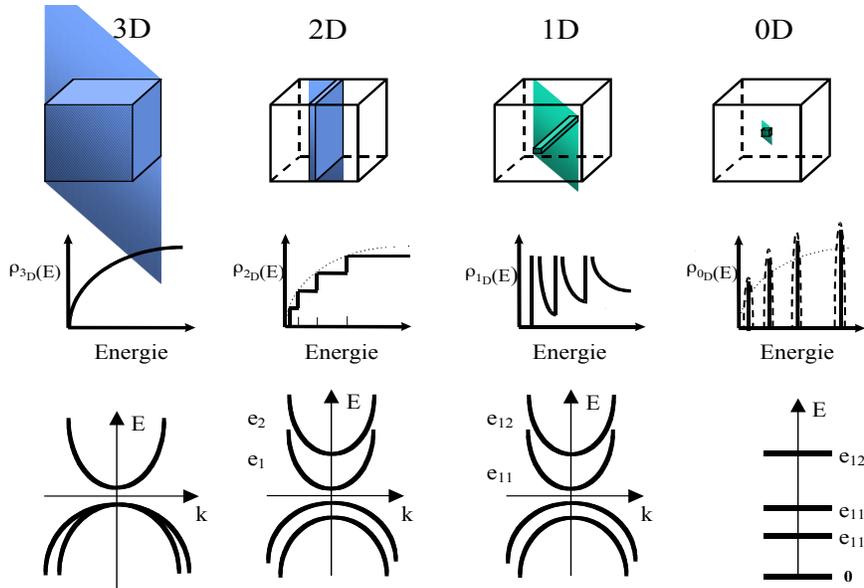


FIG. 1.2 – Densité d'états et énergie propre en fonction de la dimensionnalité.

Les équations précédentes montrent bien l'effet de la réduction de la dimensionnalité sur l'énergie et la densité d'états dans ce modèle de potentiel de confinement infini. En réalité, les barrières de potentiel ne sont pas infinies et les structures auto-assemblées ne sont pas simplement des cubes de petites dimensions. Les boîtes quantiques ressemblent plus à des hémisphères de hauteur faible par rapport à la largeur et la longueur. Les fils quantiques ont également une forme similaire, mais avec une longueur beaucoup plus grande que la largeur. Il faut donc tenir compte de ces considérations si on cherche à calculer exactement les énergies propres et la densité d'états dans des structures réelles.

1.2 Dynamique des porteurs

Comprendre la dynamique des porteurs dans les nanostructures semiconductrices est primordial pour la conception de dispositifs. Comme mentionné précédemment, en modifiant le confinement, l'énergie accessible et la densité d'états sont altérées. Ceci affecte également la dynamique des porteurs. Les méthodes optiques basées sur l'utilisation d'impulsions lasers ultra-courtes (quelques dizaines de femtosecondes) représentent une façon efficace d'étudier la dynamique de ces porteurs. Toutes les méthodes optiques reposent sur le fait de générer des porteurs électrons-trous dans le matériau par une impulsion laser ultra-courte et d'observer ensuite l'évolution en fonction du temps de ces populations de porteurs. Plusieurs phénomènes peuvent survenir après l'excitation, la figure 1.3 schématise quelques uns de ces processus. Considérons le cas d'une excitation optique dont les photons possèdent une énergie supérieure à la bande interdite des nanostructures. L'impulsion crée des porteurs de charges libres dans la barrière (ici dans l'InAlAs). Les porteurs sont rapidement capturés par les îlots quantiques et relaxent vers les niveaux de plus basse énergie. Ceci peut se faire via des processus phononiques, des recombinaisons radiatives ou non-radiatives, des processus Auger et d'autres types d'interactions.

1.2.1 Capture et relaxation

Les porteurs photo-excités dans les barrières sont capturés par les îlots quantiques très rapidement. Le taux de capture quantique est déterminé par le recouvrement des fonctions d'ondes entre les états initiaux et finaux et par la séparation en énergie entre ces mêmes niveaux [7, p.314]. Le temps de capture peut également être limité par le transport dans les barrières ou dans la couche de mouillage 2D. Ce temps dépend des paramètres

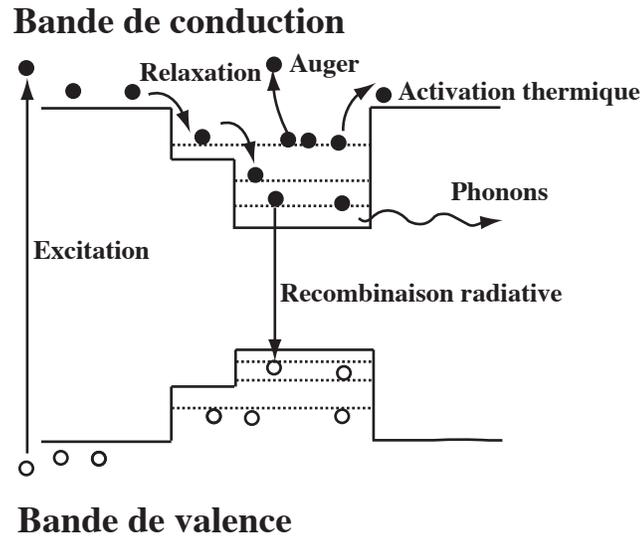


FIG. 1.3 – Quelques processus de relaxation et de recombinaison des porteurs dans une nanostructure semiconductrice après excitation à une énergie supérieure à la bande interdite.

structuraux des échantillons comme la taille et la densité des îlots. Le temps de capture global est en général court et difficile à déterminer puisque dans la plupart des mesures optiques le temps de montée du signal correspond à une combinaison d'effets de capture et de relaxation interniveaux. Il est alors ardu de distinguer la contribution individuelle de chaque processus. Les résultats incluent généralement ces deux phénomènes en un seul temps caractéristique. Les valeurs obtenues pour la combinaison capture/relaxation varient selon le type d'échantillon étudié et les conditions expérimentales. À faible excitation, la diffusion électrons-trous via des phonons semble être le mécanisme de relaxation principal pour des boîtes quantiques d' $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{GaAs}$ [8] et d' InAs/GaAs [9]. À plus forte excitation, les processus Auger sont dominants dans le cas de boîtes d' InAs/GaAs [10].

Certains auteurs ont obtenu, par des mesures de spectroscopie pompe-sonde à 300 K, un temps caractéristique pour la capture seule aussi court que 2 ps pour des boîtes quan-

tiques d'InAs/GaAs. Les auteurs attribuent ce temps très court aux processus Auger impliquant l'interaction de plusieurs porteurs[11]. Des temps de capture similaires (3 ps) sont observés à 300 K par Peronne et *al.* pour des fils quantiques semblables à ceux étudiés ici. Notons que seulement la dynamique des électrons est considéré dans leur cas car l'impulsion sonde utilisée ($13 \mu m$) permet d'étudier la transition inter sous-bande entre les niveaux électronique $n = 2$ et $n = 1$. Ils ont ainsi mesuré un temps de relaxation inter sous-bande de 0,4 ps. L'interaction avec des phonons longitudinaux optiques (LO) semble être le mécanisme dominant pour la capture dans ce cas[12]. Urayama et *al.* ont publié plusieurs travaux sur la dynamique des porteurs dans des échantillons d'In_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs qui possèdent deux niveaux d'énergie confinés dans les boîtes. Les porteurs créés dans les barrières atteignent d'abord la couche de mouillage en un temps de 0,5 ps, puis peuplent le niveau $n = 2$ en 2,5 ps. La capture directe dans le niveau $n = 1$ à partir de la couche de mouillage est aussi possible, mais cette fois avec un temps caractéristique de 45 ps. Ces mesures leur permettent de déterminer un temps de relaxation du niveau $n = 2$ vers le niveau $n = 1$ de 10 ps[13]. Ils ont même observé un ralentissement de la relaxation², ce phénomène prédit théoriquement[14] pour des systèmes 0D est lié aux règles de sélection et avait jusqu'alors échappé à l'observation expérimentale [13],[15].

1.2.2 Recombinaison

Les porteurs excités sont capturés et relaxent rapidement vers les niveaux d'énergie inférieurs des îlots quantiques. Une fois le niveau fondamental atteint, les porteurs vont retourner vers la bande de valence (électrons) ou la bande de conduction (trous) par recombinaison sur une échelle de temps de l'ordre de la centaine de picoseconde ou plus.

²Le «phonon bottleneck» en anglais.

La recombinaison peut être radiative ou non-radiative. Le temps de vie radiatif est en général plus long que celui non-radiatif. Des temps supérieurs à 1 ns ont été observés pour des boîtes d'InAs/GaAs. Parmi les processus non-radiatifs, mentionnons la recombinaison par des défauts ou des pièges qui peut être très rapide (100 ps)[16]. Ainsi, un temps de recombinaison court est souvent relié à la présence de défauts dans les structures puisqu'un échantillon de grande qualité offre moins de possibilités de recombinaison non-radiative et la cinétique est alors dominée par le temps de recombinaison radiatif qui est plus long. La réémission vers des niveaux supérieurs sous activation thermique est aussi un facteur important qui affecte la dynamique. À température suffisamment élevée, des porteurs capturés dans les îlots quantiques peuvent être réémis vers la couche de mouillage ou vers les barrières et modifier considérablement la cinétique[17]. Urayama et al. ont constaté cet effet de réémission des porteurs du niveau excité des boîtes vers la couche de mouillage à des températures variant entre 6 et 40 K et attribuent un temps caractéristique de 170 ps à la réémission[13].

1.3 Spectroscopie pompe-sonde

Plusieurs techniques de spectroscopie basées sur l'utilisation d'impulsions laser ultra-courtes sont disponibles afin d'étudier la dynamique des porteurs dans les semiconducteurs. On pense entre autre à la photoluminescence résolue en temps qui permet une résolution limitée seulement par la largeur temporelle de l'impulsion laser. La spectroscopie pompe-sonde est une méthode complémentaire qui permet une résolution temporelle équivalente. Elle consiste à exciter l'échantillon à l'aide d'une impulsion laser courte et intense (pompe) puis à sonder l'état du système, à un délai contrôlé après l'excitation, à l'aide d'une seconde impulsion d'intensité plus faible (sonde). On utilise généralement

deux impulsions courtes à des longueurs d'onde différentes et on mesure soit le signal réfléchi sur la surface de l'échantillon, le signal transmis à travers celui-ci ou encore le signal de mélange à quatre ondes. Dans notre cas on s'intéresse au signal transmis à travers l'échantillon, donc on mesure l'intensité de l'impulsion sonde en présence (T_{Ap}) et en l'absence (T_{Sp}) de la pompe. L'absorbance est reliée à ces deux paramètres et est définie comme

$$\text{Absorbance} = \ln \left(\frac{T_{Ap}}{T_{Sp}} \right) = \Delta\alpha d \quad (1.11)$$

où α est le coefficient d'absorption des nanostructures, $\Delta\alpha = \alpha_{Sp} - \alpha_{Ap}$ est la différence entre le coefficient d'absorption sans pompe et avec pompe et d est l'épaisseur de la partie de l'échantillon contenant les îlots et les barrières. Ainsi, en mesurant l'intensité transmise à travers l'échantillon avec et sans pompe et en prenant ensuite le logarithme naturel de ce ratio on obtient l'absorbance qu'on trace en fonction du délai entre les impulsions pompe et sonde.

Il est important de mentionner que l'intensité transmise est plus grande lorsque l'échantillon est excité par la pompe ($T_{Ap} > T_{Sp}$). L'impulsion pompe crée des porteurs qui relaxent rapidement vers le niveau d'énergie considéré. L'absorption diminue lorsque le niveau étudié est déjà peuplé, donc la transmission augmente. Dans le cas limite où le niveau d'énergie considéré est complètement rempli, l'impulsion sonde sera transmise totalement. Ceci explique le signe de la courbe d'absorbance observée sur toutes les mesures puisque l'absorbance est le logarithme naturel du ratio $\left(\frac{T_{Ap}}{T_{Sp}} \right)$ où $T_{Ap} > T_{Sp}$, la courbe est donc positive.

L'interprétation rigoureuse des mesures de spectroscopie pompe-sonde implique de considérer la réponse cohérente et incohérente du système. Si l'échelle de temps considérée est inférieure ou comparable au temps de capture/relaxation des porteurs dans le système,

alors on doit considérer les équations de Bloch et calculer des éléments non-diagonaux de la matrice densité [7, p.21]. Par contre, pour des temps de mesure plus long, on peut simplifier l'analyse en ignorant les effets cohérents. Dans ce régime, on peut également distinguer deux classes d'effets, soit les effets d'interaction entre porteurs (n-corps) et les effets d'occupation des niveaux d'énergie. Les effets à plusieurs particules dépendent en grande partie de la densité d'excitation. À faible excitation, ces effets peuvent souvent être négligés. Dans ces conditions, l'absorbance est directement reliée à l'occupation des niveaux d'énergie. Soit f_e et f_t les fonctions de distributions (probabilités d'occupation) des électrons et des trous photoexcités aux énergies E_e et E_t couplés par un photon d'énergie $h\nu$, le changement du coefficient d'absorption est donné par :

$$\Delta\alpha(h\nu) = (1 - f_e - f_t)\alpha_{sp}(h\nu) \quad (1.12)$$

Ainsi la mesure de l'absorbance nous renseigne sur l'occupation des niveaux d'énergie des électrons et des trous [7, p.22][8]. Notons que ce type de mesure est sensible à la somme des probabilités d'occupation des électrons et des trous ($f_e + f_t$), contrairement à la photoluminescence qui est reliée au produit des probabilités ($f_e f_t$).

Chapitre 2

Description des matériaux

On traite dans ce chapitre de quelques unes des différentes méthodes de fabrication employées pour produire des nanostructures semiconductrices, en particulier des boîtes et des fils quantiques. Le mode de croissance Stranski-Krastanov est décrit un peu plus en détails puisque c'est la méthode de fabrication employée pour produire les échantillons étudiés dans le cadre de ce travail. Les principaux paramètres structuraux et les conditions de croissance des échantillons utilisés sont présentés.

2.1 Fabrication

Il existe plusieurs méthodes pour obtenir des nanostructures à base de semiconducteurs. Dans la plupart des cas, on utilise des techniques de fabrication éprouvées telles que l'épitaxie par jet moléculaire (MBE) ou l'épitaxie en phase vapeur d'organo-métallique (MOCVD) qu'on adapte aux besoins spécifiques des structures à dimensionalité réduites.

Dans le cas de boîtes quantiques par exemple, les premières structures furent réalisées à partir de puits quantiques modifiés par des procédés lithographiques[18]. Le puits quantique offrant un confinement des porteurs dans une direction, il suffit alors de graver le puits de sorte à enlever le matériau autour d'un point de dimension déterminée. La lithographie par faisceau d'électron est préférée à la lithographie optique dans ce cas car une grande résolution est nécessaire pour réaliser des structures de petites tailles pour lesquelles le confinement des porteurs est important. De cette façon, les électrons d'abord confinés en une dimension (z), se trouvent confinés dans les trois directions sur un méso-mesurant entre 10 et 100 nm de côté (x et y).

Il est également possible de créer des boîtes quantiques par interdiffusion de puits quantiques. En effet, en chauffant localement une partie d'un puits quantique à l'aide d'un laser, on peut atteindre une température de l'ordre de 1000°C qui est suffisante pour causer l'interdiffusion, ce qui cause une modulation locale de la bande interdite du puits quantique et ainsi confine les porteurs à une région restreinte du puits, créant une boîte quantique.

Une autre méthode consiste à moduler le champ électrique à l'aide d'électrodes métalliques déposées sur la surface d'un puits quantique de façon à confiner un petit nombre d'électrons. Cette façon de faire permet de contrôler les paramètres des boîtes, mais est difficilement applicable à des dispositifs optiques à base de boîtes quantiques.

La plupart de ces méthodes de fabrication sont peu utilisées aujourd'hui car les récentes techniques de croissance ont permis d'obtenir des nanostructures de meilleure qualité. En effet, les méthodes lithographiques suivies de gravure introduisent des défauts qui détériorent les propriétés optiques et électriques. D'autre part, les techniques basées sur le confinement électrique à l'aide de contacts impliquent des étapes de fabrication très

déliçates et souvent difficiles à mettre en oeuvre de façon reproductible.

2.1.1 Croissance auto-assemblée

La méthode de croissance la plus utilisée aujourd'hui est celle dite auto-assemblée. Elle est basée sur le fait qu'une transition d'un mode de croissance 2D/3D intervient dans certaines conditions pour des matériaux semiconducteurs ayant une différence de paramètre de maille importante. Aujourd'hui, la fabrication de nanostructures semiconductrices repose en grande partie sur l'épitaxie. En contrôlant bien les paramètres, il s'agit de déposer sur un substrat monocristallin les éléments composants le matériau et de faire croître ainsi le cristal couche par couche. Dans le cas d'un matériau déposé sur un substrat différent, on parle d'hétéro-épitaxie. Des matériaux différents possèdent des paramètres de maille a différents et, selon la différence de paramètre de maille ($\Delta a/a$) et l'épaisseur déposée, il y a trois modes de croissance possibles (figure 2.1).

Le premier mode de croissance est appelé Frank-van der Merwe (FM), il s'agit d'une croissance couche par couche. Le second, appelé Volmer-Weber, forme des îlots 3D instantanément sur le substrat. Enfin, le troisième mode est appelé Stranski-Krastanov et est caractérisé par une croissance bidimensionnelle, lors des premières monocouches, suivie d'une transition vers une croissance d'îlots 3D. La croissance des premières monocouches se fait en accord de maille avec le substrat mais, au bout d'une certaine épaisseur critique, le matériau contraint relaxe une partie de l'énergie élastique emmagasinée en créant des îlots 3D[6, p.119].

2.1.2 Mode de croissance Stranski-Krastanov

Le mode de croissance Stranski-Krastanov intervient lorsque les deux matériaux épitaxiés ont un désaccord de maille moyen (typiquement $\Delta a/a$ entre 1 et 10 %). La plupart des

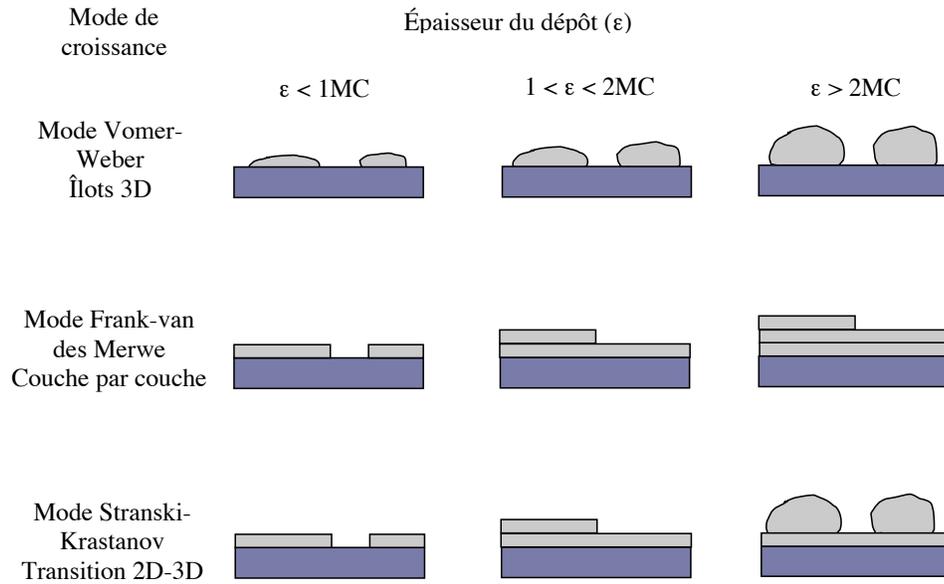


FIG. 2.1 – Description des trois modes de croissance possibles lors de l'hétéro-épitaxie de semiconducteurs

boîtes quantiques sont donc réalisées avec des matériaux répondant à ce critère. Par exemple, le système InAs/GaAs possède un désaccord de maille de 7%. Pour ce cas particulier, la fabrication débute avec un substrat de GaAs sur lequel on fait croître une couche tampon du même matériau par épitaxie. On coupe ensuite la source de gallium qu'on remplace par une source d'indium. Il se forme ainsi une mince couche d'InAs qui épouse le paramètre de maille du substrat qu'on appelle la couche de mouillage. Au bout de quelques monocouches (environ 1,5 pour l'InAs/GaAs), l'énergie accumulée dans la couche d'InAs sous contrainte va entraîner un changement de mode de croissance et créer des petits îlots à la surface. C'est une façon pour le système de minimiser l'énergie de surface. Les îlots se forment spontanément et aléatoirement sur la surface lorsque les conditions nécessaires sont réunies. Enfin, on change à nouveau de matériau pour faire croître une nouvelle couche de GaAs qu'on appelle couche de recouvrement. Celle-ci est importante puisqu'elle permet, grâce au gap plus grand du GaAs, de confiner les porteurs

dans les îlots d'InAs par une barrière de potentiel.

Bien que formés spontanément, on possède tout de même un certain contrôle sur la forme et la taille des îlots. Les paramètres de croissance (la température, la pression, la vitesse de croissance, etc.) influencent beaucoup le résultat final, donc en contrôlant bien ces paramètres, il est possible d'optimiser la forme et la distribution en taille des îlots. La couche de recouvrement affecte également la forme des nanostructures. Le contrôle de la forme des îlots peut aller jusqu'au contrôle du type de structures fabriquées. Dans le système InAs/InAlAs/InP, il est possible d'obtenir soit des boîtes ou des fils quantiques en utilisant adéquatement l'anisotropie de la surface de croissance, tel que décrit à la section suivante[2].

2.2 Échantillons étudiés

La plupart des mesures que nous avons faites ont été effectuées sur des échantillons élaborés par le Dr. Michel Gendry au Laboratoire d'électronique de l'École Centrale de Lyon. Ils sont fabriqués par épitaxie par jet moléculaire (MBE) et les nanostructures sont issues d'une croissance auto-assemblée en mode Stranski-Krastanov. Ce sont des îlots quantiques d'InAs sur InAlAs en accord de maille sur un substrat d'InP. Ce système est beaucoup moins étudié que le système InAs/GaAs mais pourtant il est tout indiqué pour la conception de dispositifs de télécommunication performants émettant à $1,55 \mu\text{m}$.

La croissance débute par l'épitaxie d'une couche tampon d' $\text{In}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ de 400 nm avec $x=0,48$ sur un substrat d'InP (001). La croissance s'effectue à 525°C , à une vitesse de $1 \mu\text{m}/\text{h}$ avec un rapport de pression des éléments V/III près de 30^1 , afin d'obtenir la

¹Beam equivalent pressure (BEP)

bonne stoechiométrie[19]. Les échantillons possèdent 10 plans, séparés par des espaceurs d'InAlAs d'épaisseur variant entre 5 et 15 nm. Enfin, une couche de recouvrement de 300 nm est déposée au dessus de la structure. La figure 2.2 montre la structure de base de ces échantillons à 10 plans d'îlots.

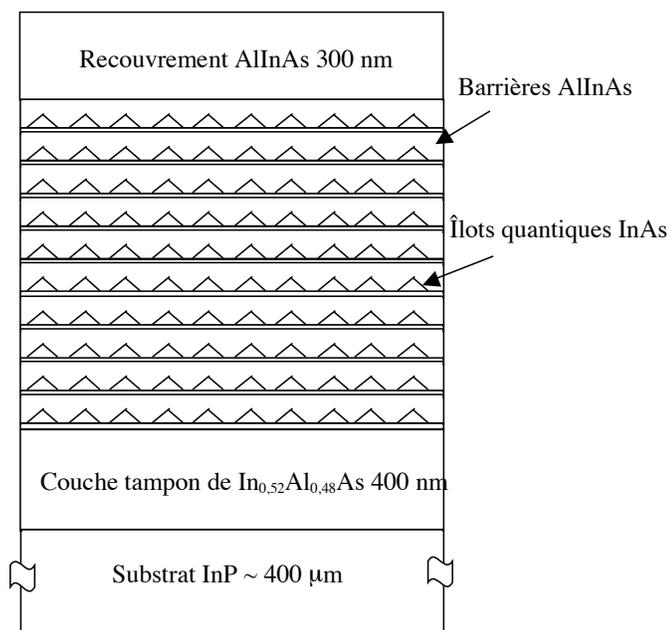


FIG. 2.2 – Structure générale des échantillons étudiés

Le système InAs/InAlAs/InP est caractérisé par un désaccord de maille d'environ 3 %. Sachant que dans le cas du système InAs/GaAs, ce désaccord est de l'ordre de 7 %, on comprend que l'auto-organisation est plus difficile dans ce cas. Par contre, cette faible valeur permet d'obtenir des structures différentes en contrôlant bien les conditions de croissance. En effet, la croissance de ces îlots quantiques dépend fortement de la morphologie de la couche tampon d'InAlAs. La surface de croissance d'InAlAs présente naturellement une anisotropie favorisant l'allongement des structures selon la direction [1-10]. Il est possible de modifier cette surface en introduisant un temps d'interruption de crois-

sance sous pression d'arsenic avant la croissance des îlots. Ce temps est appelé temps de maintien, il peut être plus ou moins long et détermine la morphologie finale de la surface. Ainsi, en plaçant la surface d'InAlAs sous une pression d'arsenic (4×10^{-6} Torr) entre 5 et 10 minutes, on réduit l'anisotropie naturelle et on favorise la croissance de structures non-allongées, soit des boîtes quantiques. En appliquant la méthode inverse, c'est-à-dire en omettant le temps de maintien, on utilise à profit l'anisotropie naturelle de la surface pour privilégier la croissance de fils quantiques[19]. Le système InAs/InAlAs/InP est un des rares systèmes qui permet d'obtenir des fils quantiques auto-assemblés.

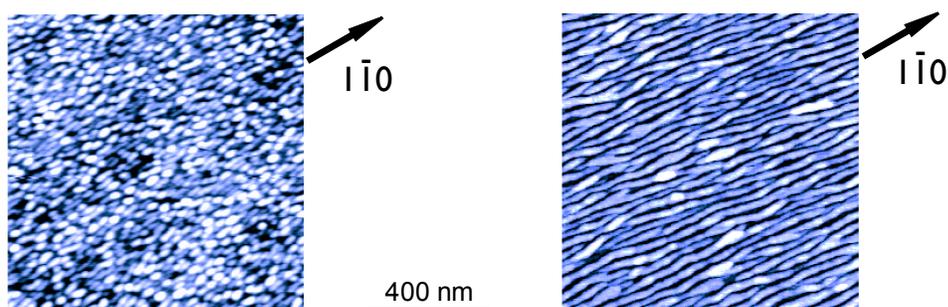


FIG. 2.3 – Images AFM de boîtes et de fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP[1]

Les échantillons étudiés comprennent 10 plans d'îlots quantiques. Or, l'empilement de plusieurs couches influence grandement la forme des structures et il est même possible de tirer profit des contraintes verticales pour améliorer l'homogénéité des structures. Lorsqu'on dépose une couche d'îlots quantique au dessus d'une couche déjà existante, les deux étant séparées par une barrière, l'auto-organisation est grandement influencée par la présence de la première couche. Les contraintes dans la structure forcent la nucléation des îlots de la seconde couche à certains endroits précis. Pour la plupart des systèmes (InAs/GaAs, SiGe/Si, InAs/InP), l'alignement vertical est corrélé, c'est -à-dire que les îlots d'une couche supérieure se forment au dessus des îlots de la couche inférieure. Dans le système InAs/InAlAs/InP par contre, l'alignement vertical est anti-corrélé, les îlots de

la couche supérieure se forment entre deux îlots de la couche inférieure. C'est un aspect unique à ce système qui provient de la séparation de phase dans la barrière d'InAlAs qui se produit lors de la croissance de la barrière. On constate sur les images de microscopie électronique à transmission des zones claires (enrichies en indium) et des zones sombres (enrichies en aluminium) causées par le champ de contraintes induit par la présence d'îlots d'InAs (figure 2.4). L'indium des îlots d'InAs diffuse à travers la barrière, créant ainsi des zones enrichies en indium. La nucléation des îlots sur la couche supérieure est favorisée entre deux îlots de la couche inférieure à cause de cette modulation de la concentration d'indium.

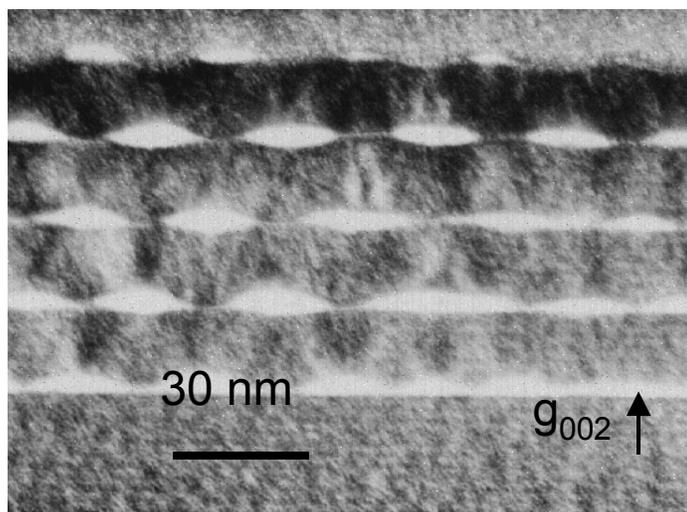


FIG. 2.4 – Image de microscopie électronique à transmission en coupe transverse d'une structure empilée de fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP. (Source : O. Marty, LENAC, Université de Lyon 1)

L'empilement de couches successives (réalisé en contrôlant bien les paramètres de croissance) permet de réduire la dispersion en taille des îlots. Cet effet est vérifiable expérimentalement, par exemple par photoluminescence où on observe une diminution de la largeur à mi-hauteur des raies d'émission [20]. L'empilement entraîne aussi un autre effet sur les structures. Il est impossible de réduire complètement l'anisotropie de la surface

par un temps de maintien lorsqu'on superpose des couches d'îlots. En effet, lorsque l'épaisseur des barrières d'InAlAs entre les plans d'îlots est inférieure à 50 nm, on obtient invariablement des fils quantiques après l'empilement de plus d'un plan, les contraintes verticales entre les plans d'îlots étant trop importantes. Même lorsque le premier plan est constitué de boîtes quantiques, on obtient après empilement un plan de fils. Ainsi, les échantillons étudiés dans le cadre de ce mémoire sont donc tous des fils quantiques.

Le tableau suivant résume les principales caractéristiques des échantillons étudiés, soit le nombre de plans d'îlots, la taille de l'espaceur d'InAlAs, la pression d'arsenic et la hauteur d'InAs déposée. Mentionnons également que la densité de fils dans ces échantillons est de l'ordre de $4,5 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$.

Échantillon	Nb plans	Barrières InAlAs (nm)	Pression Arsenic (10^{-6} Torr)	Hauteur InAs déposée (Å)
M928	10	10	~8	9
M930	10	10	7,5	10,5
M937	10	10	3,5	10,5
M938	10	10	5,5	10,5
M749	10	5	~8	9
M704	10	10	~8	9
M744	10	15	~8	9
M499 (-)	10	50	7	9
M500 (+)	10	50	7	9

FIG. 2.5 – Principales caractéristiques physiques des échantillons de fils quantiques étudiés.

Chapitre 3

Méthode expérimentale

Cette section présente brièvement les différentes étapes expérimentales réalisées afin d'obtenir les résultats de spectroscopie pompe-sonde. On traite de l'amincissement des échantillons, de quelques mesures de caractérisation effectuées avec un montage de photoluminescence et enfin du montage de pompe-sonde utilisé pour les mesures.

3.1 Préparation des échantillons

La spectroscopie pompe-sonde en transmission repose sur la comparaison de l'intensité transmise à travers un échantillon en présence de l'impulsion pompe et sans l'impulsion pompe. La différence entre ces deux signaux est très faible et on doit s'efforcer d'optimiser la transmittance en amincissant les échantillons utilisés, c'est à dire en enlevant une partie du substrat. Notons qu'en théorie, cette étape n'est pas indispensable puisque le gap du substrat d'InP est environ 1,27 eV à température ambiante et que l'énergie de la sonde

utilisée était toujours inférieure à cette valeur (entre 0,82 et 0,99 eV), il n'y a donc normalement pas d'absorption dans le substrat. Par contre, il peut y avoir de la diffusion et de l'absorption par les impuretés dans le substrat ce qui entraînera une diminution du signal transmis. Puisqu'on s'intéresse à de faibles différences de transmission, il est important d'optimiser le rapport signal/bruit.

En pratique nous avons aminci les échantillons car ceux-ci sont couverts d'une couche d'indium du côté du substrat, ayant servi de contact thermique lors de la croissance. Ceci a été réalisé par polissage mécanique à l'aide de poudres d'oxyde d'aluminium avec des grains de taille différente. L'échantillon à amincir est collé à l'envers sur un support métallique à l'aide d'une cire, qu'on fait fondre en chauffant le support. La poudre de plus grande taille ($25\ \mu\text{m}$) est placée sur une plaque de verre avec un peu d'eau déminéralisée et on déplace délicatement le support sur la plaque de verre pour polir l'échantillon. Une vis micrométrique permet de déplacer le support par rapport à la base et ainsi choisir l'épaisseur de l'échantillon qui sera enlevée. On enlève typiquement $25\ \mu\text{m}$ à la fois, et on répète cette étape plusieurs fois, pour éviter de créer un trop grand stress sur l'échantillon qui casserait ou se détacherait du support. On enlève ainsi la plus grande partie du substrat avec la poudre de $25\ \mu\text{m}$ et on passe ensuite à la poudre de $5\ \mu\text{m}$ pour éliminer les rayures grossières de la première poudre, enfin on termine avec la poudre de $1\ \mu\text{m}$ pour obtenir un fini uniforme et presque miroir. L'échantillon possède au départ une épaisseur totale d'environ $500\ \mu\text{m}$ et on enlève approximativement de 300 à 400 μm de substrat. Il s'agit ensuite de chauffer à nouveau le support métallique pour faire fondre la cire, détacher l'échantillon délicatement et le nettoyer. Une solution d'Anisole à 99% est utilisée pour enlever les résidus de cire. Un trempage successif dans l'acétone et le méthanol complète la procédure de nettoyage. Les échantillons amincis ont une épaisseur variant entre 100 et 200 μm , ils sont donc très fragiles. Afin de pouvoir les manipuler

sans trop de difficulté, ceux-ci sont installés sur un support de métal qui va permettre la mesure de pompe-sonde en transmission. Le support est une rondelle de laiton percée d'un trou au centre pour permettre au faisceau laser de passer. Les échantillons sont collés sur le support à l'aide de laque d'argent, qui agit comme conducteur thermique pour des mesures à basse température et qui permet également de retirer l'échantillon du support par la suite.

3.2 Caractérisation expérimentale des échantillons

En plus des paramètres de croissance des échantillons d'îlots quantiques, il est important de connaître les longueurs d'onde d'émission de ces structures. Pour ce faire, nous avons utilisé la technique de photoluminescence (PL). Cette technique consiste à créer des porteurs de charges dans le semiconducteur à l'aide d'une source d'excitation laser dont les photons possèdent une énergie supérieure au gap du semiconducteur étudié, puis à récolter et à analyser la lumière émise lors de la recombinaison des porteurs.

Les mesures de PL ont été réalisées avec le montage illustré à la figure 3.1. La source d'excitation est une diode laser de 50 mW émettant à 683 nm munie d'une lentille qui permet de focaliser le faisceau sur une tache d'environ 500 μm sur l'échantillon. Ce dernier est collé avec de la laque d'argent sur un doigt froid à l'intérieur d'un cryostat servant aux mesures à basses températures. Notons toutefois que la plupart des mesures de PL et de pompe-sonde sont effectuées à la température ambiante. Le faisceau d'excitation est incident à un angle d'environ 30° par rapport à la surface de l'échantillon de façon à ce que le faisceau réfléchi n'atteigne pas le système de détection. La luminescence émise est récoltée par une lentille de 75 mm placée à 150 mm de l'échantillon, soit la

distance focale de cette lentille. Une seconde lentille sert à focaliser la luminescence à l'entrée du spectromètre (SPEX) de 1 m muni d'un réseau de 1200 traits/mm. Une cellule photoélectrique de germanium refroidie à l'azote liquide est utilisée comme détecteur. Un préamplificateur de courant (Standford Reasearch System SR570) branché directement sur le détecteur amplifie le signal qui est ensuite traité par l'amplificateur synchrone (Standford Reasearch System SR530) qui est lui-même référencé à un hacheur placé entre le laser et l'échantillon. L'intensité mesurée est tracée en fonction de la longueur d'onde par l'ordinateur muni d'une carte d'acquisition.

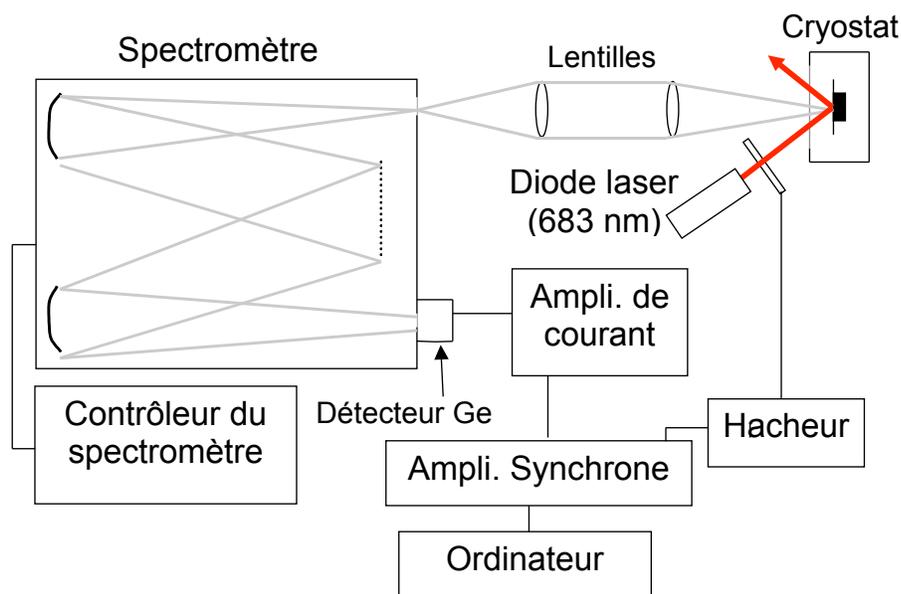


FIG. 3.1 – Schéma du montage de photoluminescence

3.3 Spectroscopie pompe-sonde

Le montage expérimental pour les mesures de spectroscopie pompe-sonde est illustré à la figure 3.2. Il est composé de trois parties principales : une source d'impulsions courtes, un

montage optique et un système de détection. La source d'impulsions est en fait constituée d'une chaîne laser comprenant un oscillateur, un amplificateur régénératif et un amplificateur paramétrique optique. Le montage optique comprend miroirs et autres composants optiques pour acheminer les faisceaux laser de la source vers l'échantillon, ainsi que la ligne à retard qui contrôle le délai pompe-sonde. Enfin, le système de détection est constitué d'un monochromateur, d'un photodétecteur et d'appareils électroniques d'analyse de signal dont un échantillonneur à porte.

3.3.1 Source d'impulsions courtes

La chaîne laser débute par l'oscillateur (Spectra Physics Tsunami) qui est pompé par le laser Nd :LiYF₄ (Spectra Physics Millennia Vs). Le pompage longitudinal du Nd :LiYF₄ est assuré par deux barrettes de diodes couplées à une fibre optique. Cette configuration permet d'obtenir 4 W de puissance continue à une longueur d'onde de 532 nm, obtenue en doublant la fréquence fondamentale du milieu actif. L'oscillateur lui-même est constitué d'un milieu actif de saphir dopé au titane (Ti :saphir). Ce matériau possède une bande d'absorption large allant de 400 à 600 nm, et une bande d'émission également large allant d'environ 600 à 1100 nm lui conférant une accordabilité très importante. En pratique, il est possible d'obtenir un effet laser entre 690 et 1080 nm, mais il faut pour cela changer les miroirs à l'intérieur de la cavité optique. L'appareil dans sa configuration actuelle est optimisé pour générer des impulsions d'une durée inférieure à 50 femtosecondes à 800 nm. Cet oscillateur fonctionne en régime impulsionnel, c'est-à-dire lorsqu'on parvient à réaliser le verrouillage de mode dans la cavité. Les modes longitudinaux de la cavité laser sont ceux dont un nombre entier n de demie longueurs d'ondes λ correspond à la longueur de la cavité l ($l = n\lambda/2$). Normalement, la phase des différents modes longitudinaux est

aléatoire et varie d'un mode à l'autre. Pour obtenir une impulsion à la sortie, on doit faire en sorte que tous les modes interfèrent de façon constructive en un point donné de la cavité, et de façon destructive ailleurs, on dit alors qu'il y a verrouillage de modes. Dans ce cas, un train d'impulsions va donc se propager dans la cavité et le taux de répétition correspond au temps mis par une impulsion pour parcourir la cavité. Dans le cas présent, ce taux de répétition est de 82 MHz et l'énergie par impulsion à la sortie est d'environ 4,8 nJoules.

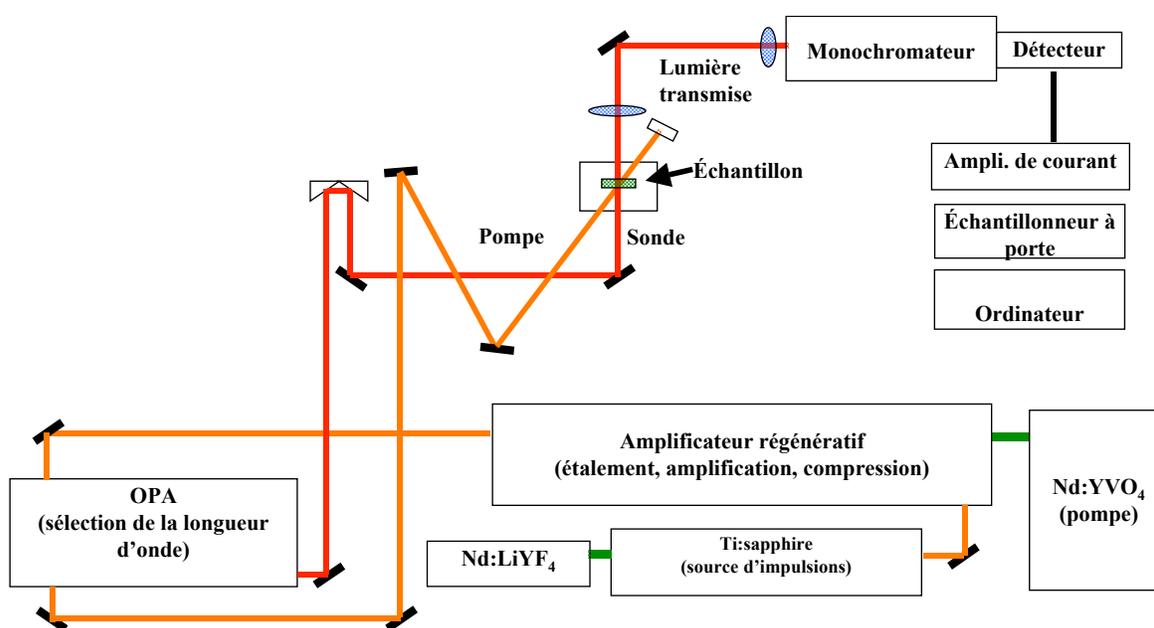


FIG. 3.2 – Schéma du montage de spectroscopie pompe-sonde

Pour obtenir des impulsions courtes, mais intenses, on utilise un amplificateur régénératif (Spectra Physics Spitfire). Ce dernier est composé de trois parties principales. D'abord, le faisceau provenant du Tsunami est dirigé vers un réseau qui étale les impulsions dans le temps, réduisant ainsi l'intensité maximale des impulsions. Ensuite, les impulsions ainsi étirées sont acheminées vers l'amplificateur. Les impulsions sont introduites dans une cavité résonnante par réflexion sur la face polie d'un autre barreau de Ti :saphir. Ce

nouveau barreau agit ici comme milieu actif de l'amplificateur et est pompé par un autre laser pulsé (Spectra Physics Merlin) émettant approximativement 7 Watts à 527 nm à un taux de répétition de 1 kHz. Lorsqu'une impulsion de l'oscillateur est introduite dans la cavité laser de l'amplificateur, elle traverse le milieu actif et est amplifiée par émission stimulée. Une combinaison de deux cellules à effet Pockell permet de sélectionner une seule impulsion en changeant judicieusement la polarisation afin de lui faire parcourir un nombre précis de passages dans la cavité, qui détermine l'amplification totale de l'impulsion initiale. On obtient typiquement un facteur d'amplification d'environ 10^5 avec ce système. Enfin, la troisième partie de l'amplificateur régénératif consiste en un second réseau de diffraction, utilisé cette fois pour compresser à nouveau les impulsions dans le temps pour obtenir des impulsions intenses mais toujours ultra courtes. À la sortie de l'amplificateur, on a donc des impulsions à 800 nm d'environ 50 fs avec une énergie par impulsion de 0,6 mJoules.

De telles impulsions courtes et intenses permettent de tirer profit d'effets non-linéaires pour générer d'autres longueurs d'onde. Le contrôle de l'énergie des photons de ces impulsions courtes permet d'étudier divers phénomènes rapides dans des systèmes variés. L'amplificateur paramétrique optique (OPA) s'acquitte de cette tâche. Le principe de base du fonctionnement d'un amplificateur paramétrique repose sur un processus non-linéaire de conversion de fréquences vers le bas (figure 3.3). Il s'agit d'une interaction à trois ondes impliquant le champ électromagnétique de l'onde pompe et les électrons du milieu non-linéaire. Une partie du signal de pompe (ω_p) est utilisée pour générer un continuum de fréquence en le focalisant sur une mince lamelle de quartz. Une longueur d'onde de ce continuum est alors amplifiée en passant simultanément avec la pompe dans le milieu non-linéaire. La condition d'accord de phase détermine quelle fréquence sera amplifiée par le processus :

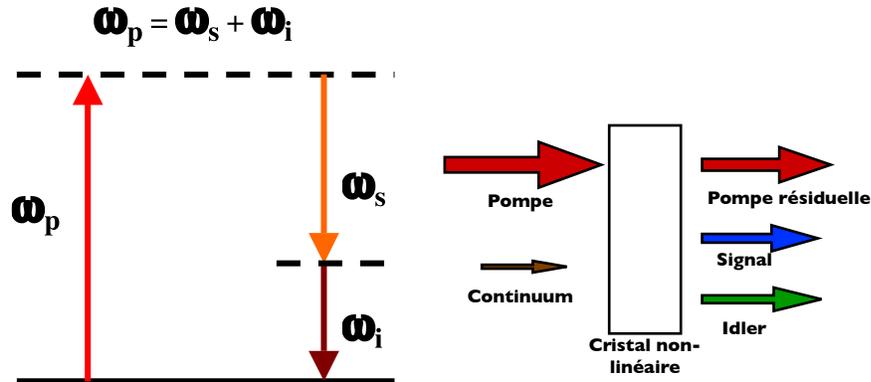


FIG. 3.3 – Principe de conversion de fréquences dans l’OPA

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (3.1)$$

En pratique, la longueur d’onde est sélectionnée en tournant une vis qui change l’angle du cristal non-linéaire par rapport aux faisceaux incidents. Chaque longueur d’onde possède un angle d’accord de phase propre.

3.3.2 Montage optique et échantillon

Nous utilisons deux des trois faisceaux de sortie de l’OPA pour les expériences de pompe-sonde, soit le *signal* et la *pompe résiduelle* (figure 3.3). Le faisceau excitateur à 800 nm sert ici de pompe et le *signal* de longueur d’onde réglable sert de sonde pour étudier la transmission à travers l’échantillon en fonction du délai entre les impulsions pompe et sonde. Ce délai est contrôlé par la ligne à retard, qui est simplement un miroir (coin de cube) monté sur un support mobile contrôlé par ordinateur. En actionnant le moteur pas à pas de la ligne à retard, on change le trajet optique de la sonde (et donc le temps

qu'elle met pour se rendre à l'échantillon) par rapport à celui de la pompe qui est fixe. La ligne à retard est munie d'un engrenage mécanique et le plus petit pas de la ligne ($1 \mu m$) correspond à un délai de 6,66 femtosecondes entre la pompe et la sonde.

L'échantillon, fixé sur un support métallique circulaire, est monté sur un autre support à trois axes permettant d'ajuster la position de l'échantillon dans l'espace par rapport aux deux faisceaux laser pompe et sonde (voir figure 3.4). Chaque faisceau est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'une lentille plan-convexe. Le positionnement de ces lentilles permet en outre d'ajuster le recouvrement des faisceaux sur l'échantillon. Ce paramètre est critique pour l'observation d'un effet de transmission induite. La sonde de faible intensité est focalisée sur l'échantillon en une tache dont le diamètre est environ $100 \mu m$. Le point focal de la sonde est placé derrière l'échantillon. Le diamètre de la tache de focalisation sur la surface de l'échantillon est approximativement $1 mm$. Cette configuration où la tache focale de la pompe est plus grande que celle de la sonde est importante puisqu'ainsi on s'assure de sonder une partie de l'échantillon uniformément excitée par la pompe (figure 3.5). De plus, il est important de ne pas focaliser le faisceau pompe directement sur l'échantillon car ce dernier serait endommagé par la pompe qui est très intense.

3.3.3 Système de détection

On mesure la lumière transmise à travers l'échantillon perpendiculairement à celui-ci en la récoltant à l'aide d'une lentille. Le faisceau pompe frappe la surface de l'échantillon avec un angle d'environ 20° de façon à ce qu'il ne soit pas détecté. La sonde est dirigée vers un monochromateur (DK-240 de CVI) afin de conserver uniquement la longueur d'onde désirée et le détecteur est placé à la sortie du monochromateur. Selon le type de mesures à effectuer et l'échantillon étudié, on choisit le détecteur qui convient. Pour les

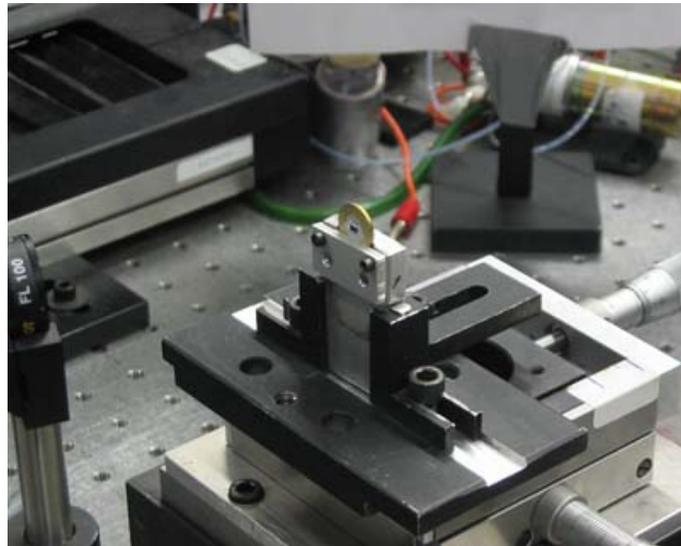


FIG. 3.4 – Échantillon collé sur un support circulaire et fixé sur un support à trois axes.

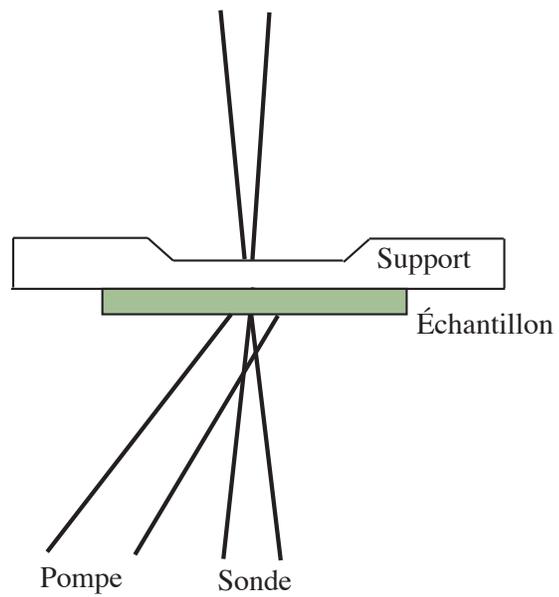


FIG. 3.5 – Recouvrement des faisceaux pompe et sonde sur l'échantillon

mesures de pompe-sonde sur les échantillons de boîtes quantiques, on utilise une cellule photoélectrique de germanium (EG&G) maintenue à la température ambiante. Enfin, le système de détection est complété par un amplificateur de courant (Stanford Research Systems SR570), relié à un échantillonneur à porte (Stanford Research Systems SR250) lui-même relié à un ordinateur qui sert à contrôler les appareils et à faire les acquisitions.

Chapitre 4

Résultats et discussion

L'essentiel des résultats obtenus est présenté dans cette section. On peut distinguer deux parties principales : 1) les résultats de mesures préliminaires qui ont permis de mettre en place le système de mesure pompe-sonde et de s'assurer de son bon fonctionnement et 2) les résultats de l'étude des échantillons d'îlots quantiques. La première partie comprend les résultats des mesures sur un colorant et sur un substrat de GaAs qui ont servi à établir les paramètres expérimentaux lors des premiers essais. Les premiers résultats obtenus avec des échantillons d'îlots quantiques sont présentés. Rappelons que ce type de mesures fut effectué ici pour la première fois dans le cadre de ce travail de maîtrise, donc beaucoup d'efforts ont été consacrés à mettre en place le système de mesure. La seconde partie, consacrée aux échantillons d'îlots quantiques d'InAs/InAlAs/InP, se veut une étude succincte par la méthode de spectroscopie pompe-sonde en transmission. Ce type d'échantillon a été très peu étudié jusqu'à maintenant et les études avec une méthode expérimentale semblable à celle utilisée ici sont d'autant plus rares. Sachant aussi que ce type de matériaux est tout désigné pour les applications en télécommunication, les

résultats obtenus présentent un intérêt certain.

4.1 Mesures préliminaires

4.1.1 Colorant

Les premiers résultats de spectroscopie pompe-sonde ont été obtenus avec un colorant nommé HITC¹ en solution aqueuse. Il est en effet plus simple de trouver les conditions expérimentales optimales du montage de spectroscopie dans ce milieu liquide que dans des échantillons solides. Il est très simple de varier la concentration de colorant et ainsi ajuster le niveau d'absorption de l'impulsion sonde. Le HITC est un colorant laser qui possède une longueur d'onde d'absorption maximale de 751 nm et une fluorescence maximale à 790 nm. Ces longueurs d'onde sont facilement accessibles à l'aide du système laser disponible. De plus, le temps de vie de l'état excité est très grand, de sorte qu'il est simple d'observer un changement dans la transmission de l'impulsion sonde. Ces facteurs font du HITC le candidat idéal pour des essais préliminaires.

On obtient en pratique un faisceau pompe à 750 nm en générant un continuum de fréquences dans une cellule d'eau. Une lame séparatrice placée à la sortie de l'amplificateur régénératif sépare le faisceau en deux parties qui serviront d'impulsions pompe et sonde. Le faisceau le plus intense est focalisé dans une cellule d'eau avec une lentille convergente. L'intensité est suffisante pour induire des effets non-linéaires dans le milieu et générer un continuum de fréquences centré autour de la longueur d'onde initiale de 800 nm. À l'aide d'un filtre interférentiel, on sélectionne une bande de longueur d'onde centrée autour de

¹hexaméthylindotricarboyanine

750 nm et on ajuste la puissance des impulsions pompe et sonde avec des filtres neutres pour obtenir un ratio pompe/sonde autour de 100. La longueur d'onde du faisceau sonde est laissée à 800 nm ici puisque le maximum de fluorescence du colorant est à 790 nm et que l'impulsion courte possède une largeur de bande d'environ 35 nm.

Cette expérience a non seulement pour but de montrer que le système est fonctionnel, mais permet également d'ajuster le zéro de la ligne à retard, c'est-à-dire le moment où les deux impulsions atteignent l'échantillon simultanément. Sur le graphique 4.1, on constate une augmentation subite de l'absorbance à un délai d'environ 5 ps entre les impulsions pompe et sonde. Le léger décalage entre cette montée du signal et le délai 0 signifie simplement que la synchronisation pompe-sonde n'est pas encore bien effectuée². Pour un délai inférieur à cette valeur, l'absorbance du colorant n'est pas affectée par l'impulsion pompe, ce qui signifie que la sonde atteint l'échantillon avant la pompe. On mesure alors simplement la transmission à travers le colorant (T_{Sp}). Pour un délai supérieur, l'absorbance augmente et atteint une valeur maximale. L'impulsion pompe de 750 nm est absorbée, les électrons relaxent rapidement vers le niveau de fluorescence (790 nm) et la population de ce niveau augmente. Si l'impulsion sonde atteint l'échantillon après l'excitation, l'absorbance mesurée sera affectée par cette excitation. En effet, l'absorbance est directement proportionnelle à la différence entre les coefficients d'absorption avec et sans pompe ($\Delta\alpha = \alpha_{Sp} - \alpha_{Ap}$, voir section 1.3). Le coefficient d'absorption sans pompe α_{Sp} est plus grand que celui en présence de l'impulsion pompe α_{Ap} , car l'absorption est moindre lorsque le niveau excité est déjà occupé. La courbe d'absorbance est donc positive. Notons que la mesure présentée ne permet pas de voir la décroissance du signal d'absorbance car le temps de recombinaison est bien supérieur à 60 ps. Ce résultat correspond bien aux

²La synchronisation des impulsions pompe et sonde se fait en déplaçant la ligne à retard. Le zéro de la ligne est fixé expérimentalement en générant la somme de fréquences dans un cristal non-linéaire. Cette étape nécessite souvent quelques itérations puisque plusieurs maxima sont habituellement visibles à des délais différents autour du maximum principal, dues aux réflexions sur les composantes optiques.

attentes et montre qu'il est possible d'effectuer des mesures résolues en temps sur un colorant en solution.

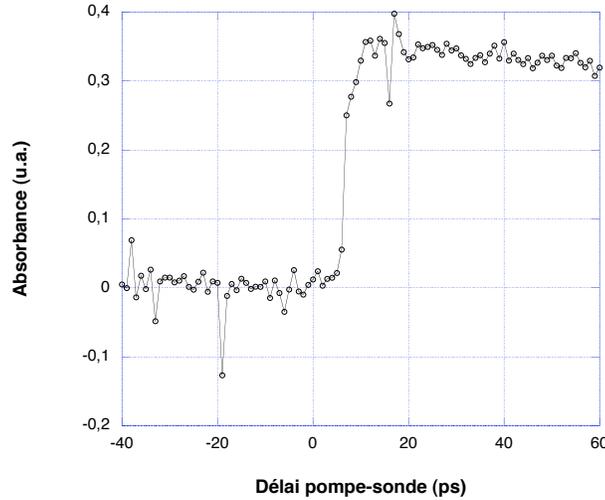


FIG. 4.1 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde sur le colorant HITC (pompe 750 nm, sonde 800 nm).

4.1.2 GaAs

L'étape suivante dans la mise en place du montage expérimental fut d'utiliser des échantillons solides. Ceci est plus difficile a priori car nous n'avons pas de contrôle sur le niveau d'absorption de l'échantillon comme dans le cas du colorant. Nous avons utilisé ici un substrat de GaAs aminci à une épaisseur d'environ $10 \mu m$ à l'aide de poudres d'alumine (voir section 3.1). Comme pour les mesures sur le colorant, le faisceau de sortie de l'amplificateur régénératif à 800 nm est séparé en deux et un des faisceaux forme un continuum dans une cellule d'eau. L'impulsion à 800 nm sert ici de pompe et la longueur d'onde de l'impulsion sonde est sélectionnée par le monochromateur. Idéalement, le monochromateur devrait être placé devant l'échantillon de façon à sélectionner une seule longueur d'onde pour l'impulsion sonde. En pratique, toutes les longueurs d'onde du continuum

atteignent l'échantillon et le monochromateur sélectionne ensuite la longueur d'onde voulue pour la détection (voir le graphique 3.2). Ceci pourrait à priori affecter les résultats, mais comme l'intensité de l'impulsion sonde est faible, son impact sur les résultats est négligeable (voir la section 4.2.3 pour l'effet de l'impulsion sonde).

Les cinétiques observées sont conformes aux attentes pour les deux valeurs d'énergie de l'impulsion sonde utilisées (graphique 4.2). Pour un échantillon massif (3D) comme le GaAs, le temps de relaxation devrait être très rapide (< 1 ps) et c'est bien ce qui est observé ici. En effet, malgré la résolution insuffisante pour extraire un temps caractéristique, le temps de montée du signal d'absorbance est très rapide, de l'ordre de quelques picosecondes pour les deux courbes. Le temps de descente du signal correspond à la recombinaison des porteurs entre la bande de conduction et la bande de valence. Après excitation optique à 800 nm, les porteurs vont rapidement relaxer vers le bas de la bande de conduction (électrons) et le haut de la bande de valence (trous). Le temps de recombinaison dépend de l'énergie de l'impulsion sonde. Pour une longueur d'onde de l'impulsion sonde de 870 nm, un temps de recombinaison long ³ est attendu. En effet, la bande interdite du GaAs à température ambiante est 1,43 eV (867 nm). Ainsi, une sonde à 870 nm permet d'étudier la population des porteurs en bas de bande. Les porteurs s'accumulent en bas de bande avant la recombinaison et le temps de recombinaison est fixé par les interactions électrons-trous-phonons. Pour 850 nm, on s'attend à observer un temps de descente du signal plus court justement parce que la relaxation des porteurs est rapide et qu'ils tendent à s'accumuler en bas de bande. La population de porteurs à 1,45 eV (correspondant à 850 nm) devrait alors décroître plus rapidement que celle à 870 nm et c'est bien ce qui est observé. Le temps de recombinaison à 850 nm, bien que plus court que celui à 870 nm, semble aussi être limité par le remplissage des états de plus basses

³Pour un échantillon pratiquement sans défauts, un temps de l'ordre de la nanoseconde est attendu.

énergies. Si ces états de basse énergie sont remplis, alors les porteurs ne peuvent relaxer et on mesure alors une cinétique assez longue à 850 nm à cause du remplissage des bandes.

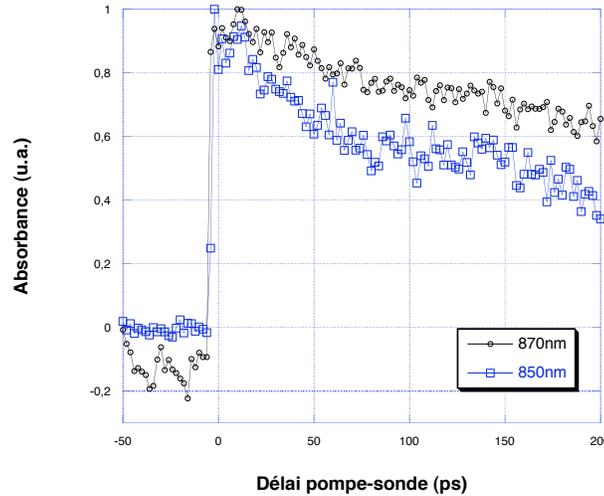


FIG. 4.2 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde sur un substrat de GaAs aminci pour des longueurs d'onde d'impulsion sonde de 850 et 870 nm

4.2 Îlots quantiques d'InAs/InAlAs/InP

Les résultats précédents indiquent qu'il est possible de faire des mesures de spectroscopie pompe-sonde sur un colorant et sur un échantillon de GaAs massif avec le montage disponible. Passons maintenant aux échantillons d'îlots quantiques. La première étape est de caractériser les échantillons disponibles par photoluminescence pour connaître l'énergie des transitions optiques dans ces structures. On cherche à étudier la dynamique des électrons et des trous en excitant à une énergie supérieure à la bande interdite des barrières et en sondant à l'énergie de la transition optique de plus basse énergie des îlots (figure 4.3). La longueur d'onde de l'impulsion sonde sera donc ajustée avec l'OPA pour correspondre à l'énergie de transition déterminée par les mesures de PL.

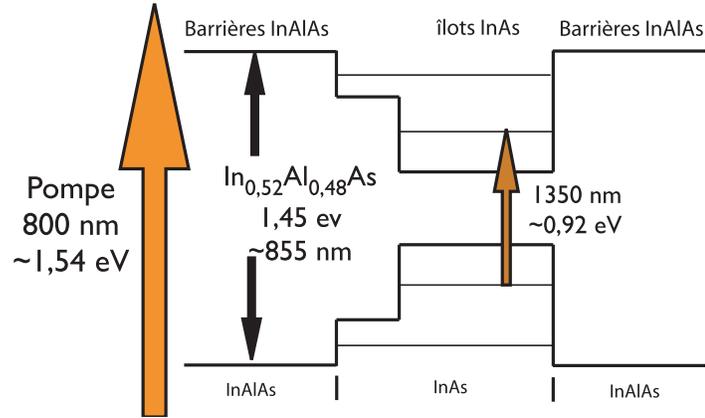


FIG. 4.3 – Principe de la mesure de spectroscopie pompe-sonde. L'impulsion pompe possède une énergie supérieure à la bande interdite des barrières et l'impulsion sonde est en résonance avec le niveau fondamental des fils.

4.2.1 Photoluminescence

Sur le graphique 4.4 on présente les courbes de PL à 300 K pour les quatre échantillons élaborés à différentes pression d'arsenic. On constate que tous ces échantillons montrent une bande d'émission relativement large centrée à 1350 nm. Les faibles signaux mesurés sont principalement dus au fait que les mesures sont effectuées à 300 K. Il est possible de diminuer le bruit en faisant des acquisitions plus longues, mais comme des mesures précises sur ces échantillons ont déjà été faites par B.Salem à basse température, nous n'avons pas jugé nécessaire de les reproduire [2]. Le but ici était simplement de repérer les transitions optiques à 300 K et de s'assurer que les échantillons sont bien similaires à ceux étudiés par B. Salem.

Sur le graphique 4.5, on présente les autres échantillons étudiés, soit ceux dont la largeur des barrières d'InAlAs est variée et ceux correspondants aux îlots dopés. Les spectres des échantillons ayant des barrières d'InAlAs de largeur différente montrent une bande d'émission centrée autour de 1350 nm, ce qui est normal puisque les conditions de croissance

sont semblables à celles pour les échantillons élaborés à différentes pression d'arsenic (un paramètre est varié, pression d'As ou épaisseur des barrières, mais le reste des paramètres demeure fixe). Nous ne présentons pas l'échantillon M749, mais des mesures antérieures montraient également une bande d'émission centrée à 1350 nm pour cet échantillon. Pour les échantillons dopés, la bande d'émission est déplacée légèrement vers les plus hautes énergies, soit autour de 1280 nm pour l'échantillon dopé n et 1320 nm pour celui dopé p .

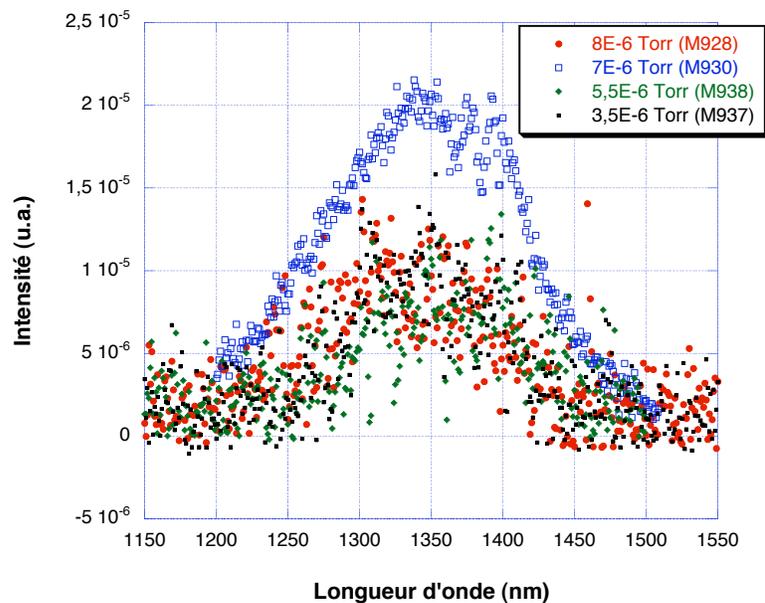


FIG. 4.4 – Photoluminescence à 300 K sur les échantillons d'îlots quantiques élaborés à différentes pression d'arsenic.

4.2.2 Premiers résultats de spectroscopie pompe-sonde

Connaissant maintenant l'énergie des transitions optiques pour chaque échantillon, on peut alors se consacrer à l'étude par spectroscopie pompe-sonde. Pour cette étude nous avons remplacé le continuum généré dans l'eau par l'amplificateur paramétrique optique. Celui-ci nous permet de contrôler la longueur d'onde de la sonde sur une plus

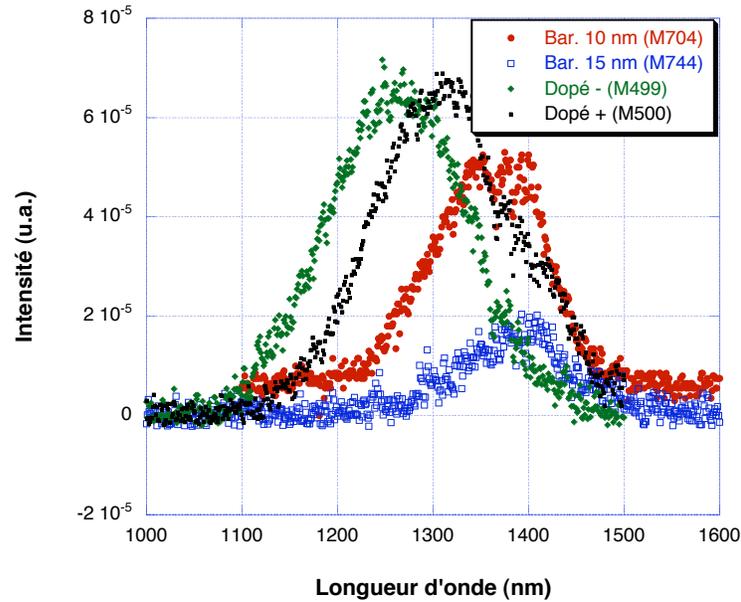


FIG. 4.5 – Photoluminescence à 300 K sur les échantillons d’îlots quantiques possédants des barrières d’InAlAs de hauteurs différentes ou un dopage.

grande gamme et d’obtenir une intensité plus élevée et un signal plus stable. De plus, le continuum ne nous permet pas d’atteindre des intensités appréciables à des longueurs d’onde supérieures à 900 nm, et les transitions qui nous intéressent se trouvent au delà de 1200 nm.

Le premier résultat obtenu sur un échantillon de fils quantiques est présenté à la figure 4.6. La longueur d’onde de l’impulsion pompe dans ce cas était 800 nm et l’impulsion sonde 1350 nm. La courbe est caractérisée par une montée rapide du signal correspondant à la capture et à la relaxation des porteurs vers les niveaux confinés des fils, puis d’une descente plus lente correspondant à la recombinaison. Il s’agit bien de l’allure générale attendue pour la cinétique sur ce type d’échantillons et nous verrons plus loin une mesure plus précise sur ce même échantillon (section 4.3.1).

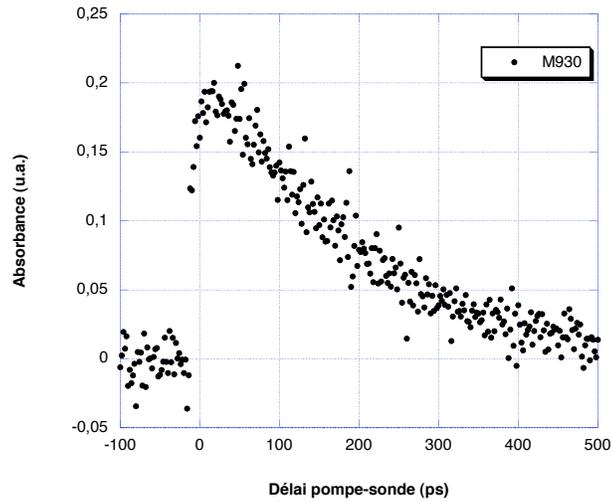


FIG. 4.6 – Premier résultat de spectroscopie pompe-sonde sur un échantillon d’îlots quantique.

4.2.3 Optimisation des paramètres expérimentaux

Le précédent graphique montre qu’il est possible de réaliser des mesures de spectroscopie pompe-sonde sur des échantillons d’îlots quantiques. On tente maintenant de caractériser un peu plus le système en variant différents paramètres expérimentaux.

Effet de la puissance de la pompe

Le premier paramètre étudié fut la puissance de l’impulsion pompe. En ajustant la puissance du faisceau pompe à l’aide d’atténuateurs, on peut vérifier l’effet de la puissance sur la cinétique (figure 4.7). On constate que la puissance de la pompe a très peu d’effet sur la cinétique. La puissance la plus élevée utilisée est environ 30 mW et même en la diminuant par un facteur 6 on n’observe pas d’effet notable sur la courbe. Pour observer un changement important en fonction de la puissance, il aurait probablement fallu varier

la puissance sur une plus grande plage de valeurs. Cependant, la puissance maximale disponible était justement 30 mW et pour des puissances inférieures à 5 mW, le système de détection disponible ne possède pas une sensibilité suffisante pour détecter le signal transmis. Par contre, la plupart des mesures réalisées par la suite ont été faites avec une puissance de pompe entre 5 et 30 mW, donc on constate que la puissance de la pompe a peu d'effet sur les courbes de dynamique pour la gamme de puissances utilisées. De plus, il est clair d'après ces mesures que la puissance de l'impulsion pompe n'est pas suffisante pour provoquer la saturation des niveaux d'énergies, ceci vient appuyer l'hypothèse du régime de faible excitation mentionnée dans la section théorique.

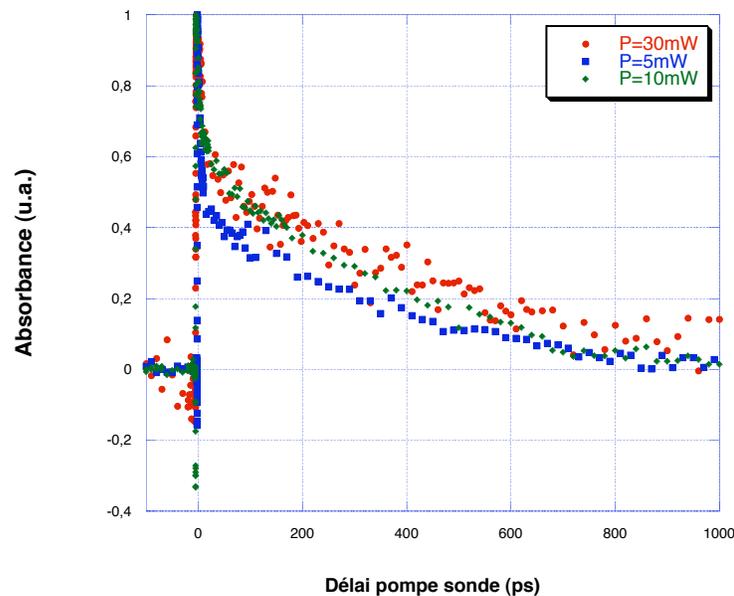


FIG. 4.7 – Effet de la puissance de l'impulsion pompe sur la cinétique pour l'échantillon d'îlots quantique M744.

Effet de la puissance de la sonde

La puissance de l'impulsion sonde est aussi un facteur très important. L'impulsion sonde doit servir à étudier l'état du système après l'excitation, donc elle ne doit pas affecter

les résultats. Il ne faut pas que la sonde soit assez puissante pour créer des porteurs en résonance avec le niveau étudié. Nous avons donc effectué le même type de mesures que précédemment en variant la puissance de la sonde à l'aide de filtres neutres. Les courbes obtenues sont présentées sur le graphique 4.8. On constate que la puissance de la sonde n'a pas d'effet sur la dynamique. Même en variant la puissance par un facteur 20, on retrouve toujours la même courbe. Ceci indique que les conditions expérimentales requises concernant la puissance de l'impulsion sonde sont remplies et que celle-ci n'influence pas la mesure.

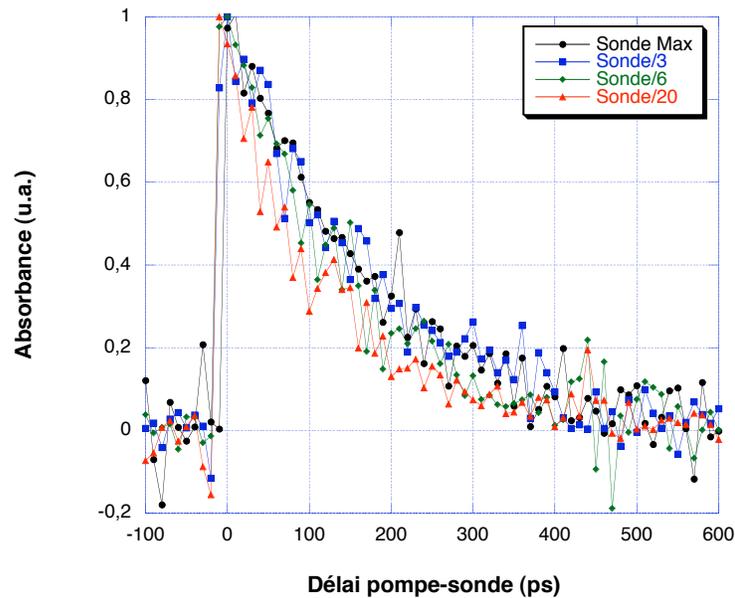


FIG. 4.8 – Effet de la puissance de l'impulsion sonde sur la cinétique sur un échantillon d'îlots quantique M930.

4.3 Étude des échantillons d'îlots quantiques

Dans cette section sont présentés les résultats des mesures de spectroscopie pompe-sonde sur les échantillons d'îlots quantiques décrits à la section 2.2 (voir le tableau 2.5). Un

total de 9 échantillons ont été étudiés. L'effet sur la dynamique des porteurs de différents paramètres de fabrication, comme la pression d'arsenic durant la croissance et l'épaisseur des barrières d'InAlAs est étudié. Parmi les échantillons disponibles, on en distingue trois qui ont été fabriqués dans des conditions similaires, excepté la pression d'arsenic. Trois autres ont été élaborés avec des épaisseurs de barrières d'InAlAs variant entre 5 et 15 nm tout en maintenant le reste des paramètres de croissance constants. Enfin, deux échantillons sont dopés, donc il est possible d'étudier l'effet du dopage sur la dynamique.

4.3.1 Effet de la pression d'arsenic

Les échantillons M930, M937 et M938 ont été fabriqués dans des conditions similaires, mais la pression d'arsenic durant la croissance a été variée pour étudier l'effet de ce paramètre sur les propriétés de la structure⁴. Les trois graphiques suivants (4.9, 4.10 et 4.11) montrent les courbes d'absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour ces quatre échantillons. Dans tous les cas, les mesures sont faites à 300 K avec une impulsion pompe à 800 nm et une impulsion sonde de 1350 nm. La puissance du faisceau pompe est d'environ 30 mW tandis que celle du faisceau sonde est inférieure à 300 μ W. La technique de lissage des données expérimentales est expliquée en annexe A.

Nous avons effectué un lissage de la montée du signal que pour les cinétiques 4.9 et 4.11 pour lesquels suffisamment de points expérimentaux ont été enregistrés. Toutefois, pour tous les échantillons un temps très rapide est observé. Pour obtenir une valeur fiable pour le lissage, il faut une meilleure résolution lors de la montée. En pratique il suffit de varier le délai pompe-sonde sur un intervalle plus petit, mais ceci demande un temps de mesure beaucoup plus long. On peut tout de même voir sur les échantillons M930 et M938 des

⁴L'échantillon M928 n'est pas présenté puisque l'épaisseur d'InAs déposée est différente.

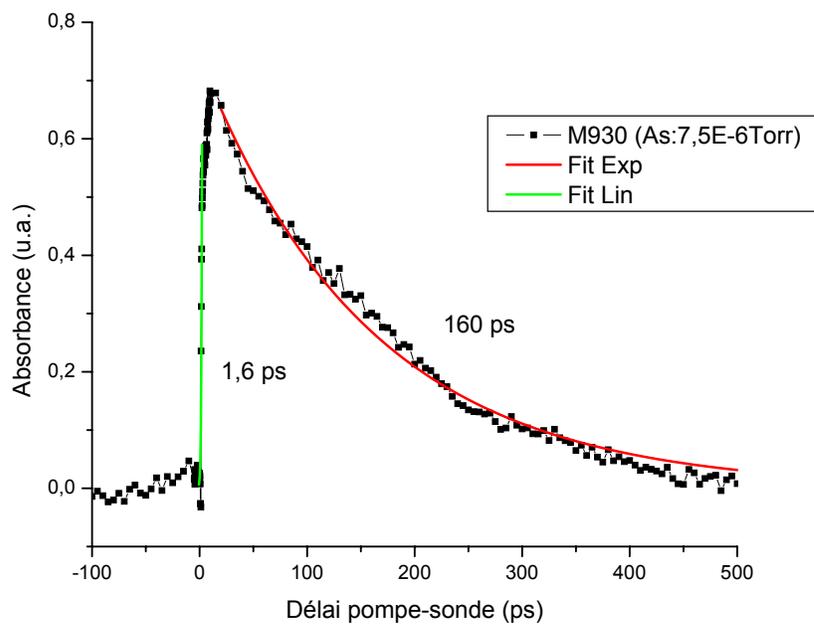


FIG. 4.9 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M930 (Pression d'arsenic de $7,5 \times 10^{-6}$ Torr.).

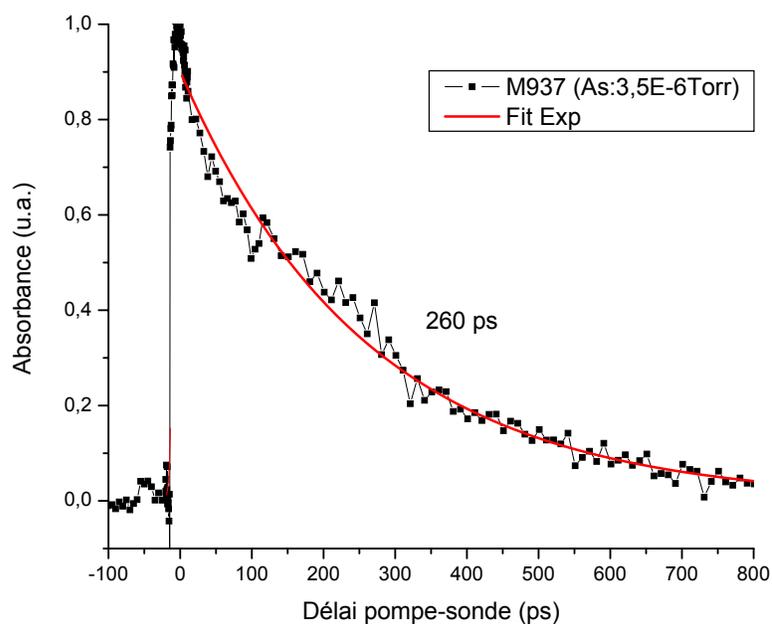


FIG. 4.10 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M937 (Pression d'arsenic de $3,5 \times 10^{-6}$ Torr.).

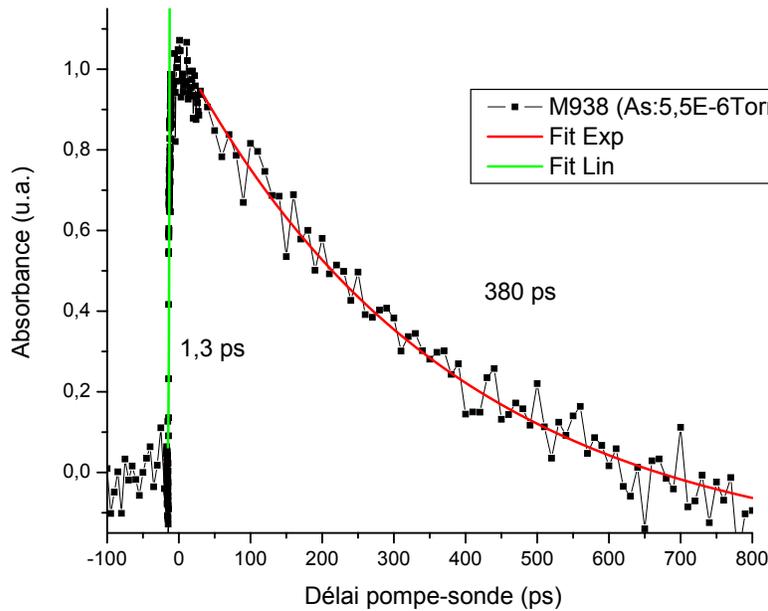


FIG. 4.11 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M938 (Pression d'arsenic de $5,5 \times 10^{-6}$ Torr.).

temps de capture/relaxation ultra-rapide de 1,6 et 1,3 ps respectivement. Ces valeurs de temps de montée sont entachées d'une incertitude qu'on estime à environ 0,9 ps. La capture/relaxation dans ces échantillons serait donc possiblement plus rapide que ceux étudiés par Péronne et *al.* (3 ps) qui sont des structures à fils quantiques similaires à celles étudiées ici mais avec des paramètres structuraux différents.[21]. Dans leur cas, les barrières d'InAlAs mesurent 50 nm, l'épaisseur d'InAs déposée est différente et la densité est légèrement plus faible, soit autour de $3 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ (par rapport à $4,5 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ pour nos échantillons). Les paramètres structuraux influencent donc les temps mesurés, nous verrons plus loin des temps de capture plus grands pour des échantillons similaires mais avec des paramètres de croissance légèrement différents.

Les temps de recombinaison ont été déduits de la descente des cinétiques obtenues pour les trois échantillons élaborés à différentes pressions d'arsenic. Ces temps varient de 160

à 380 ps et le lien entre la pression d'arsenic et le temps de relaxation ne semble pas évident a priori. Les paramètres de croissance pour ceux-ci sont identiques à l'exception de la pression d'arsenic. Le temps de recombinaison le plus long est celui de l'échantillon élaboré à $5,5 \times 10^{-6}$ Torr. Tel que mentionné à la section 1.2.2, le temps de recombinaison est un indice sur la présence de défauts dans la structure. Un temps de recombinaison court suppose un nombre important de recombinaisons non-radiatives et celles-ci sont souvent associées avec des défauts. On sait que la pression d'arsenic durant la croissance est un facteur déterminant de la qualité des boîtes ou des fils produits[19], ainsi il est très probable que le nombre de défauts dans la structure soit relié à la pression d'arsenic. Dans cette hypothèse, la meilleure valeur de pression à utiliser lors de la croissance est celle qui donne le temps de recombinaison le plus long. Le temps de recombinaison de 380 ps obtenu pour l'échantillon soumis à une pression de $5,5 \times 10^{-6}$ Torr est le plus grand et suggère qu'il s'agit de la pression optimale de croissance (parmi les échantillons disponibles). Une pression d'arsenic plus faible réduit légèrement le temps de recombinaison (260 ps pour l'échantillon à $3,5 \times 10^{-6}$ Torr) alors qu'une pression plus élevée réduit encore plus le temps de recombinaison (160 ps pour l'échantillon à $7,5 \times 10^{-6}$ Torr).

Des études de photoluminescence ont été effectuées sur ces mêmes échantillons au Laboratoire de Physique de la Matière de l'INSA de Lyon [2]. Il est alors intéressant de comparer les résultats de cette étude avec les résultats de spectroscopie pompe-sonde présentés ici. La figure 4.12 présente les courbes de PL des trois échantillons discutés précédemment (M930, M937 et M938). On note que la pression d'arsenic lors de la croissance affecte considérablement la largeur à mi-hauteur des bandes de PL, même à basse température. La largeur à mi-hauteur dans les îlots quantiques auto-assemblés est reliée à l'inhomogénéité en taille des îlots. En effet, la fluctuation de taille des îlots est responsable de la grande largeur à mi-hauteur observée sur ces échantillons puisque des

îlots de tailles différentes émettent à des longueurs d'onde légèrement différentes, donnant lieu à un spectre large. Il est impossible aujourd'hui de contrôler parfaitement la taille de toutes les structures produites par auto-assemblage, ainsi il y aura toujours une distribution de taille d'îlots. La photoluminescence étudie un nombre très grand d'îlots quantiques, sauf si on décide de limiter volontairement le nombre d'îlots accessibles en créant des masques ou des mésas par exemple[22]. La largeur à mi-hauteur des courbes de PL est donc directement reliée à l'homogénéité des îlots, une largeur plus faible indiquant un échantillon plus uniforme. Pour l'échantillon élaboré à une pression de $5,5 \times 10^{-6}$ Torr (M938), une largeur à mi-hauteur de 92 meV est mesurée, alors que pour l'échantillon fabriqué à une pression de $7,5 \times 10^{-6}$ Torr (M930) on trouve 122 meV. Ces mesures indiquent donc qu'une pression d'arsenic de $5,5 \times 10^{-6}$ Torr est optimale pour obtenir la meilleure uniformité possible. Bien que les courbes de PL ne permettent pas de confirmer l'hypothèse précédente sur l'effet de la pression d'arsenic et la présence de défauts, les résultats sont cohérents avec les observations de spectroscopie pompe-sonde. Le plus long temps de recombinaison mesuré (360 ps pour M938) correspond à l'échantillon le plus uniforme et donc potentiellement celui qui possède le moins de défauts. Également, le temps le plus court (160 ps pour M930) est observé sur l'échantillon le moins uniforme où la présence de défauts dus aux conditions de fabrication est la plus probable.

4.3.2 Effet de l'épaisseur des barrières d'InAlAs

Le second paramètre de fabrication important qu'il est possible d'étudier avec les échantillons disponibles est l'épaisseur des barrières d'InAlAs entre les plans de fils quantiques. Les échantillons M749, M704 et M744 possèdent tous 10 plans de fils et des barrières de 5, 10 et 15 nm respectivement. Les graphiques 4.13, 4.14 et 4.15 montrent les cinétiques

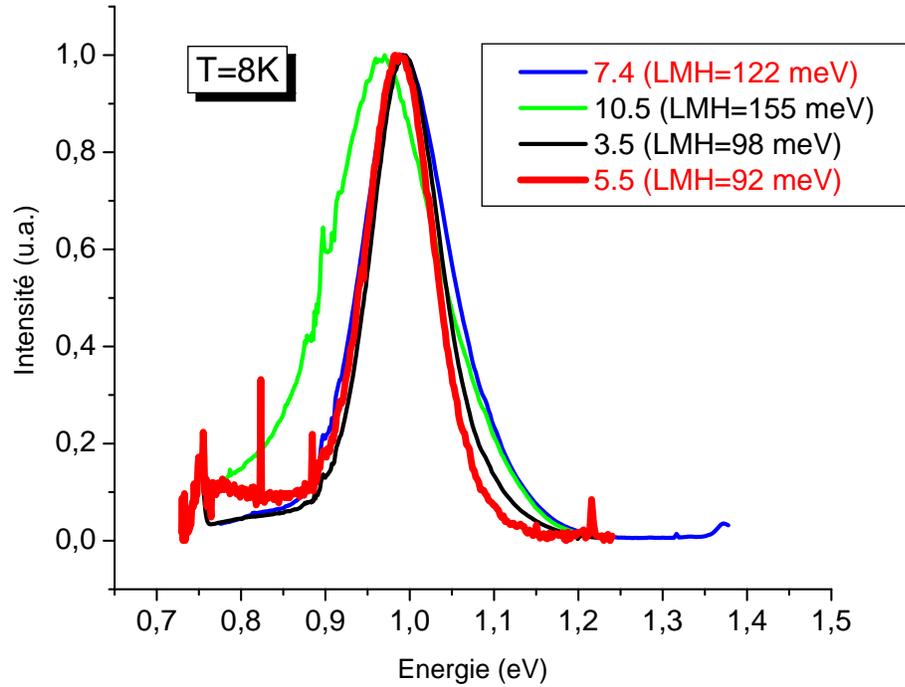


FIG. 4.12 – Photoluminescence à 8 K sur les échantillons élaborés à différentes pression d’arsenic. (M930 : $7,5 \times 10^{-6}$ Torr, M937 : $3,5 \times 10^{-6}$ Torr, M938 : $5,5 \times 10^{-6}$ Torr) [2]

obtenues en spectroscopie pompe-sonde sur ces trois échantillons. Les mesures sont faites à 300 K avec une impulsion pompe de 800 nm, une impulsion sonde de 1350 nm et les mêmes puissances de faisceaux que précédemment. On remarque que le temps de montée du signal est très rapide et approximativement le même pour les trois échantillons, l’incertitude sur le lissage étant ici d’environ 1 ps. Notons que ce temps est plus long que dans le cas des échantillons élaborés à différentes pressions d’arsenic. Cette différence pourrait être liée aux paramètres de croissance légèrement différents, notamment l’épaisseur d’InAs déposée qui est plus faible ici. Par exemple, pour l’échantillon M930 (pression d’As $7,5 \times 10^{-6}$ Torr, barrières 10 nm, InAs déposé 9 Å), un temps de montée de 1,6 ps a été obtenu alors que pour l’échantillon M704 (Pression 8×10^{-6} Torr, barrières 10 nm, InAs

déposé $10,5 \text{ \AA}$), le temps de montée est de 5 ps. L'épaisseur d'InAs déposée affecte la taille des structures produites par auto-assemblage, en déposant plus de matériel on produit des îlots plus grands. On peut donc supposer que ceci affecte également la densité d'îlots dans les échantillons, ce qui influence par conséquent le temps de capture/relaxation. En effet, le temps de capture/relaxation est plus grand pour un échantillon à faible densité d'îlots car le temps de transport des porteurs dans la couche de mouillage est plus grand. La précision des lissage est cependant insuffisante pour vraiment quantifier l'influence de ce processus sur ce temps de capture/relaxation.

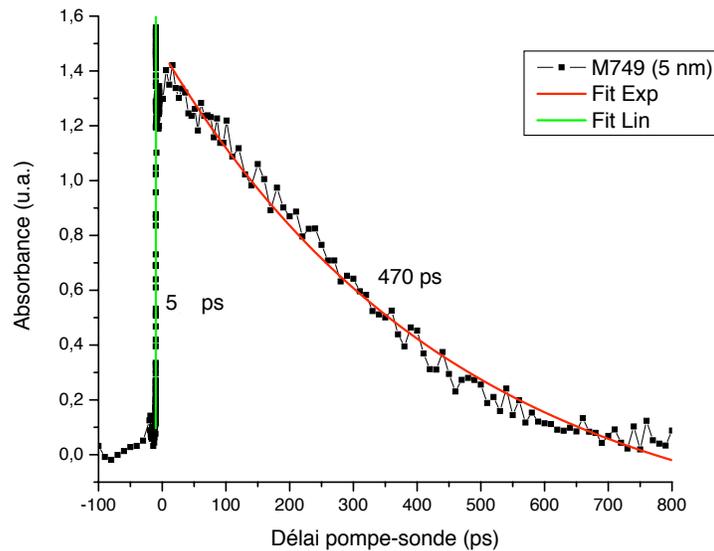


FIG. 4.13 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M749 (Barrières de 5 nm).

Comme pour la série d'échantillons précédents (section 4.3.1), le temps de recombinaison des porteurs varie d'un échantillon à l'autre. Le temps le plus long est 680 ps et correspond à l'échantillon avec des barrières de 10 nm. On peut interpréter ceci de la même façon que précédemment en supposant que cet échantillon présente moins de défauts agissant comme des centres de recombinaison non-radiatifs. D'après ces résultats, l'épaisseur optimale pour les barrières d'InAlAs serait donc 10 nm. Puisque les mesures sont faites

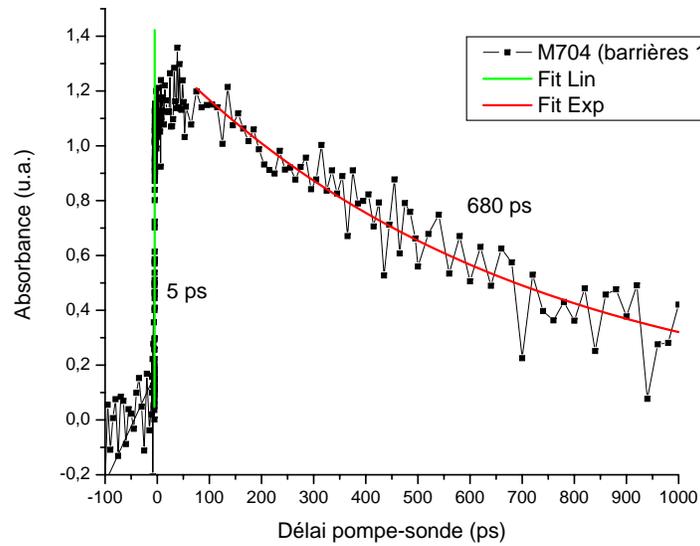


FIG. 4.14 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M704 (Barrières de 10 nm).

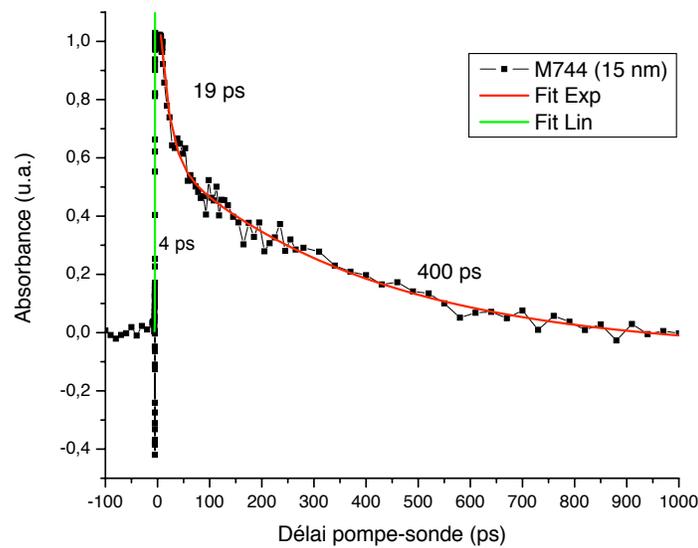


FIG. 4.15 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M744 (Barrières de 15 nm).

sur un nombre restreint d'échantillons, il faudrait d'autres mesures pour quantifier plus précisément l'effet de ce paramètre sur les propriétés optiques et structurales.

Sur le graphique 4.15, on distingue deux particularités qui n'ont pas été observées sur d'autres échantillons jusqu'à maintenant. D'abord, la partie négative du signal au délai 0. Cet effet est observable sur cet échantillon uniquement et est reproductible, ce n'est donc pas seulement un artefact expérimental. Plusieurs mesures ont été faites sur cet échantillon et à chaque fois on retrouve cette chute d'absorbance au délai 0. En agrandissant la zone autour de 0, on peut distinctement voir une chute du signal, suivie de la montée rapide. Il s'agit probablement d'effets cohérents impliquant les impulsions pompe et sonde. L'interférence entre les faisceaux pompe et sonde pourrait faire en sorte que le faisceau sonde est diffracté et ceci expliquerait la diminution du signal. Cette hypothèse n'explique pas cependant pourquoi ceci est visible seulement sur l'échantillon M744. Des mesures plus approfondies s'imposent pour bien comprendre ce phénomène. La seconde particularité de cet échantillon est la présence de deux temps caractéristiques pour la recombinaison. Un temps court (19 ps) pour la recombinaison rapide immédiatement après la relaxation et un temps long, du même ordre de grandeur que pour les deux autres échantillons (400 ps). Ce résultat pourrait signifier que cet échantillon présente deux niveaux d'énergies de confinement dans les fils quantiques. Si un des niveaux était situé à une énergie légèrement supérieure à 1350 nm et un autre à une énergie légèrement inférieure, alors il serait possible de voir la contribution des deux niveaux dans la courbe à 1350 nm. Le niveau d'énergie supérieur devrait avoir un temps de vie plus court que le niveau fondamental, ce qui expliquerait la cinétique observée. Nous avons donc entrepris de vérifier cette hypothèse en faisant des mesures en fonction de la longueur d'onde de l'impulsion sonde.

4.3.3 Étude en fonction de la longueur d'onde de l'impulsion sonde

La présence de deux temps caractéristiques pour la recombinaison sur l'échantillon M744 (graphique 4.15) pourrait être liée par la présence de deux niveaux confinés d'électrons ou de trous dans les îlots quantiques. Des mesures à différentes longueurs d'onde de l'impulsion sonde ont été réalisées pour vérifier l'effet de ce paramètre. Les graphiques 4.16 et 4.17 présentent les résultats obtenus pour une impulsion sonde de 1250 nm et 1500 nm respectivement.

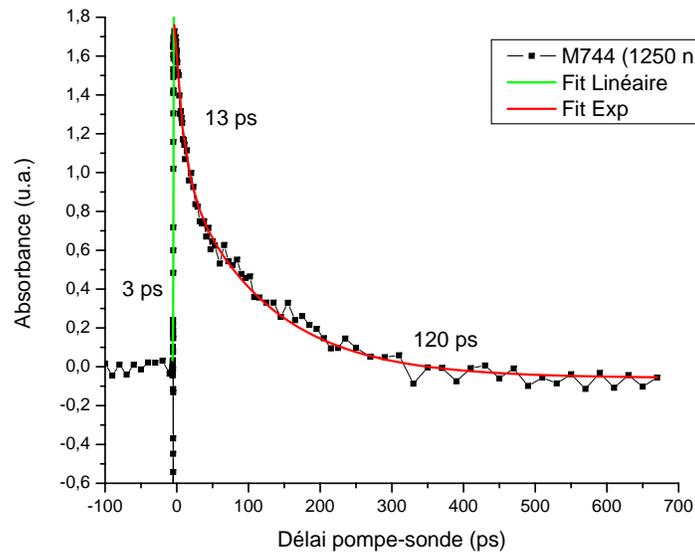


FIG. 4.16 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M744 pour une impulsion sonde de 1200 nm.

Les deux graphiques montrent un temps de capture/relaxation très court. Malheureusement, nous n'avons pas suffisamment de données expérimentales pour faire un lissage précis de la montée du signal à 1500 nm. Si deux niveaux discrets d'énergie existaient

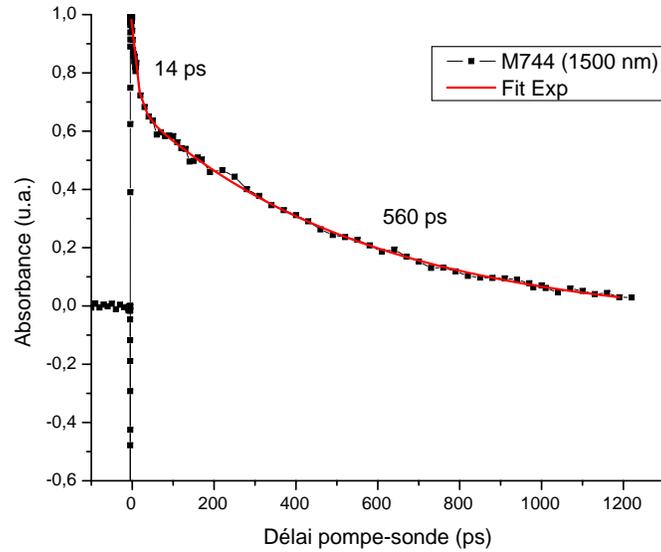


FIG. 4.17 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M744 pour une impulsion sonde de 1500 nm.

dans ces îlots quantiques, on devrait mesurer un temps de capture plus rapide pour le niveau excité (1250 nm) que pour le niveau fondamental (1500 nm). Une comparaison entre le temps de montée pour ces deux valeurs d'énergie de l'impulsion sonde permettrait d'appuyer ou non cette hypothèse. Il faudrait toutefois refaire ces mesures avec une plus grande précision.

Contrairement aux attentes, l'échantillon M744 présente deux temps de recombinaison pour toutes les longueurs d'onde d'impulsion sonde étudiées. En effet, les graphiques 4.15, 4.16 et 4.17 montrent tous un temps court très semblable d'une mesure à l'autre (19, 13 et 14 ns) et un temps long qui varie considérablement avec la longueur d'onde utilisée. Selon l'hypothèse de départ, le temps de recombinaison court observé sur le graphique 4.15 pourrait être la contribution du niveau $n = 2$ qui se vide rapidement au profit du niveau fondamental. Puisque ce temps court est approximativement le même

pour toutes les longueurs d'onde, il est certainement dû à un autre phénomène. Nous suggérons la recombinaison non-radiative par des défauts présents dans la structure. Ces défauts pourraient être situés dans les fils quantiques ou même dans les barrières, car les mesures sont effectuées à 300 K et l'énergie thermique est suffisante pour réactiver les porteurs vers les barrières. Il semble aussi que l'influence de ces défauts puisse changer en fonction du temps. On peut imaginer que le fait de charger ces défauts les rend moins propices à piéger de nouveaux porteurs. Ainsi, une fois que ces défauts sont saturés, la cinétique devient comparable à celle des autres échantillons.

Niveaux d'énergie

Attardons nous maintenant au temps de recombinaison long sur les graphiques 4.15, 4.16 et 4.17. Le temps de recombinaison long pour la mesure à 1250 nm est considérablement plus faible que celui à 1350 nm, qui est lui même plus faible que celui à 1500 nm. Ce comportement peut être expliqué par la présence de deux niveaux discrets d'énergie dans les fils quantiques. En effet, les porteurs créés dans les barrières relaxent d'abord vers le niveau $n = 2$ (correspondant à 1250 nm) puis relaxent ensuite vers le niveau fondamental (correspondant à 1500 nm). Le temps de vie de l'état excité est plus faible que celui de l'état fondamental, où s'accumulent les porteurs avant la recombinaison. Cette idée est schématisée à la figure 4.18. On représente deux îlots de tailles différentes compatibles avec la fluctuation en taille de ces îlots fabriqués par la technique d'auto-assemblage. Certains îlots quantiques plus gros pourraient posséder deux niveaux d'énergie accessibles aux porteurs, correspondant à 1250 nm et 1500 nm. Les îlots de taille moyenne dans la distribution possèdent potentiellement un seul niveau d'énergie accessible correspondant à 1350 nm, ce qui explique la courbe du graphique 4.15 et les courbes de photoluminescence

à 300 K (section 4.2.1).

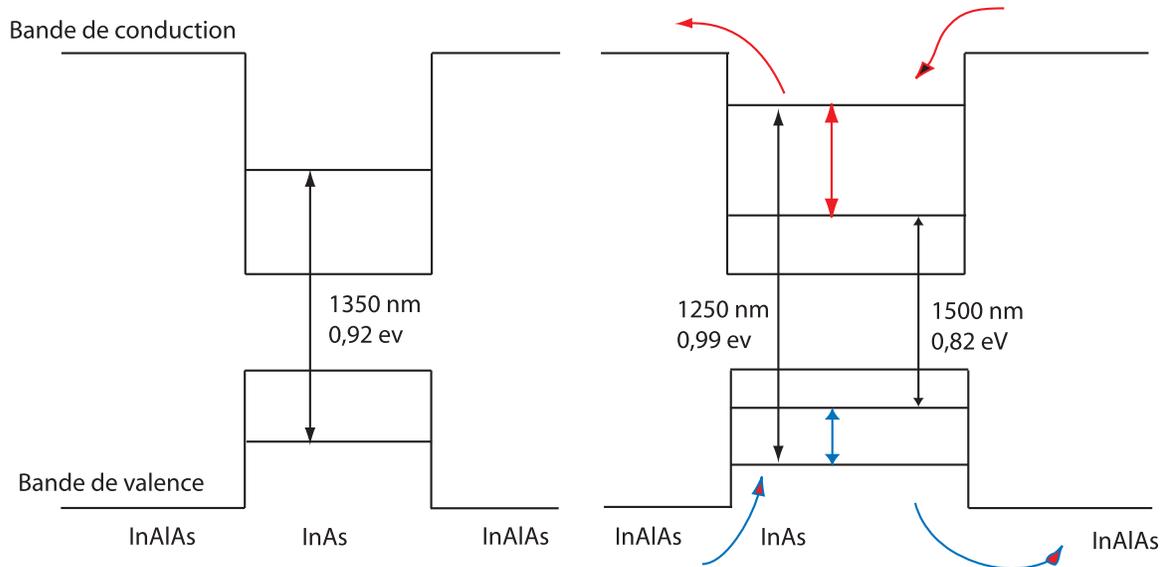


FIG. 4.18 – Modèle à 2 niveaux d'énergie dans les fils quantiques pour l'échantillon M744.

Des mesures de photoluminescence effectuée à 8 K par B.Salem[2] tendent à soutenir la même conclusion. Le spectre de PL sur l'échantillon M744 est présenté au graphique 4.19. Le lissage à deux gaussiennes en rouge reproduit très bien les données expérimentales en noir. Un lissage à une seule gaussienne est illustrée également afin de montrer que le lissage est définitivement mieux avec deux gaussiennes. Sans être une preuve de la présence d'un niveau excité dans les fils quantiques, ce résultat vient au moins appuyer cette hypothèse.

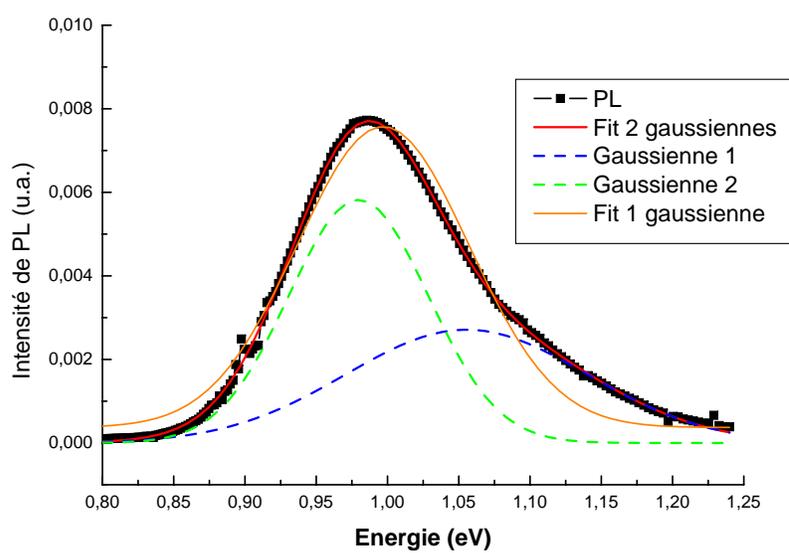


FIG. 4.19 – Photoluminescence à 8 K sur l'échantillon M744[2].

Familles de fils

L'hypothèse précédente permet d'expliquer le temps de recombinaison long observé sur les cinétiques à différentes longueurs d'ondes de l'impulsion sonde, mais ce n'est pas la seule explication possible. En effet, les temps de recombinaison longs observés à 1250 nm, 1350 nm et 1500 nm pourraient être associés à des familles ou groupes d'îlots quantiques de tailles différentes mais possédant toujours un seul niveau confiné pour les électrons et les trous. Pour des îlots de plus petite taille, le niveau discret d'énergie permis est plus élevé à cause des effets de confinement. Au contraire, pour des îlots de taille plus grande, le niveau d'énergie permis est plus bas (voir figure 4.20). On peut donc imaginer que la fluctuation en taille dans cet échantillon est telle qu'il existe deux familles principales d'îlots. Entre autres, une famille d'îlots de faible taille donnant lieu à une énergie de confinement de 0,99 eV (1250 nm) et une seconde famille avec un niveau à 0,82 eV (1500 nm). Le temps de vie plus faible observé à 1250 nm s'explique par la redistribution des porteurs qui s'effectue à 300 K. Les porteurs excités dans les barrières d'InAlAs relaxent et occupent les niveaux des fils très rapidement, mais sont aussi réémis vers les barrières sous activation thermique. Puisque le niveau d'énergie permis des îlots de faible taille est plus élevé, la réémission des porteurs vers les barrières est favorisée par rapport aux îlots de taille plus grande, dont le niveau d'énergie est plus bas. Un équilibre thermodynamique s'établit alors et en moyenne le niveau à 1500 nm contient plus de porteurs et possède donc un temps de vie plus long. Ceci correspond bien aux observations de spectroscopie pompe-sonde et de PL. Cette interprétation est donc valide, au même titre que la précédente. Avec les mesures disponibles, il n'est pas possible de distinguer quelle interprétation est la bonne, il faudrait pour cela effectuer des mesures d'excitation de photoluminescence (PLE).

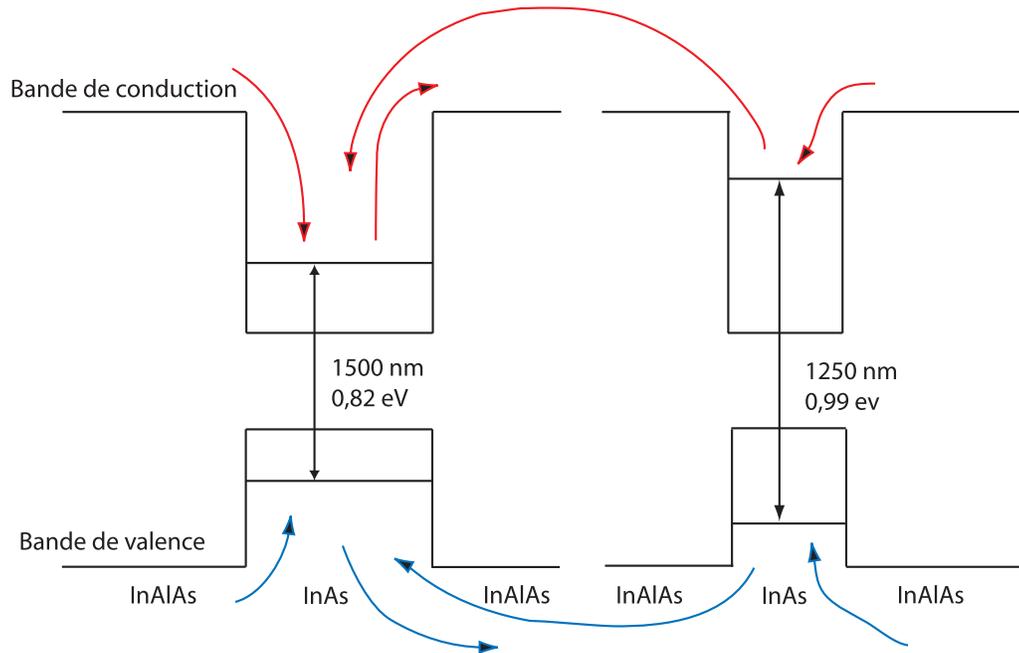


FIG. 4.20 – Modèle à 2 familles de fils quantiques pour l'échantillon M744.

4.3.4 Échantillons dopés

Parmi les échantillons disponibles, on trouve deux échantillons dopés. Le premier (M499) est de type n et le second (M500) de type p . Ceci nous permet de vérifier l'effet du dopage sur la dynamique des porteurs. Le dopage est réalisé par une technique appelée dopage *delta* qui consiste à déposer un matériau donneur ou accepteur à un moment précis durant la croissance des barrières d'InAlAs. Ici 5×10^{11} atomes par centimètre carré de dopants ont été déposés à 2 nm des plans de fils d'InAs. L'échantillon M499 est dopé avec du silicium, ce qui lui confère un dopage n , et l'échantillon M500 est dopé avec du béryllium, donnant un dopage p .

Ces échantillons dopés possèdent exactement les mêmes paramètres de croissance, à l'exception du dopage. Ceci nous permet alors de voir l'effet d'un nombre supplémentaire

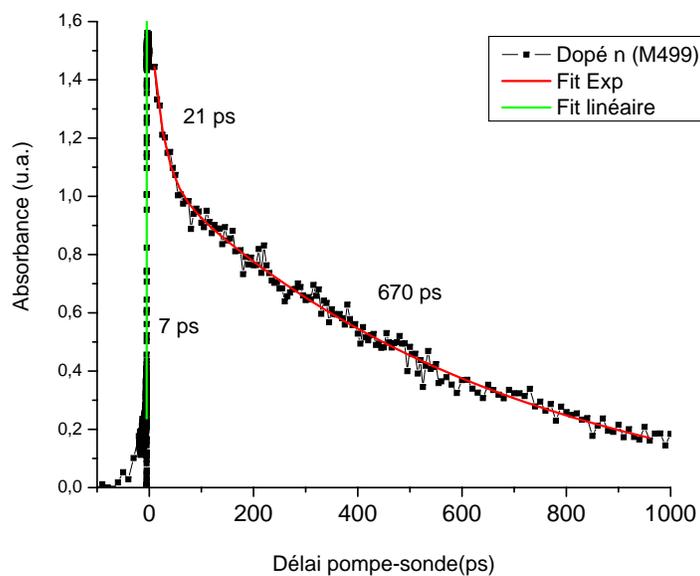


FIG. 4.21 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M499 (dopé n).

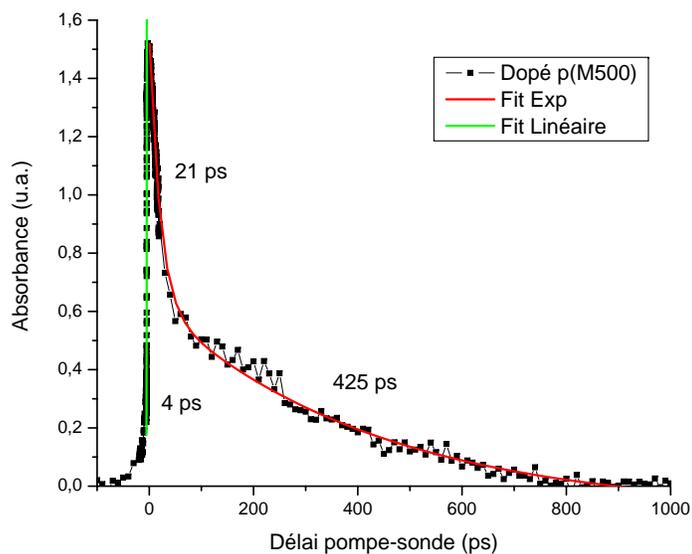


FIG. 4.22 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M500 (dopé p).

d'électrons ou de trous sur la dynamique. Le résultat obtenu pour l'échantillon M499 (dopé n) est présenté à la figure 4.21 et celui pour l'échantillon M500 (dopé p) à la figure 4.22. Deux temps caractéristiques, un temps court et un long, doivent être pris en compte pour décrire la décroissance du signal d'absorbance. Ce comportement a également été observé sur l'échantillon M744 (figure 4.15) et avait été attribué à des défauts dans la structure. Cet argument est tout à fait plausible dans ce cas, puisque les échantillons dopés présentent pratiquement toujours des défauts causés par l'introduction d'atomes de taille différente dans le réseau cristallin. On pourrait donc attribuer le temps de recombinaison court présent dans les cinétiques de ces deux échantillons au piégeage rapide des porteurs par ces défauts. Les temps obtenus sont identiques pour les deux échantillons, ce qui indique la présence de défauts de même nature dans ces échantillons fabriqués dans des conditions semblables.

Le temps de recombinaison long est différent d'un échantillon à l'autre. Le temps pour l'échantillon dopé p (425 ps) est plus court que pour celui dopé n (670 ps). Ce comportement pourrait peut-être s'expliquer en considérant la structure de bande des échantillons d'InAs sur InAlAs. En effet, la discontinuité de la bande de conduction dans ce système est plus grande que celle de la bande de valence (voir figure 4.23). Les porteurs injectés dans les barrières sont capturés dans les fils quantiques et peuvent être réactivés vers les barrières à 300 K. Pour ce faire, les électrons doivent franchir une barrière de potentiel plus grande que celle pour les trous. Par conséquent, le temps de recombinaison sera essentiellement limité par le temps de vie des trous qui sont facilement réactivés vers les barrières d'InAlAs où la recombinaison non-radiative avec les défauts est probable. D'autre part, l'échantillon dopé p possède des trous en surplus, donc le temps de vie sera associé surtout au temps de recombinaison des électrons (dans la limite où le nombre de trous en excès introduit par l'excitation optique est inférieur à la concentration de

trous initiale due au dopage, la population de trous varie peu dans le temps). L'asymétrie de discontinuité de bandes combinée au type de dopage de la structure devrait donc se traduire par l'observation d'un temps de recombinaison plus long dans le cas des îlots quantiques dopés p . C'est le contraire qui est observé ici. On peut supposer que des effets de charge viennent modifier les prédictions. En effet, un surplus d'électrons (trous) dans les fils peut modifier l'interaction électrons-trous et les règles de sélection et ainsi affecter de façon non-triviale le temps de vie des porteurs. Une connaissance précise du nombre de charges en excès introduites par le dopage et du nombre de porteurs photo-injectés serait nécessaire pour comprendre cet effet du dopage sur les temps de relaxation longs. Un appui théorique est nécessaire pour aborder ce problème de la recombinaison de complexes multi-excitoniques.

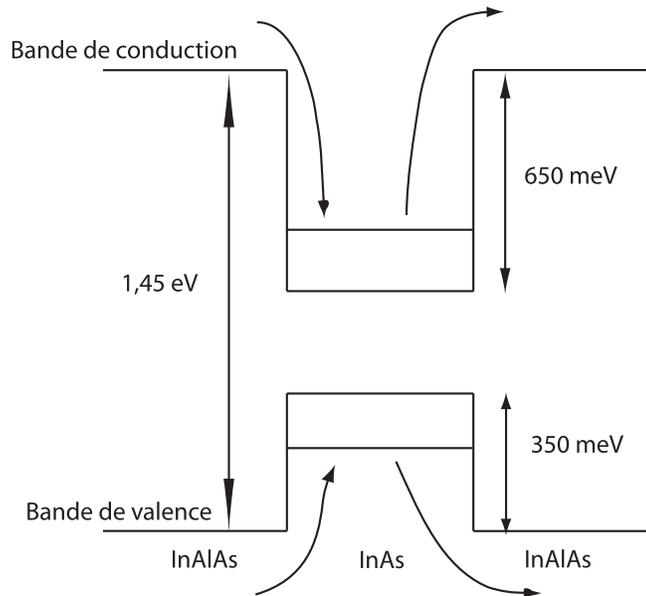


FIG. 4.23 – Discontinuité de bande de conduction et de valence pour le système InAs/InAlAs.

4.3.5 Étude en fonction de la température

Le dernier paramètre étudié mériterait probablement à lui seul une étude approfondie. Nous avons vérifié l'effet de la température sur la dynamique des porteurs pour l'échantillon M930. Malheureusement il a été impossible, avec le matériel disponible au moment de la réalisation des expériences, d'effectuer des mesures sur une gamme étendue de température. Nous avons donc comparé les cinétiques obtenues à 77 et 300 K. La mesure à 300 K a été réalisée avec l'échantillon placé dans le même cryostat que celui utilisé pour la mesure à 77 K. Ainsi, les paramètres expérimentaux sont demeurés fixes pour les deux séries de mesures.

Les résultats obtenus sont présentés sur le graphique 4.24. Le temps de montée ne saurait être discuté ici car le nombre de points expérimentaux est trop faible, mais ce qui distingue vraiment les deux courbes est le temps de recombinaison. En effet, la recombinaison est beaucoup plus rapide à basse température qu'à température ambiante. Il est possible de discerner deux temps de recombinaison pour la mesure à basse température alors qu'un seul a déjà été associé à la recombinaison à 300 K sur cet échantillon à la section 4.3.1 (graphique 4.9). Le temps court sur la courbe à 77 K pourrait avoir la même origine que celui observé pour les échantillons dopés M499 et M500. Celui-ci a été associé au piégeage par des défauts dans la structure. Il est intéressant de noter que l'échantillon M930 est également celui qui présentait le temps de recombinaison à 300 K le plus court. Cet effet a été attribué à la présence de défauts dans la structure.

Pour expliquer les données à 77 K, il est possible de supposer que des défauts profonds piègent les porteurs et servent de centres de recombinaison non-radiatifs. Ces pièges sont rapidement occupés à 77 K et la recombinaison est rapide jusqu'à la saturation des

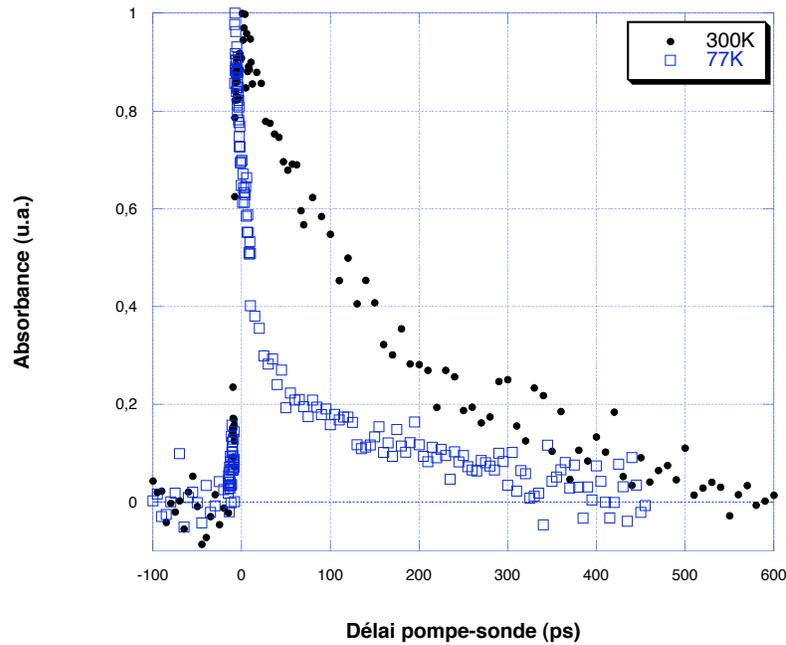


FIG. 4.24 – Absorbance en fonction du délai pompe-sonde pour l'échantillon M930 à 77 et 300 K.

pièges. La recombinaison se poursuit ensuite avec un temps caractéristique plus long. Étant donné que le signal d'absorbance est important autour du délai zéro, ceci signifie que les porteurs relaxent d'abord jusqu'au niveau fondamental des fils, puis sont ensuite réactivés vers les pièges. Pour que cette explication soit cohérente avec les mesures à 300 K, il faut que les pièges aient une certaine profondeur critique. En effet, ils doivent être tels qu'à 77 K, l'énergie thermique est suffisante pour vider les fils au profit des pièges, mais insuffisante pour que les porteurs piégés retournent vers les barrières puis vers le niveau fondamental des fils quantiques. À 300 K, tout se passe comme si ce type de pièges n'apportait aucune contribution à la dynamique des porteurs (voir la figure 4.25). Toutes ces considérations sur la profondeur des pièges sont certainement difficiles à justifier avec uniquement les deux mesures présentées. Des mesures supplémentaires et plus précises à des températures intermédiaires sont nécessaires. Des mesures en fonction

de la température sur les autres échantillons disponibles seraient aussi utiles pour justifier les hypothèses émises précédemment.

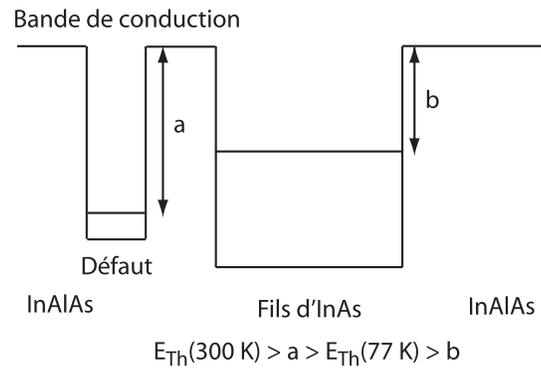


FIG. 4.25 – Illustration des niveaux d'énergie des défauts et des fils quantiques.

Conclusion

Dans ce travail de maîtrise nous avons réussi à mettre en place un système de spectroscopie pompe-sonde fonctionnel et à l'utiliser pour étudier la dynamique des porteurs dans des fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP. Les valeurs de temps de capture/relaxation ultra-courts obtenus (~ 2 ps) confirment la bonne résolution temporelle du montage utilisé.

Les résultats de l'étude de différents échantillons de fils quantiques d'InAs/InAlAs/InP montrent que les paramètres de croissance des structures affectent la dynamique des porteurs. Dans un premier temps, nous avons noté une corrélation entre le temps de recombinaison et la largeur à mi-hauteur des bandes d'émission des fils quantiques pour la série d'échantillons élaborés à différentes pressions d'arsenic. Les faibles temps de recombinaison sont associés à la présence d'un nombre de défauts plus important dans ces structures. Ainsi, il existe une pression d'arsenic optimale ($5,5 \times 10^{-6}$ Torr) pour laquelle la densité de défauts semble plus faible et la fluctuation en taille des fils est réduite.

Dans un deuxième temps, les résultats ont montré que la hauteur des barrières d'InAlAs qui séparent les plans de fils quantiques a aussi une influence importante sur la dynamique des porteurs. Il existe une épaisseur de barrière pour laquelle le temps de recombinaison

est plus long, ce qui pourrait indiquer que le nombre de défauts est plus faible pour cette structure. Le temps de recombinaison de 680 ps obtenu sur cet échantillon qui possède des barrières de 10 *nm* indique que cette épaisseur de barrières serait l'épaisseur optimale.

Dans le cas particulier de la structure possédant la plus grande épaisseur de barrières d'InAlAs entre les plans de fils, nos résultats montrent une claire dépendance du temps de recombinaison en fonction de la longueur d'onde de l'impulsion sonde. Pour une impulsion sonde à 1250 *nm*, un temps de recombinaison de 120 ps est observé alors que pour une impulsion sonde à 1500 *nm* on obtient 560 ps. Ceci pourrait signifier la présence de deux niveaux d'énergie dans les fils quantiques, ou bien de deux familles de fils de tailles différentes.

L'étude sur les échantillons dopés montre que l'introduction de dopants dans la structure influence la dynamique. Les résultats obtenus montrent deux temps de recombinaison. Le temps court (21 ps) est le même pour les deux échantillons et est vraisemblablement associé à la présence de défauts qui agissent comme centres de recombinaison non-radiatifs. Les temps longs (625 ps pour l'échantillon dopé *n* et 425 ps pour celui dopé *p*) suggèrent que les défauts sont rapidement saturés par des porteurs et que la recombinaison se poursuit ensuite avec un temps caractéristique plus grand.

D'autres mesures seraient nécessaires pour confirmer certains résultats. Entre autres, des mesures en fonction de la température permettraient de vérifier l'hypothèse de la capture par des défauts. En effet, le temps de recombinaison très court observé à basse température mais absent à 300 K pourrait être mieux caractérisé par des mesures à des températures intermédiaires. Pour cela, un cryostat qui permet de contrôler la température serait nécessaire et constituerait donc un ajout utile au montage expérimental. Des mesures similaires sur un plus grand nombre d'échantillons avec des paramètres de

croissance différents seraient également souhaitables pour vérifier si les observations sont reproductibles. Pensons entre autres à un échantillon non-dopé avec les mêmes caractéristiques de croissance que les échantillons de type n et p afin de voir exclusivement l'effet des dopants. Il serait aussi intéressant d'étudier des échantillons avec des barrières plus grandes. La hauteur des barrières semble en effet reliée à la présence de niveaux excités dans les fils. Enfin, une étude sur des échantillons avec une densité d'îlots différente serait intéressante puisque les temps de capture et de relaxation seraient sûrement plus longs dans ce cas.

Les travaux sur le système InAs/InAlAs/InP sont encore aujourd'hui au stade d'exploration. Déjà des dispositifs intégrant ces structures à fils ou à boîtes quantiques sont conçus et seront certainement utilisés à plus grande échelle dans un proche avenir. Beaucoup de travail reste à faire dans ce domaine cependant, en particulier en ce qui concerne la dynamique des porteurs et les phénomènes ultra-rapides qui se produisent dans ces structures. La méthode de spectroscopie pompe-sonde s'avère être un outil efficace pour optimiser la conception des structures afin d'obtenir de meilleures propriétés optiques.

Annexe A : Procédure de lissage des données expérimentales

Un lissage des données expérimentales à été effectué pour tous les graphiques afin d'extraire les temps de capture/relaxation et de recombinaison des porteurs dans ces matériaux. On s'intéresse à l'évolution de la population des porteurs dans le niveau fondamental des fils (voir figure 4.3) après excitation optique à une énergie supérieure à la bande interdite des barrières d'InAlAs. Les temps de capture/relaxation et de recombinaison obtenus dépendent à la fois du temps de vie des électrons et des trous, mais il n'est pas possible de distinguer les contributions individuelles de chaque type de porteurs avec le montage expérimental utilisé ici. Pour simplifier l'analyse, considérons un système à trois niveaux (figure 4.26) et traitons les électrons et les trous ensemble.

L'excitation optique à 800 nm crée des porteurs dans les barrière d'InAlAs, correspondant au niveau excité $n=2$ dans notre modèle. Ces porteurs relaxent rapidement vers le niveau fondamental des fils, symbolisé ici par le niveau $n=1$. C'est la population de ce niveau qui est étudiée. Le temps τ_2 représente le temps de montée du signal sur les cinétiques, soit le temps que mets le niveau fondamental des fils pour se peupler après l'excitation optique. Enfin, le niveau $n=0$ correspond à l'état fondamental dans notre modèle simplifié. Le

temps τ_1 représente le temps de recombinaison électrons/trous de l'état fondamental des fils. Il s'agit de la descente sur les cinétiques.

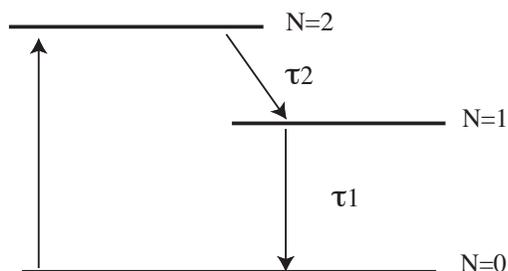


FIG. 4.26 – Système à trois niveaux simplifié modélisant les temps de capture/relaxation et de recombinaison des porteurs dans les échantillons de fils quantique.

À l'aide de ce modèle d'évolution des porteurs dans un système à trois niveaux, on écrit les équations d'évolutions pour les niveaux $n=2$ et $n=1$:

$$\frac{dn_2(t)}{dt} = -\frac{n_2(t)}{\tau_2} + g(t) \quad (4.1)$$

$$\frac{dn_1(t)}{dt} = \frac{n_2(t)}{\tau_2} - \frac{n_1(t)}{\tau_1} \quad (4.2)$$

où n_2 et n_1 représentent la population de porteurs dans le niveau 2 et 1 respectivement, τ_2 et τ_1 les temps de vie des états 2 et 1, et $g(t)$ un terme de génération correspondant à l'excitation optique. Considérons ici que les porteurs sont injectés dans le niveau $n = 2$ instantanément et qu'au temps $t=0$, $g(t)$ est nul. On a alors pour l'équation 4.1 une solution de la forme :

$$n_2(t) = n_2(0)e^{-\frac{t}{\tau_2}} \quad (4.3)$$

En insérant 4.3 dans 4.2, on obtient :

$$\frac{dn_1(t)}{dt} + \frac{n_1(t)}{\tau_1} = \frac{n_2(0)e^{-\frac{t}{\tau_2}}}{\tau_2} \quad (4.4)$$

qui est une équation différentielle ordinaire d'ordre un pour laquelle une solution de la forme :

$$n_1(t)e^{\int \frac{1}{\tau_1} dt} = \int \frac{n_2(0)}{\tau_2} e^{-\frac{t}{\tau_2}} e^{\int \frac{1}{\tau_1} dt} dt + C \quad (4.5)$$

est connue. On obtient en intégrant :

$$n_1(t)e^{\frac{t}{\tau_1}} = \frac{n_2(0)\tau_1}{(\tau_1 - \tau_2)} e^{-t(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1})} + C \quad (4.6)$$

En posant la condition initiale $n_1 = 0$ à $t = 0$, on trouve la constante C .

$$0 = \frac{n_2(0)\tau_1}{(\tau_1 - \tau_2)} + C \rightarrow C = -\frac{n_2(0)\tau_1}{(\tau_1 - \tau_2)} \quad (4.7)$$

Enfin, en réarrangeant 4.6 on obtient l'équation générale qui décrit l'évolution de la population de porteurs dans le niveau $n = 1$:

$$n_1(t) = \frac{n_2(0)\tau_1}{(\tau_1 - \tau_2)} \left[e^{-\frac{t}{\tau_2}} - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right] \quad (4.8)$$

C'est l'équation utilisée pour le lissage des courbes expérimentales. Un terme supplémen-

taire y_0 à été ajouté pour tenir compte du niveau de bruit et un facteur t_0 également pour s'affranchir du fait que la synchronisation des faisceaux pompe et sonde n'est pas toujours parfaite, donc la montée du signal n'est pas toujours exactement à 0 (comme discuté à la section 4.1.1). Ceci n'affecte en rien les résultats. L'équation finale à donc cette forme :

$$n_1(t) = I_0[e^{-(t-t_0)/\tau_2} - e^{-(t-t_0)/\tau_1}] + y_0 \quad (4.9)$$

où τ_2 est le temps caractéristique de capture/relaxation et τ_1 le temps de recombinaison.

Le graphique 4.27 montre un exemple de lissage à deux exponentielles effectuée à l'aide de l'équation 4.9. En pratique, il est difficile d'effectuer un lissage des courbes avec cette équation dans le cas où la montée est très rapide. Dans ce cas, le nombre de points expérimentaux est souvent insuffisant pour lisser la montée sur la courbe (comme dans les échantillons M928 et M937 (fig. 4.10)). Par contre, le lissage de la descente du signal ne pose aucun problème. On effectue donc un lissage indépendant de la montée et de la descente. Dans tous les cas on possède assez de points expérimentaux pour lisser la descente, mais le lissage de la montée de la courbe n'est effectuée que dans le cas où le nombre de points est suffisant.

On utilise alors deux équations pour lisser indépendamment la montée et la descente. Le graphique 4.28 montre la même courbe avec un lissage indépendant pour la montée et la descente. On constate qu'on obtient les même valeurs pour les temps de capture/relaxation et de recombinaison. Puisqu'ici la montée et la descente sont deux processus ayant des temps caractéristiques très différents, l'approximation faite en prenant deux lissages indépendants est justifiée. Si les deux temps caractéristiques étaient du

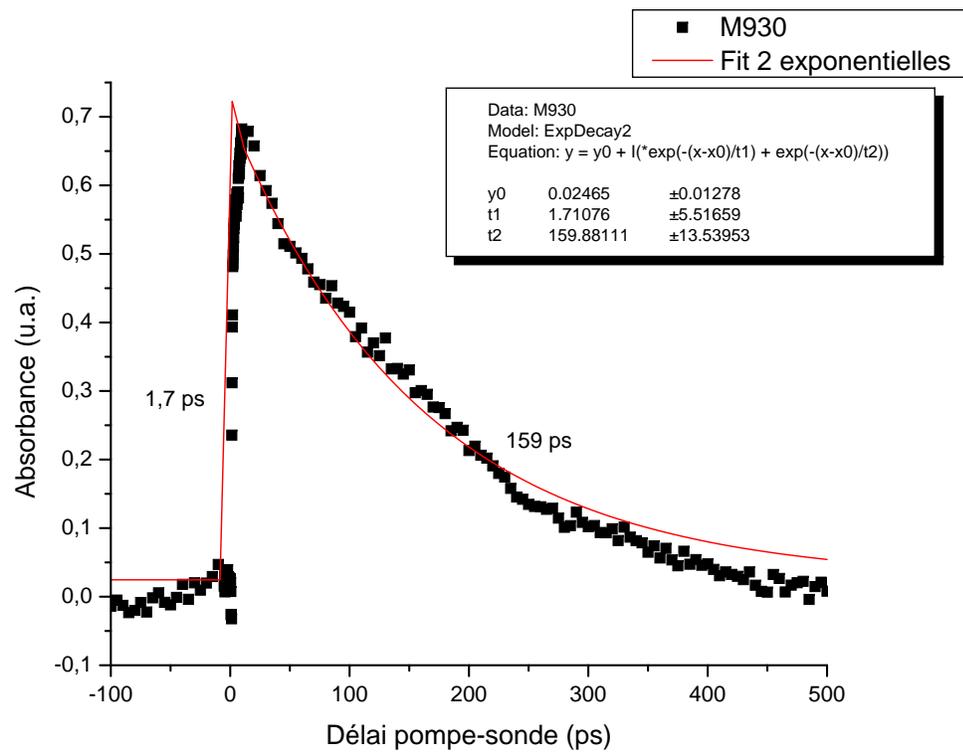


FIG. 4.27 – Lissage d’une cinétique sur l’échantillon M930 à l’aide de l’équation 4.9

même ordre, il y aurait une partie importante de la courbe où la contribution combinée des deux exponentielles ne pourrait être négligée, mais ce n'est pas le cas dans notre situation puisque dans tous les cas $\tau_2 \gg \tau_1$.

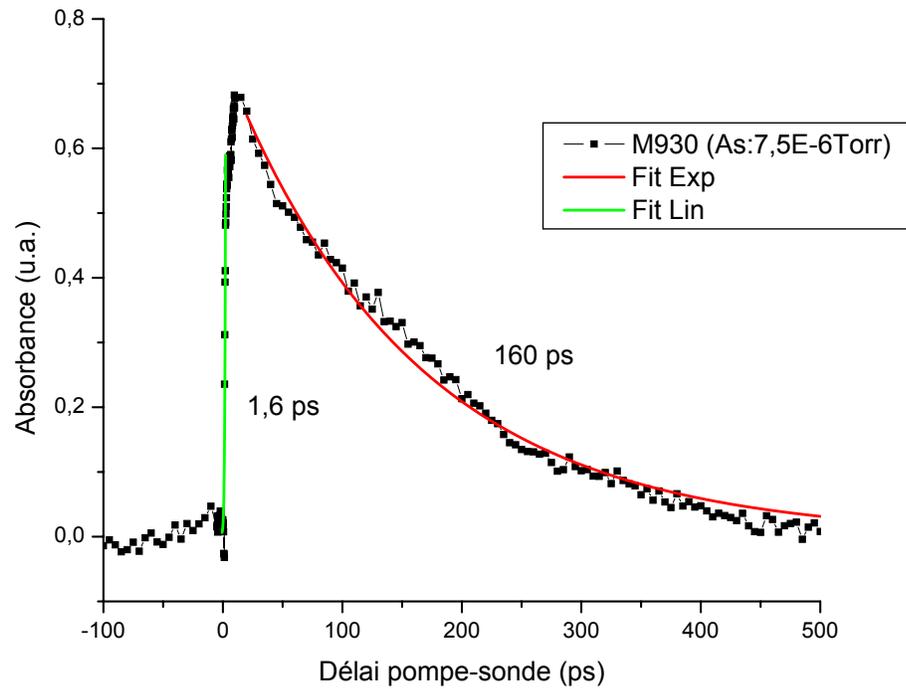


FIG. 4.28 – Lissage indépendant de la montée et de la descente sur l'échantillon M930.

Bibliographie

- [1] J. Brault, M. Gendry, G. Grenet, and G. Hollinger. *Applied Physics Letters* **73**(20), 2932 November (1998).
- [2] B. Salem. *Spectroscopie optique des ilots quantiques d'InAs/InP(001) pour la réalisation de composants optoélectronique émettant à 1.55 μm* . Thèse de doctorat, INSA de Lyon, (2003).
- [3] M. Asada, Y. Miyamoto, and Y. Suematsu. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **22**(9), 1915–1921 september (1986).
- [4] Y. Arakawa and H. Sakai. *Applied Physics Letters* **40**(11), 939–941 June (1982).
- [5] P.G. Eliseev, H. Li., G.T. Liu, T.C. Newell, L.F. Lester, and K.J. Malloy. *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics* **7**(2), 135–142 March/April (2001).
- [6] M. Sugawara. *Self-Assembled InGaAs/GaAs quantum dots*. Academic Press, (1999).
- [7] J. Shah. *Ultrafast spectroscopy of semiconductor and semiconductor nanostructures*. Springer, (1996).
- [8] T.S. Sosnowski, T.B. Norris, H. Jiang, J. Singh, K. Kamath, and P. Bhattacharya. *Physical Review B* **57**(16), R9423 april (1998).
- [9] F. Quochi, M. Dinu, L.N. Pfeiffer, K.W. West, and P.M. Platzmann. *Physical Review B* **65**, 161308 april (2002).

-
- [10] D. Morris, N. Perret, and S. Fafard. *Applied Physics Letters* **75**(23), 3593 December (1999).
- [11] D.A Yarotski, R.D. Averitt, S.A. Crooker, and A.J. Taylor. *Journal of Optical Society of America B* **19**(6), 1480 June (2002).
- [12] E. Peronne, F. Fossard, F.H. Julien, Brault J., M. Gendry, B. Salem, G. Bremond, and A. Alexandrou. *Physical Review B* **67**, 205329 May (2003).
- [13] J. Urayama and T.B. Norris. *Physica B* **74-80**(316-317), 74–80 (2002).
- [14] U. Bockelmann and G. Bastard. *Physical Review B* **42**(14), 8947 november (1990).
- [15] J. Urayama, T.B. Norris, H. Jiang, J. Singh, and P. Bhattacharya. *Applied Physics Letters* **80**(12), 2163 March (2002).
- [16] R. Heitz, M. Viet, N.N Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, and Z. I. Alferov. *Physical Review B* **56**(16), 10435 october (1997).
- [17] W. Yang, R.R. Lowe-Webb, H. Lee, and P.C. Sercel. *Physical Review B* **56**(20), 13314 november (1997).
- [18] M.A. Reed, R.T. Bate, K. Bradshaw, W.M. Duncan, W.R. Frensley, J.W. Lee, and H.D. Smith. *Journal of Vacuum Science and Technology D* **4**, 358 Jan-Feb (1986).
- [19] J. Brault, M. Gendry, G. Grenet, G. Hollinger, J. Olivares, B. Salem, T. Benyattou, and G. Bremond. *Journal of Applied Physics* **92**(1), 506 July (2002).
- [20] B. Salem, G. Bremond, T. Benyattou, C. Bru-Chevallier, G. Guillot, C. Monat, M. Gendry, G. Hollinger, A. Jbeli, and X. Marie. *Physica E* **17**, 124–126 (2003).
- [21] E. Peronne, T. Polack, J.F. Lampin, F. Fossard, F.H. Julien, J. Brault, M. Gendry, O. Marty, and A. Alexandrou. *Physical Review B* **63**, 081307 February (2001).
- [22] F. Gaudreau. *Étude des propriétés optiques d'un nombre réduit de boîtes quantiques par photoluminescence et cathodoluminescence*. Mémoire de maîtrise, Université de Sherbrooke, (2004).