

**ÉTUDE DES PROPRIÉTÉS MAGNÉTO-OPTIQUES DE  
STRUCTURES A POINTS QUANTIQUES**

**$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$**

Par

**SAMUEL MÉNARD**

Mémoire présenté au département de physique en vue de l'obtention du grade  
maître ès science (M.Sc.)

FACULTÉ DES SCIENCES  
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE  
Sherbrooke, Québec, Canada, août 2001

## **Sommaire**

La structure électronique de points quantiques auto-assemblés InAs/GaAs et la dynamique de capture des porteurs ont été étudiées à l'aide d'expériences de magnéto-photoluminescence à faible température (4.5 K) et pour des champs magnétiques variant entre 0 et 16 T. Dans ce mémoire nous rapporterons les résultats obtenus sur deux séries d'échantillons interdiffusés par recuit rapide thermique pour différentes températures et différentes durées de recuit. La première série d'échantillons ne possédait qu'une seule couche de boîtes quantiques, ce qui la différenciait de la seconde série qui en comportait 25. Le processus d'interdiffusion conduit à une réduction significative de la largeur des raies d'émission PL associées aux différents états des points quantiques. Grâce à cette diminution de la largeur de ces raies, la dépendance en champ magnétique des états des points quantiques a pu être mise en évidence plus facilement. Nous avons ainsi pu corrélérer nos résultats expérimentaux aux calculs effectués dans le contexte des états de Fock Darwin. Nous avons également observé que le rapport entre l'intensité de la raie d'émission associée à la couche de mouillage et celle du pic d'émission correspondant aux points quantiques variait de façon non linéaire avec le champ magnétique. Le comportement observé semble être corrélé aux dépendances en champ magnétique du temps de capture des porteurs par les boîtes quantiques et du temps de recombinaison radiatif des excitons dans la couche de mouillage.

## **Remerciements**

Je suis tout particulièrement reconnaissant envers mes deux responsables de maîtrise, MM. Denis Morris et Jean Beerens pour m'avoir fait confiance et offert la possibilité de réaliser tout ce travail.

Merci également à mes deux partenaires de laboratoires MM. Serge Charlebois et Jacques Renaud pour les discussions intéressantes que l'on a pu avoir mais aussi pour l'animation du laboratoire.

Je souhaite aussi saluer le travail des techniciens Jacques Corbin et Marcel Zakorzerny sans qui le montage expérimental n'aurait pas existé.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à MM. Jacques Beauvais et Vincent Aimez pour l'excellente préparation des échantillons étudiés.

Je finirais en remerciant MM. Robert Pezzani et Franck Duclos pour m'avoir continuellement motivé et permis d'achever tout ce travail.

# Table des matières

Sommaire .....	I
Remerciements .....	II
Table des matières .....	III
Listes des figures .....	V
Liste des tableaux .....	VIII
Introduction .....	1
Chapitre I : Aspects théoriques. ....	4
I.1 Approximation de la masse effective. ....	4
I.2 Particule dans un puits de potentiel. ....	5
I.3 Diagramme de bandes et potentiel de confinement. ....	7
I.4 Calcul des niveaux d'énergie appliqué aux boîtes quantiques auto assemblées ayant une forme de lentille tronquée. ....	10
I.5 Densité d'états. ....	13
I.6 Confinement des trous. ....	15
I.7 Etats de Fock-Darwin. ....	16
Chapitre II : Fabrication et propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées. ....	20
II.1 Technique d'auto-assemblage par croissance épitaxiale. ....	20
II.1.1 Modes de croissance cristalline. ....	20
II.1.2 Points quantiques auto-assemblés InAs/GaAs. ....	22
II.1.3 Technique d'interdiffusion. ....	25
II.2 Propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées. ....	26
II.2.1 Allure des spectres de photoluminescence. ....	26
II.2.2 Effet de l'interdiffusion sur les spectres de photoluminescence. ....	27
II.2.3 Transitions optiques dans les points quantiques. ....	29
Chapitre III : Partie expérimentale .....	30
III.1 Échantillons étudiés. ....	30
III.2 Technique de la photoluminescence associée aux points quantiques. ....	31
III.3 Relaxation des porteurs dans les points quantiques. ....	32
III.4 Effet de la température sur les spectres de photoluminescence. ....	36
III.5 Effet de la puissance d'excitation sur les spectres de photoluminescence. ....	37
III.6 Magnéto-photoluminescence. ....	39
III.6.1 Description de la manipulation expérimentale. ....	39
III.6.2 Évaluation du nombre de porteurs par boîtes quantiques. ....	42
III.6.3 Correction des données. ....	44

Chapitre IV : Résultats expérimentaux. ....	48
IV.1 Présentation des résultats. ....	48
IV.1.1 Photoluminescence des échantillons étudiés. ....	48
IV.1.2 Magnéto-PL des échantillons à simple couche. ....	51
IV.1.3 Magnéto-PL des échantillons multi-couches. ....	55
IV.2 Méthode de lissage des spectres. ....	58
IV.2.1 Principes généraux. ....	58
IV.2.2 Modèle 1 : Largeur à mi-hauteur W indépendante du champ magnétique. ....	61
IV.2.3 Modèle 2 : Largeur à mi-hauteur W fonction de l'énergie de la transition PL considérée. ....	61
IV.2.4 Modèle 3 : Largeur à mi-hauteur W fonction du champ magnétique B. ....	62
IV.3 Analyse des données expérimentales et discussion. ....	66
IV.3.1 Position des pics à forte excitation pour les échantillons à simple couche. ....	66
IV.3.2 Position des pics à forte excitation pour les échantillons multi-couches. ....	76
IV.3.3 Étude de la dynamique des porteurs. ....	79
IV.3.3.a Cas des échantillons multi-couches. ....	79
IV.3.3.b Cas des échantillons à simple couche. ....	86
IV.3.3.b.i Faible excitation. ....	86
IV.3.3.b.ii Forte excitation. ....	88
IV.3.4 Complément d'étude sur la dynamique des porteurs : comparaison des intensités associées à chaque niveau quantique. ....	90
 Conclusion. ....	 95
 Références. ....	 97
 ANNEXE: Analyse du ratio de l'intensité de la couche de mouillage sur celle des boîtes quantiques. ....	 101

## Listes des figures

Figure I-1: Schéma d'un puits de potentiel carré à une dimension.....	5
Figure I-2: Diagramme de bandes de systèmes à points quantiques InAs/GaAs.....	8
Figure I-3: Modélisation des boîtes quantiques hémisphériques. [7].....	10
Figure I-4: Spectre d'énergie calculé pour des points quantiques $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ de rayon $r=180 \text{ \AA}$ , de hauteur $h=44 \text{ \AA}$ et ayant une profondeur de potentiel de confinement $V_0 = 350 \text{ meV}$ . [9].....	12
Figure I-5: Forme des orbitales dans des boîtes quantiques hémisphériques, $m=0$ pour l'orbitale $s$ , $m=1$ pour les deux orbitales $p$ et $m=2$ pour les trois orbitales $d$ . [7].....	13
Figure I-6: Spectre d'absorption d'un système à points quantiques avec interaction (figure du bas) et sans interaction (figure du haut) entre les excitons à champ magnétique nul et incluant une distribution de la taille des points quantiques de rayon moyen $s=180 \text{ \AA}$ et d'écart type $\sigma_s=10 \text{ \AA}$ . [9].....	15
Figure I-7: Évolution des niveaux d'énergie de Fock-Darwin avec le champ magnétique. Les lignes en pointillés indiquent la position des niveaux de Landau. [19].....	18
Figure II-1: Trois modes de croissance cristalline sur un substrat : Franck van der Merwe (FM), Volmer-Weber (VW) et Stranski-Krastanow (SK). [29].....	21
Figure II-2: Diagramme de phase épaisseur-composition pour les modes FM, SK et VW pour une structure InPSb/InP (111). [30].....	22
Figure II-3: Dépendance de l'épaisseur critique de la couche de InGaAs déposée à laquelle apparaît la croissance SK en fonction de la concentration en Indium. (ou, en d'autres mots, en fonction de la contrainte). [20].....	23
Figure II-4: Évolution des points quantiques auto assemblés InAs (cercles blancs) lors d'une croissance MBE sur un substrat GaAs. La figure (a) correspond à une épaisseur de 1.6 monocouches déposée, la figure (b) à 1.7 monocouches et la figure (c) à 1.8 monocouches. [20].....	24
Figure II-5: Diamètres de 106 points quantiques InGaAs/GaAs crûs par MOCVD observés par imagerie électronique à transmission (TEM). La distribution suit une loi gaussienne d'écart type 2.9 nm. [34].....	25
Figure II-6: Spectre d'absorption de points quantiques pour différentes distributions (gaussiennes) de taille dont l'écart type est donné en pourcentage. [37].....	27
Figure II-7: Modélisation des effets de l'interdiffusion sur des points quantiques de diamètre 25nm, de hauteur 3.1nm et d'épaisseur de couche de mouillage (WL) 0.5nm (figure a). Le rayon effectif du potentiel de confinement est tracé sur la figure b) en fonction de la position par rapport au centre du point quantique et pour différentes longueurs de diffusion. [40].....	28
Figure III-1: Section transverse de points quantiques InAs/GaAs multi-couches obtenue par microscopie TEM pour deux épaisseurs différentes de couches de GaAs intermédiaires. A 10nm (figure a), les points quantiques s'alignent d'une couche à une autre, alors que ce n'est pas le cas pour un espacement de 20nm (figure b)[29]	31
Figure III-2: Principe de la photoluminescence dans les points quantiques.....	32
Figure III-3: Deux types de relaxation dans les points quantiques : (A) relaxation à partir du continuum de la couche de mouillage, et (B) relaxation entre les niveaux discrets.....	33

Figure III-4: Schématisation des procédés de relaxation multi-phonons (figure a) et de relaxation Auger (figure b). (Relaxation de type A).....	34
Figure III-5: Spectres PL de points quantiques InGaAs/GaAs composés de neuf couches pour différentes puissances d'excitation. Les échantillons ont été excités par faisceau laser Kr <sup>+</sup> à une longueur d'onde de 647.1 nm. [34]	38
Figure III-6: Schéma du montage de magnéto-photoluminescence.....	40
Figure III-7: Vue agrandie du porte-échantillon.....	42
Figure III-8: Réponse spectrale du réseau du monochromateur utilisé.....	46
Figure III-9: Réponse spectrale K(E) du système optique utilisé avec le détecteur Germanium (figure a) et avec le photomultiplicateur (figure b).....	47
Figure IV-1: Spectres PL des échantillons à simple couche étudiés. Chaque courbe correspond à une durée de recuit différente et une température de recuit de 850°C. (la figure a présente les spectres PL des échantillons faiblement interdiffusés et la figure b ceux des échantillons plus interdiffusés).....	49
Figure IV-2: Spectres PL des échantillons multi-couches étudiés pour différentes interdiffusions. [39].....	50
Figure IV-3: Spectres de magnéto-PL pour les échantillons à simple couche recuits à 850°C et pour des durées de recuit de 0 (a), 15 (b), 35 (c) et 60 (d) secondes. Le champ magnétique appliqué se situe dans la gamme 0 à 16 T. Les spectres ont été obtenus avec une puissance d'excitation de 120 mW.....	52
Figure IV-4: Spectres de magnéto-PL pour les échantillons à simple couche recuits à 850°C et pour des durées de recuit de 15 (a) et 35 (b) secondes. Le champ magnétique appliqué se situe dans la gamme 0 à 14T. Les spectres ont été obtenus avec une puissance d'excitation de 12 mW.....	54
Figure IV-5: Spectres de magnéto-PL pour les échantillons multi-couches (25 couches) (respectivement recuit à 800°C pendant 45 s avec SrF <sub>2</sub> (a), recuit à 720°C pendant 30 s avec SiO <sub>2</sub> (b), recuit à 760°C pendant 30 s avec SiO <sub>2</sub> (c) et recuit à 800°C pendant 30 s avec SiO <sub>2</sub> (d)). Le champ magnétique appliqué se situe dans la gamme 0 à 14 T. Les spectres ont été obtenus avec une puissance d'excitation de 120 mW.....	56
Figure IV-6: Comparaison entre les spectres obtenus à faible (a) et forte puissance d'excitation (b) pour l'échantillon à simple couche recuit à 850°C pendant 30 secondes avec SiO <sub>2</sub> .....	59
Figure IV-7: Exemple de lissage des données expérimentales par une somme de six gaussiennes pour l'échantillon à simple couche recuit à 850°C pendant 15 secondes et soumis à un champ magnétique de 1T.....	61
Figure IV-8: Caractéristiques d'une gaussienne représentant le pic d'émission PL d'une orbitale donnée (notée k dans le texte).....	63
Figure IV-9: Schéma de bande d'une boîte quantique définissant les grandeurs utilisées dans le modèle W fonction de B.....	63
Figure IV-10: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW).....	68
Figure IV-11: Mise en évidence du décalage diamagnétique sur les échantillons à simple couche non recuit (a) et recuit 60s (b) à forte puissance d'excitation (120 mW).....	69
Figure IV-12: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur varie avec la position des pics pour les échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW).....	71

<i>Figure IV-13: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur varie avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW). ....</i>	73
<i>Figure IV-14: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche recuits 15 (a) et 35 (b) secondes à 850°C à faible puissance d'excitation (12mW). ....</i>	75
<i>Figure IV-15: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons multi-couches à forte puissance d'excitation (120 mW). ....</i>	78
<i>Figure IV-16: Évolution du rapport <math>A_{WL} / A_{QD}</math> en fonction du champ magnétique à forte excitation (120 mW) pour l'ensemble des échantillons multi-couches étudiés. Les courbes en trait plein représentent le lissage des points expérimentaux. ....</i>	82
<i>Figure IV-17: Comparaison du rapport <math>A_{WL} / A_{QD}</math> pour l'ensemble des échantillons multi-couches étudiés. Chaque courbe a été normalisée par rapport à la valeur obtenue à 14 T. ....</i>	82
<i>Figure IV-18: Évolution du rapport <math>I_{WL} / I_{QD}</math> de l'aire sous le pic de la couche de mouillage sur l'aire sous la courbe associée aux points quantiques en fonction du champ magnétique à faible excitation (12 mW) pour l'échantillon à simple couche recuit 15 s à 850°C. La courbe en trait plein représente le lissage des points expérimentaux par une fonction polynomiale du second ordre en B. ....</i>	87
<i>Figure IV-19: Comparaison à faible puissance d'excitation du rapport <math>A_{WL} / A_{QD}</math> pour l'ensemble des échantillons à simple couche étudiés. Chaque courbe a été normalisée par rapport à la valeur obtenue à 14T. ....</i>	87
<i>Figure IV-20: Évolution du rapport <math>I_{WL} / I_{QD}</math> de l'aire sous le pic de la couche de mouillage sur l'aire sous la courbe correspondant aux points quantiques en fonction du champ magnétique à forte excitation (120 mW) pour l'échantillon à simple couche recuit 15 s à 850°C. La courbe en trait plein représente le lissage des points expérimentaux par une fonction polynomiale du second ordre en B. ....</i>	89
<i>Figure IV-21: Comparaison du rapport <math>A_{WL} / A_{QD}</math> pour l'ensemble des échantillons à simple couche étudiés. Chaque courbe a été normalisée par rapport à la valeur obtenue à 14 T. ....</i>	90
<i>Figure IV-22: Évolution de l'aire associée à chaque niveau quantique résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche recuit 15s (a) et 30s (b) à 850°C à faible puissance d'excitation (12mW). ....</i>	92
<i>Figure IV-23: Évolution de l'aire associée à chaque niveau quantique résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons multi-couches à forte puissance d'excitation (120 mW). ....</i>	94

## **Liste des tableaux**

*Tableau IV-1: Comparaison de la différence d'énergie  $E_{WL}-E_S$  entre le pic de PL associé à la couche de mouillage et le pic correspondant au niveau s des boîtes, pour les différentes conditions de recuit et pour les échantillons à simple couche et multicouches. Le degré d'interdiffusion des échantillons est d'autant plus élevé que cette différence d'énergie est faible.....88*

## Introduction

Les progrès impressionnants réalisés dans la fabrication des structures semi-conductrices durant les dix dernières années ont rendu possible la réduction de la dimensionalité effective des matériaux. Nous sommes ainsi passés du matériau classique tridimensionnel (3D), à des structures à puits quantiques 2D, puis 1D avec les fils quantiques et même 0D depuis l'apparition des boîtes quantiques. Les effets de confinement quantique dans de telles structures semi-conductrices à dimensionalités réduites revêtent un intérêt considérable. Les propriétés optiques et électroniques de ces structures sont particulièrement intéressantes d'autant plus qu'il est possible de les contrôler à un certain degré, en jouant sur la taille et la géométrie des structures. Cette maîtrise des propriétés rend ces structures à confinement quantique très prometteuses pour de nombreuses applications dans les domaines des composants microélectroniques et optoélectroniques.

D'excellents exemples de systèmes semi-conducteurs à dimensionalité réduite sont constitués par les structures à puits quantiques. Celles-ci consistent en des empilements de couches très minces de semiconducteurs différents déposées en alternance à l'aide de techniques de croissance épitaxiale sophistiquées. Une excitation externe de ces structures, par exemple par irradiation laser dans le régime de fréquence approprié, génère des paires électron-trou dans les couches actives 2D, et permet de mettre en évidence l'effet du confinement électronique sur, par exemple, la bande interdite effective de la structure ou sur l'énergie de liaison excitonique (interaction électron-trou) [1]. Un matériau couramment utilisé pour la fabrication des puits quantiques est l'arséniure de gallium GaAs en combinaison avec une solution solide ternaire de type arséniure de gallium-aluminium  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Le fait que les paramètres de maille de ces matériaux soient pratiquement égaux facilite la réalisation d'hétérostructures ayant peu de défauts aux interfaces. La recherche sur les puits quantiques a démarré dans les années 70. Aujourd'hui, les propriétés des systèmes 2D sont bien comprises et les puits quantiques ont été produits et inclus dans de nombreuses applications, comme par exemple les diodes laser utilisées dans les lecteurs de disques compacts, ou encore les récepteurs micro-ondes utilisés pour la télévision satellite.

Stimulés par les résultats encourageants obtenus sur les puits quantiques, les équipes de recherche ont intensifié leurs investigations sur des systèmes à plus basse dimensionalité. Au début des années 80, les rapides progrès technologiques, spécialement les techniques très pointues de lithographie, ont rendu possible le confinement d'électrons dans des structures appelées fils quantiques. Les fils quantiques sont fabriqués par exemple sous la forme de bandes miniatures gravées à partir d'un échantillon à puits quantiques. Les dimensions latérales typiques de ces structures sont de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres.

La quantification complète du mouvement des électrons selon les trois dimensions de l'espace est possible en piégeant ces derniers dans des boîtes quantiques de dimensions suffisamment faibles. Le groupe de recherche dirigé par Reed [2] a rapporté la fabrication de points quantiques carrés de 250 nm de côté, obtenus par gravure et lithographie. Suivirent ensuite de nombreuses autres publications relatant la fabrication de points quantiques [3, 4, 5].

En raison du fort confinement imposé dans les trois directions de l'espace, les systèmes à points quantiques se comportent similairement aux atomes et à ce titre, ils sont qualifiés de pseudo-atomes ou d'atomes artificiels. Ce qui rend les points quantiques particulièrement intéressants réside avant tout dans la possibilité de contrôler leur forme, leurs dimensions, leurs niveaux d'énergie ainsi que le nombre d'électrons confinés à l'intérieur.

Actuellement, les recherches sur les points quantiques sont principalement centrées sur l'étude de leurs propriétés optiques et électriques. En effet, puisque les spectres d'absorption et d'émission des points quantiques présentent des raies discrètes et très étroites, ils sont pressentis pour conduire à des applications dans la fabrication des lasers semi-conducteurs beaucoup plus efficaces (courants d'injection plus faibles, meilleure insensibilité à la température de fonctionnement, etc.) et contrôlables de façon plus précise [6]. La possibilité de créer des matrices denses de points quantiques pourrait également être à la base de la conception de nouvelles mémoires à forte capacité. La réalisation de ces possibles applications nécessite avant tout une connaissance plus approfondie de la physique des points quantiques. De fait, dans ce mémoire nous chercherons à obtenir de nouvelles informations concernant les propriétés optiques

des systèmes à points quantiques soumis à un champ magnétique. L'application du champ magnétique nous permettra dans un premier temps de valider le modèle théorique simple développé par Fock Darwin et on cherchera ensuite à mieux comprendre la dynamique des porteurs dans de telles structures. Notons finalement que l'originalité des échantillons choisis apportera un caractère innovant aux études précédemment menées. [7] Les échantillons ont en effet été traités par des recuits thermiques rapides, or après interdiffusion les raies d'émission des spectres de photoluminescence sont plus étroites, ce qui rend plus visible les comportements en champ magnétique des transitions optiques associées aux états électroniques discrets des boîtes quantiques.

Dans ce qui suit, nous évoquerons dans le premier chapitre les bases théoriques nécessaires à la compréhension des propriétés des points quantiques. La méthode de fabrication et les propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées seront ensuite données au chapitre 2. Le chapitre 3 sera consacré quant à lui à la description des échantillons étudiés et du montage expérimental. Une explication de la technique de photoluminescence sera également fournie. Finalement, nous aborderons au chapitre 4 les résultats expérimentaux obtenus. Une description des spectres de magnéto-photoluminescence sera donnée pour chaque type d'échantillons. Suivra ensuite une explication des méthodes d'analyse choisies et une discussion des propriétés que l'on aura pu mettre en évidence.

# Chapitre I : Aspects théoriques.

Dans ce chapitre, nous introduirons les bases théoriques de la physique des points quantiques nécessaires à la compréhension des différents résultats expérimentaux qui seront décrits par la suite. Nous nous focaliserons essentiellement sur les spectres d'énergie des points quantiques et leur évolution avec le champ magnétique.

## I.1 Approximation de la masse effective.

La notion de masse effective permet notamment de simplifier l'analyse des propriétés optiques et électriques des porteurs situés en proximité des extremums de bandes. De façon générale, on doit utiliser un tenseur de masse effective car celle-ci dépend de la direction considérée dans le cristal [8]:

$$\left[ \frac{1}{m^*} \right]_{i,j} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E(k)}{\partial k_i \partial k_j} \quad \text{Équation 1.1}$$

La symétrie du cristal permet cependant de simplifier l'expression de ce tenseur. Dans le cas d'InAs et GaAs, qui sont des cristaux de symétrie cubique, on peut considérer que la masse effective est isotrope dans les bandes de conduction et de valence. Cette approximation est valable dans la région proche du centre de la zone de Brillouin ou autrement dit pour  $k$  petit. Notons tout de même que dans les boîtes quantiques on s'attend à avoir des masses effectives différentes du matériau 3D en raison notamment de la pénétration des fonctions d'onde dans les barrières de potentiel, et des contraintes mécaniques internes résultant du désaccord de maille entre les matériaux de base. Nos calculs théoriques feront appel à l'approximation de la masse effective pour décrire le comportement des porteurs dans les points quantiques, mais nous négligerons dans cette étude une éventuelle anisotropie des masses effectives, qui pourrait découler, par exemple, de l'effet des contraintes. On verra plus loin que cette approche permet de décrire de manière satisfaisante les résultats expérimentaux.

## I.2 Particule dans un puits de potentiel.

Pour comprendre l'effet du confinement quantique, commençons par étudier le cas simple du mouvement d'une particule de masse effective  $m^*$  selon une unique direction dans un puits de potentiel carré. Pour cela, nous allons nous attarder sur la résolution de l'équation de Schrödinger à une dimension :

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + U(r) \right\} \psi(r) = E \psi(r) \quad \text{Équation 1.2}$$

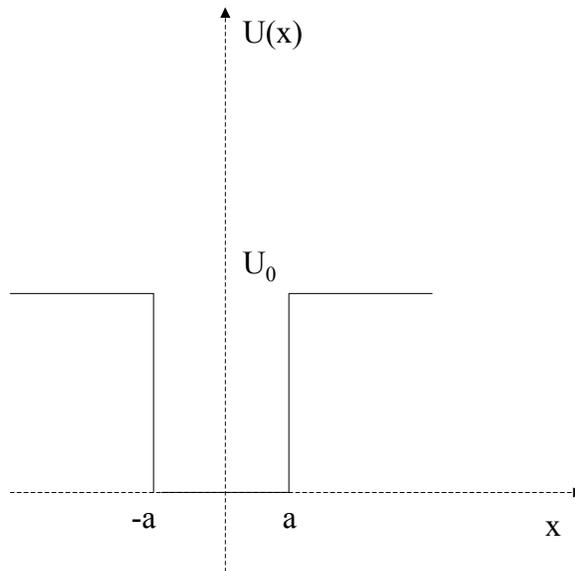


Figure I-1: Schéma d'un puits de potentiel carré à une dimension.

L'énergie potentielle  $U(x)$  prend la forme décrite sur la figure I-1, et prend les valeurs :

$$U(x) = 0 \quad \text{pour } |x| \leq a$$

$$U(x) = U_0 \quad \text{pour } |x| > a$$

Équations 1.3

A partir de la mécanique quantique élémentaire, nous savons que les solutions correctement normalisées de cette équation s'écrivent :

pour les solutions paires :

$$\psi_k^+(x) = \frac{1}{\sqrt{a + \frac{1}{\kappa}}} \cos(kx) \quad \text{pour } |x| \leq a$$

$$\psi_k^+(x) = \frac{1}{\sqrt{a + \frac{1}{\kappa}}} \cos(ka) e^{\kappa(a-|x|)} \quad \text{pour } |x| > a$$

Équations 1.4

et pour les solutions impaires :

$$\psi_k^-(x) = \frac{1}{\sqrt{a + \frac{1}{\kappa}}} \sin(kx) \quad \text{pour } |x| \leq a$$

$$\psi_k^-(x) = \frac{1}{\sqrt{a + \frac{1}{\kappa}}} \sin(ka) e^{\kappa(a-|x|)} \quad \text{pour } |x| > a$$

Équations 1.5

La parité est établie en termes de la réflexion par rapport à un plan perpendiculaire à l'axe  $x$  et passant par le centre du puits.

Les énergies des états liés :  $E_k = \frac{\hbar^2}{2m^*} k^2 < U_0$  sont obtenues à partir des valeurs de  $k$  solutions des équations transcendentes :

$$\text{tg}(ka) = \frac{\sqrt{k_0^2 - k^2}}{k} \quad \text{pour les états pairs,}$$

$$\text{ctg}\left(\frac{ka}{2}\right) = -\frac{\sqrt{k_0^2 - k^2}}{k} \quad \text{pour les états impairs.}$$

Équations 1.6

où les paramètres  $k_0$  et  $\kappa$  sont définis de telle manière que :

$$U_0 = \frac{\hbar^2}{2m^*} k_0^2$$

$$\kappa^2 = k_0^2 - k^2$$

Équations 1.7

Dans le cas où les barrières du puits sont infinies ( $U_0 \rightarrow \infty$ ), les fonctions propres et les vecteurs d'onde correspondants, respectivement des états liés pairs et impairs, s'écrivent :

$$\psi_k^+(x) = \frac{1}{\sqrt{a}} \cos(kx) \quad \text{et} \quad k = \frac{(2n+1)\pi}{2a} \quad \text{avec } n = 0, 1, 2, \dots$$

Équations 1.8

$$\psi_k^-(x) = \frac{1}{\sqrt{a}} \sin(kx) \quad \text{et} \quad k = \frac{n\pi}{a} \quad \text{avec } n = 0, 1, 2, \dots$$

Ce résultat peut bien entendu se généraliser à trois dimensions (cas des points quantiques), où les fonctions propres prennent une forme plus compliquée. Nous verrons plus loin comment sont calculées les fonctions et énergies propres s'appliquant à nos types d'échantillons. Ce qu'il faut retenir avant tout, c'est que les boîtes possèdent des états liés pour lesquels le mouvement est quantifié selon les trois dimensions de l'espace, ce qui donne aux boîtes quantiques tout leur intérêt.

### **I.3 Diagramme de bandes et potentiel de confinement.**

Dans la mesure où la théorie de la masse effective donne une description correcte des points quantiques, on peut utiliser la notion de diagramme de bandes pour éclaircir certaines de leurs propriétés.

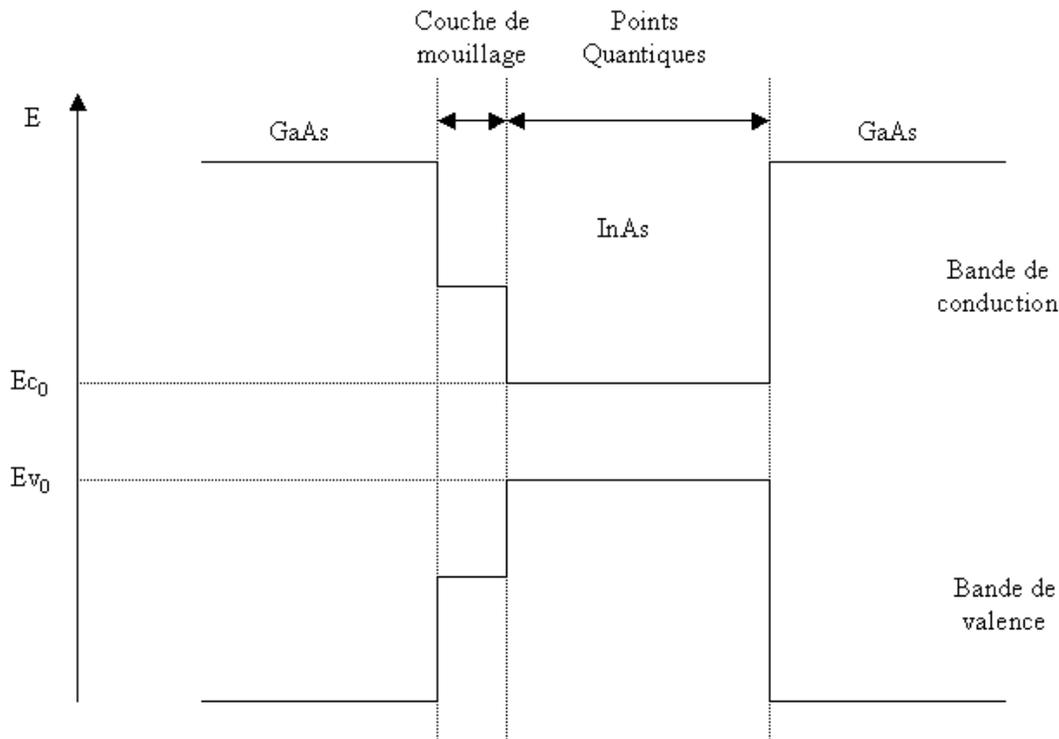


Figure I-2: Diagramme de bandes de systèmes à points quantiques InAs/GaAs.

La figure I-2 présente le diagramme de bandes associé à nos échantillons. On constate que les porteurs, que ce soient les électrons pour la bande de conduction ou les trous pour la bande de valence, sont confinés dans les îlots de InAs, c'est à dire dans les boîtes quantiques. Les barrières de potentiel sont quant à elles constituées par les couches de GaAs. Entre les deux barrières, on retrouve également le puits de potentiel créé par la couche de mouillage, où les porteurs sont confinés uniquement dans l'axe de croissance.

Le mouvement des porteurs dans de telles structures est donc restreint aux dimensions des îlots. Or la hauteur des boîtes quantiques (mesurée parallèlement à l'axe de croissance, ou axe  $z$ ) est beaucoup plus faible que leur diamètre ( $h/d = 0.06$ ), par conséquent le confinement des porteurs sera beaucoup plus prononcé selon l'axe  $z$  que dans le plan  $(x, y)$ . Dans ce qui suit, nous ferons la supposition qu'un seul niveau lié existe selon  $z$ , les sous-bandes associées aux autres états s'inscrivent dans le continuum de la couche de mouillage. C'est ce que l'on appelle l'approximation adiabatique. Concrètement, cette hypothèse va nous permettre de considérer que

le mouvement électronique selon  $z$  est complètement découplé du mouvement dans le plan des couches. Dans nos conditions expérimentales, le champ magnétique est appliqué selon l'axe  $z$  et la forme du potentiel de confinement  $V(x, y)$  joue un rôle déterminant dans le comportement des niveaux d'énergie de nos points quantiques sous l'effet du champ. Il apparaît donc nécessaire de modéliser ce potentiel de confinement latéral  $V(x, y)$  pour procéder à une analyse quantitative. Compte tenu de la forme des boîtes quantiques (Fig. I-3), il semble raisonnable de modéliser  $V(x, y)$  sous la forme d'un puits parabolique :

$$V(r) = V_0 + C r^2 \quad \text{avec } r < d/2 \quad \text{Équation 1.9}$$

où  $r^2 = x^2 + y^2$ ,  $C$  est une constante, et  $V_0$  représente la hauteur de la barrière de potentiel telle que mesurée par rapport au centre de la boîte. Proche du fond du puits de potentiel on peut alors utiliser les solutions bien connues du problème de l'oscillateur harmonique pour décrire les états confinés. Le potentiel de confinement peut dès lors se réécrire (avec l'énergie mesurée par rapport au fond du puits) :

$$V(r) = \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 r^2 \quad \text{Équation 1.10}$$

où  $\omega_0$  est la fréquence propre de l'oscillateur, dont les énergies propres sont données par  $(n + \frac{1}{2})\hbar\omega_0$ . On notera que ces résultats, qui montrent notamment que l'écart entre les niveaux d'énergie est constant, ne tiennent pas compte des interactions porteurs-porteurs. On reviendra sur ce point dans la partie sur l'analyse des résultats.

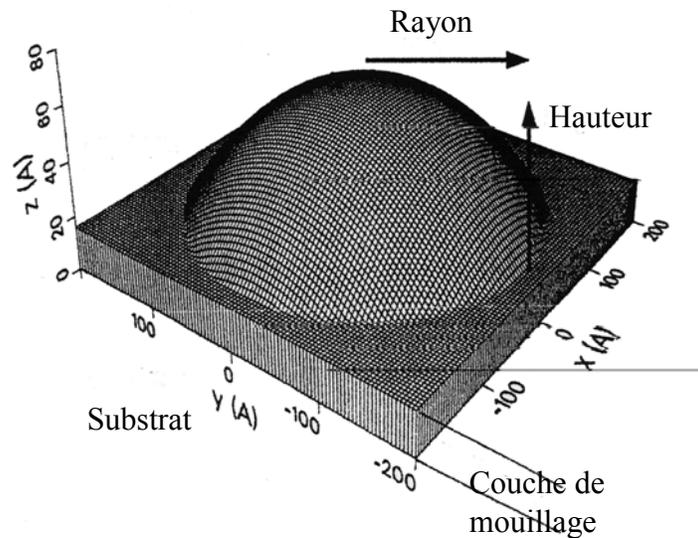


Figure I-3: Modélisation des boîtes quantiques hémisphériques. [7]

#### **I.4 Calcul des niveaux d'énergie appliqué aux boîtes quantiques auto assemblées ayant une forme de lentille tronquée.**

En toute rigueur, le calcul des niveaux d'énergie tenant compte de la forme détaillée des puits ne peut typiquement se faire que de manière numérique, connaissant la forme exacte de  $V(x, y, z)$ . On peut cependant, en faisant les approximations appropriées, obtenir des résultats sous forme analytique qui, même s'ils sont moins précis, permettent d'obtenir une meilleure compréhension de l'influence des différents paramètres mis en jeu. Ainsi, nous allons aborder le problème dans le contexte de l'approximation de la masse effective, en négligeant les effets d'interactions porteurs-porteurs. Dans ces conditions, l'équation de Schrödinger de l'électron seul s'écrit en coordonnées cylindriques :

$$\left[ -\frac{1}{r^2} \left( r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right) - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_e(r, z) \right] \psi(r, \theta, z) = E \psi(r, \theta, z) \quad \text{Équation 1.11}$$

où  $V_e(r, z)$  représente le potentiel de confinement décrit au paragraphe précédent.

En appliquant l'approximation adiabatique décrite au paragraphe précédent, il est possible de séparer les variables  $r$ ,  $\theta$  et  $z$  et ainsi la fonction d'onde peut s'écrire sous la forme :

$$\psi(r, \theta, z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{im\theta} g_r(z) f_m(r) \quad \text{Équation 1.12}$$

où on suppose que  $g_r(z)$  varie lentement avec  $r$ . En insérant cette fonction d'onde dans l'équation de Schrödinger, on trouve que les fonctions  $g_r$  et  $f_m$  vérifient un ensemble de deux équations pour chaque moment angulaire total caractérisé par le nombre quantique  $m$  : [9]

$$\begin{aligned} \left[ -\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_e(r, z) \right] g_r(z) &= E_0(r) g_r(z) \\ \left[ -\frac{1}{r^2} \left( r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} - m^2 \right) + E_0(r) \right] f_m(r) &= E f_m(r) \end{aligned} \quad \text{Équations 1.13}$$

Sous cette forme, il est alors possible de déterminer  $E_0(r)$  correspondant au mouvement selon  $z$  pour une épaisseur de boîte quantique donnée et à une distance  $r$  du centre de la boîte. Ensuite le mouvement radial dans le potentiel effectif  $E_0(r)$  est calculé de manière exacte et numériquement pour chaque valeur de  $m$ . (Fig. I-4)

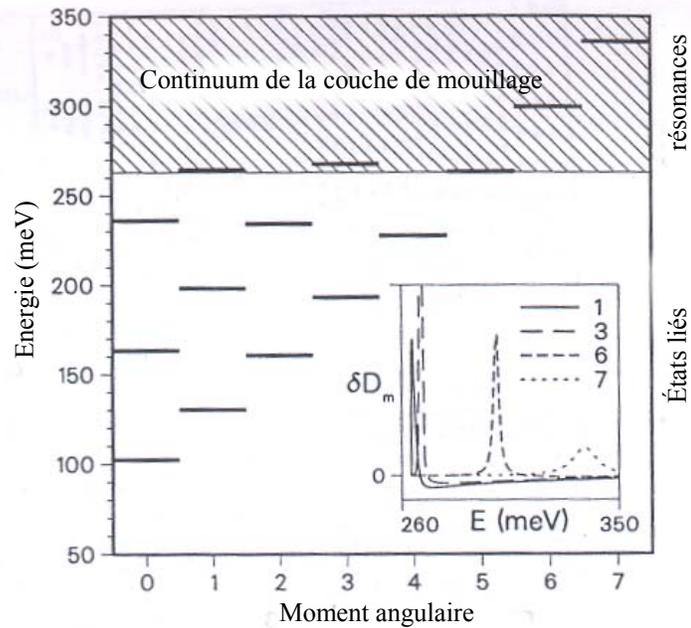


Figure I-4: Spectre d'énergie calculé pour des points quantiques  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  de rayon  $r=180 \text{ \AA}$ , de hauteur  $h=44 \text{ \AA}$  et ayant une profondeur de potentiel de confinement  $V_0 = 350 \text{ meV}$ . [9]

On retrouve donc un comportement pseudo atomique. Par conséquent, de manière analogue aux atomes réels, les orbitales peuvent être classifiées suivant les notations s, p, d, f..., sachant que l'orbitale s correspond au nombre quantique  $m = 0$ , l'orbitale p à  $m=1$  et ainsi de suite.

La figure I-5 décrit la forme que prennent ces orbitales dans nos types d'échantillons. On peut également remarquer que les niveaux énergétiques sont dégénérés en raison du spin et des symétries  $\pm m$ . Il convient alors de définir deux nouveaux nombres quantiques pour pouvoir décrire l'ensemble des niveaux énergétiques sans tenir compte de la dégénérescence de spin :  $n_r$  le nombre quantique radial et  $n_\theta$  le nombre quantique angulaire, qui satisfont la relation suivante :  $m = n_r + n_\theta$ . Par exemple, l'orbitale p ( $m = 1$ ) est doublement dégénérée (sans le spin), les deux états p étant caractérisés par  $n_r = 0$  et  $n_\theta = 1$  pour le premier et  $n_r = 1$  et  $n_\theta = 0$  pour le second.

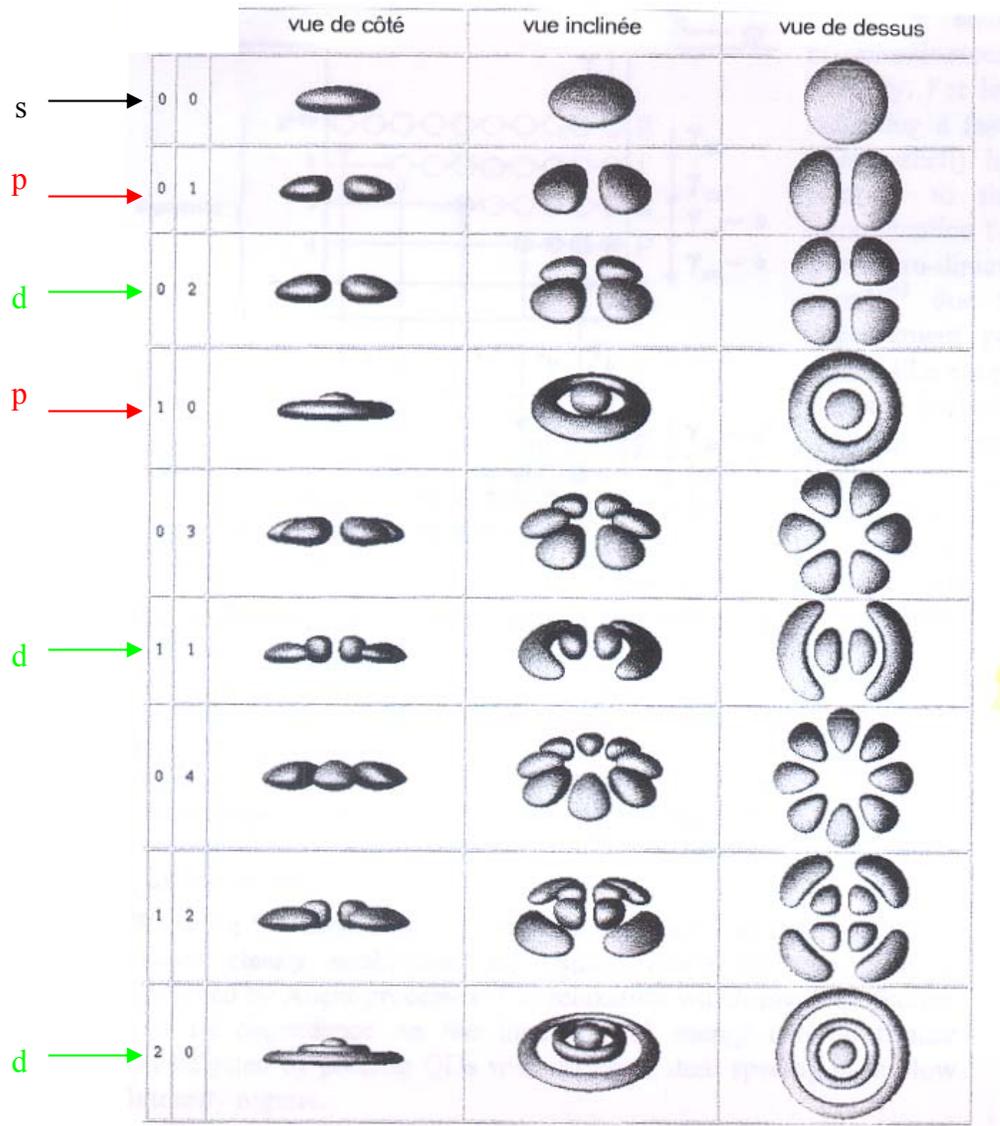


Figure I-5: Forme des orbitales dans des boîtes quantiques hémisphériques,  $m=0$  pour l'orbitale  $s$ ,  $m=1$  pour les deux orbitales  $p$  et  $m=2$  pour les trois orbitales  $d$ . [7]

## I.5 Densité d'états.

Pour un système 0D comme les points quantiques, la densité d'états a théoriquement la forme d'une série de raies  $\delta$  :

$$\frac{dN}{dE} \propto \frac{d}{dE} \sum_{\varepsilon_i < E} \theta(E - \varepsilon_i) = \sum_{\varepsilon_i} \delta(E - \varepsilon_i), \quad \text{Équation 1.14}$$

où :

$\varepsilon_i$  représente l'énergie du niveau discret  $i$ ;

$\theta$  est la fonction de Heavyside;

$\delta$  est la fonction de Dirac.

Dans la pratique, on n'observe pas de pics  $\delta$  mais des pics élargis. Généralement cet élargissement peut être caractérisé par une fonction gaussienne. On distingue deux types d'élargissement. Le premier est dû à diverses interactions entre la paire électron-trou et les phonons du système ou les fluctuations du vide (origine de l'émission spontanée). Les déphasages causés par ces interactions se traduisent par un élargissement homogène de la raie (forme de type Lorentzienne). Il s'ajoute à ce phénomène un second élargissement de nature inhomogène (raie gaussienne) qui est dû à l'inhomogénéité de la taille, des contraintes et/ou de la composition des boîtes quantiques. Dans le cas des échantillons recuits, les irrégularités induites par l'interdiffusion des atomes de Ga et d'In aux interfaces puits/barrières peut causer un élargissement inhomogène supplémentaire. (cf paragraphe II.1.3)

La figure I-6 illustre l'effet de l'inhomogénéité de la taille des points quantiques sur un diagramme d'absorption, qui reflète parfaitement la forme de la densité d'états. Notons également que sur l'ensemble des spectres expérimentaux obtenus et présentés plus loin, l'élargissement inhomogène prédomine sur l'élargissement homogène.

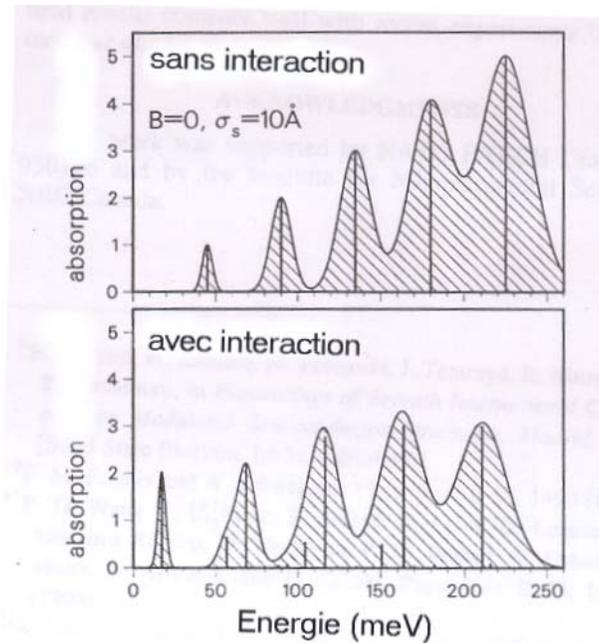


Figure I-6: Spectre d'absorption d'un système à points quantiques avec interaction (figure du bas) et sans interaction (figure du haut) entre les excitons à champ magnétique nul et incluant une distribution de la taille des points quantiques de rayon moyen  $s=180 \text{ \AA}$  et d'écart type  $\sigma_s=10 \text{ \AA}$ . [9]

## I.6 Confinement des trous.

Nous avons vu à partir du diagramme de bande (cf paragraphe I.3) qu'à la fois les électrons de la bande de conduction et les trous de la bande de valence sont confinés dans les boîtes quantiques. Une description réaliste des trous de la bande de valence nécessite l'inclusion de plusieurs sous-bandes, notamment la bande de trous lourds et celle de trous légers, ce qui complique fortement la situation. De plus il a été montré [10] que les interactions entre les bandes de trous lourds et de trous légers sont considérablement accrues lorsque la taille des boîtes quantiques est réduite. Néanmoins, certains facteurs comme les contraintes présentes dans les points quantiques auto assemblés compensent les effets des interactions entre sous-bandes, si bien qu'il devient possible de traiter la bande de valence comme une bande unique. [11]

Pour les boîtes quantiques auto assemblées dont la taille est comparable au rayon de Bohr effectif pour les trous et les électrons, il a été montré que les deux types de porteurs sont fortement corrélés et forment des gaz d'excitons, voir même de multi-excitons. Le confinement des deux types de porteurs dans les boîtes quantiques peut donc être introduit sous la forme

d'excitons. Rigoureusement cette approximation ne pourrait seulement s'appliquer qu'à faible densité de porteurs. A forte densité, l'attraction coulombienne entre électrons et trous est efficacement écrantée ce qui limite la création d'excitons. Dans cette étude, nous nous limiterons à discuter les résultats en termes d'excitons puisque dans nos échantillons le rayon de Bohr effectif  $a_0$  des électrons est environ de  $7\text{\AA}$  et celui des trous est proche de  $1\text{\AA}$ . ( $a_0 = \hbar^2 / m_i^* e^2$  où  $m_i^*$  représente la masse effective des porteurs,  $m_e^* = 0.067m_0$  pour les électrons et  $m_h^* = 0.5m_0$  pour les trous) Pour plus de détails sur les multi-excitons, on pourra consulter par exemple les références 12 et 13.

## **I.7 Etats de Fock-Darwin.**

Le déplacement d'un électron de la bande de conduction, confiné dans un puits parabolique à deux dimensions et soumis à un champ magnétique externe perpendiculaire est décrit sous l'approximation de la masse effective par l'hamiltonien suivant :

$$H = \frac{1}{2m^*} (\vec{p} - e\vec{A})^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 r^2 \quad \text{Équation 1.15}$$

qui peut aussi s'écrire :

$$H = \frac{p^2}{2m^*} + \frac{1}{2} m^* (\omega_0^2 + \frac{1}{4} \omega_c^2) r^2 - \frac{1}{2} \omega_c l_z \quad \text{Équation 1.16}$$

où  $p$  est l'impulsion,  $l_z = x p_y - y p_x$  est la projection du moment angulaire orbital sur la direction du champ,  $\omega_c = \frac{eB}{m^*}$  est la fréquence cyclotron, et  $\vec{A}$  est le potentiel-vecteur. Dans la jauge symétrique on a  $\vec{A} = \frac{1}{2} B(y, -x, 0)$ . Les états propres de cet hamiltonien ont été calculés par Fock [14] et Darwin [15].

La représentation en coordonnées cylindriques  $(r, \theta)$  est ici très utile en raison de la symétrie circulaire de l'hamiltonien. Le moment angulaire  $m$  est alors un bon nombre quantique et il devient possible de séparer les variables et d'écrire la fonction d'onde de l'électron sous la forme :

$$\phi_{nm}(r, \theta) = \psi_m(\theta) R_{nm}(r) \quad \text{Équation 1.17}$$

La fonction dépendant de  $\theta$  prend la forme :

$$\psi_m(\theta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{im\theta} \quad \text{Équation 1.18}$$

alors que la fonction dépendant de  $r$  s'écrit :

$$R_{nm}(r) = \frac{\sqrt{2}}{l_0} \sqrt{\frac{n_r!}{(n_r + |m|)!}} \left(\frac{r}{l_0}\right)^{|m|} \exp\left(-\frac{r^2}{2l_0^2}\right) \mathfrak{L}_{n_r}^{|m|}\left(\frac{r^2}{l_0^2}\right) \quad \text{Équation 1.19}$$

où  $\mathfrak{L}_{n_r}^{|m|}(z)$  représente les polynômes de Laguerre :

$$\mathfrak{L}_{n_r}^{|m|}(z) = \frac{1}{m!} z^{-|m|} e^z \frac{d^{n_r}}{dz^{n_r}} \left( z^{n_r+|m|} e^{-z} \right) \quad \text{Équation 1.20}$$

$n = 0, 1, 2, \dots$  est le nombre quantique principal,  $m = -n, -n+2, \dots, n-2, n$  est le nombre quantique azimutal et  $n_r = (n - |m|)/2$  est le nombre quantique radial.

A ces fonctions propres correspondent les énergies propres  $\varepsilon(n, m)$  :

$$\varepsilon(n, m) = \hbar\Omega(n+1) - \frac{1}{2}\hbar\omega_c m \quad \text{Équations 1.21}$$

où  $\Omega$  est tel que  $\Omega^2 = \omega_0^2 + \frac{1}{4}\omega_c^2$ .

L'évolution des spectres d'énergie avec le champ magnétique est représentée sur la figure I-7. La séparation Zeeman due au spin est ici négligée. (La séparation Zeeman augmente avec le champ magnétique et est de l'ordre du meV [16] alors que la séparation des orbitales est au moins

dix fois plus grande sur la gamme de champ magnétique étudiée [1T-14T].) Les paires de nombres quantiques  $(n_+, n_-)$  sur l'axe vertical caractérisent les états propres de l'électron sachant que :

$$n = n_- + n_+ \quad \text{et} \quad m = n_- - n_+.$$

Les droites en tirets indiquent les niveaux de Landau vers lesquels les états propres convergent dépendamment des valeurs de  $n$  et  $m$  considérées. On remarque principalement que l'application d'un champ magnétique parallèle à l'axe de croissance des boîtes quantiques entraîne la levée de dégénérescence des niveaux, ce qui conduit à des croisements de niveaux et à une restructuration des états. Notons également que le niveau fondamental se déplace avec B (les références 17 et 18 donnent plus de détails sur ce décalage diamagnétique du niveau fondamental).

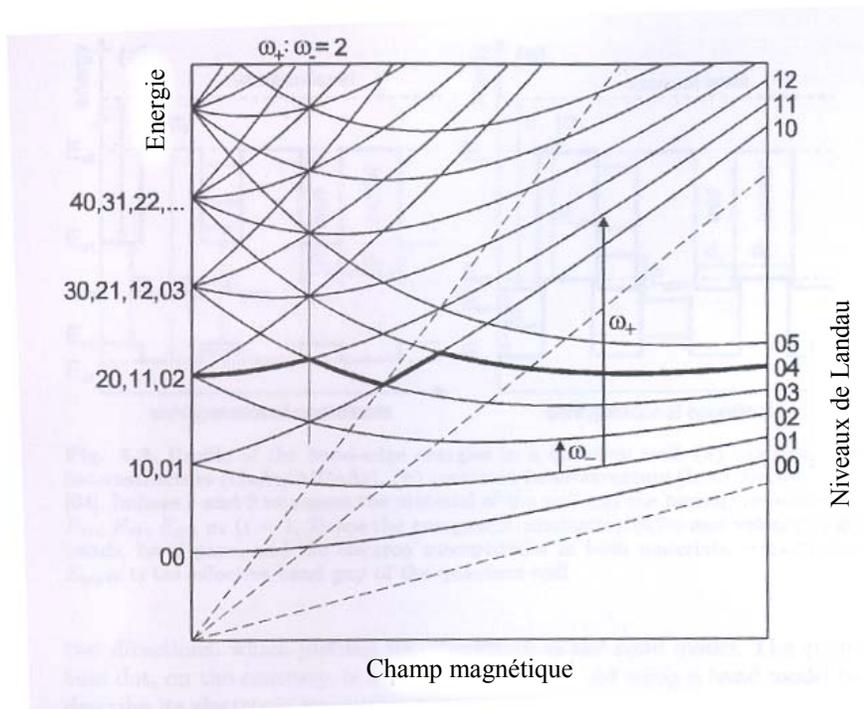


Figure I-7: Évolution des niveaux d'énergie de Fock-Darwin avec le champ magnétique. Les lignes en pointillés indiquent la position des niveaux de Landau. [19]

Cette dernière figure I-7 est cruciale car elle nous permettra par la suite de bien comprendre l'évolution des spectres d'énergie des boîtes quantiques avec le champ magnétique, ce qui représente un point essentiel de ce mémoire.

## **Chapitre II : Fabrication et propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées.**

Il existe aujourd'hui de nombreuses techniques de fabrication de points quantiques. Une première méthode, développée par l'équipe de recherche dirigée par Reed [20,21], consiste à graver une structure contenant un gaz d'électrons à deux dimensions. L'avènement des techniques de lithographie par faisceau d'électrons a permis l'obtention de boîtes quantiques de quelques dizaines de nanomètres. [22] Une deuxième méthode réside sur le confinement électrostatique des électrons d'un puits quantique à l'aide de grilles métalliques convenablement polarisées, de formes et de tailles adéquates, déposées en surface de l'hétérostructure au moyen de techniques de lithographie. [20, 23, 24, 25] Bruner et al. ont également décrit une méthode d'obtention de points quantiques basée sur un puits quantique chauffé localement par un faisceau laser. [20, 26] Ekimov et al. ont quant à eux créé des points quantiques sous la forme de nanocristaux semi-conducteurs immergés dans des matrices diélectriques de verre. [20, 27] Les points quantiques peuvent aussi être fabriqués par croissance sélective d'un composé semi-conducteur (par ex. GaAs) sur la surface d'un autre composé de gap plus élevé (ex AlGaAs), en utilisant des masques de croissance appropriés de façon à ce que la croissance n'intervienne que dans des régions prédéfinies. [20, 28] Finalement, il est possible de fabriquer des boîtes quantiques auto-assemblées par libération de champs de contraintes lors d'un dépôt par épitaxie par jets moléculaires (MBE). Dans ce chapitre, nous mettrons uniquement l'accent sur cette dernière technique puisque nos échantillons ont été conçus de la sorte.

### **II.1 Technique d'auto-assemblage par croissance épitaxiale.**

#### **II.1.1 Modes de croissance cristalline.**

Avant de décrire la technique de fabrication des boîtes quantiques auto-assemblées, il est important de rappeler les différents modes de croissance épitaxiale. En effet, la croissance cristalline sur un substrat par MBE (Molecular Beam Epitaxy) ou MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) peut se produire de trois manières différentes comme le montre schématiquement la figure II-1 : le mode Franck van der Merwe (FM), le mode Volmer Weber (VW) et enfin le mode Stranski Krastanow (SK).

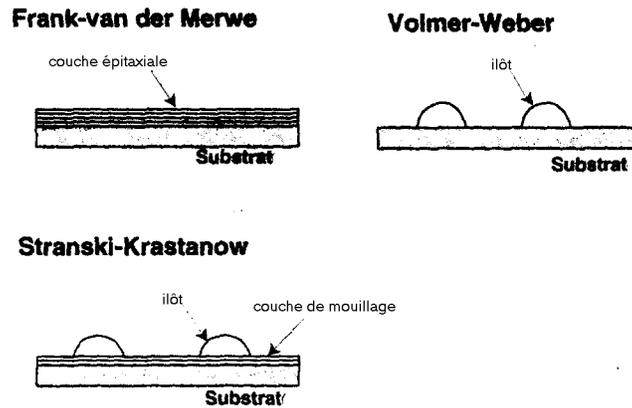


Figure II-1: Trois modes de croissance cristalline sur un substrat : Franck van der Merwe (FM), Volmer-Weber (VW) et Stranski-Krastanow (SK). [29]

La croissance FM se déroule couche par couche alors que la croissance VW crée des îlots 3D sur le substrat à condition que le film ait une énergie de surface plus grande que celle du substrat. Quant à la croissance SK, elle est une combinaison des deux modes précédents. En effet, une croissance de quelques monocouches créant un film mince que l'on appelle couche de mouillage (Wetting layer WL) est suivie par la nucléation d'îlots.

Pour connaître le type de mode qui va préférentiellement se développer, il est nécessaire d'étudier la différence d'énergie de surface et d'interface entre les deux matériaux (substrat et film) et l'énergie de contrainte accumulée au cours de la croissance. Cette énergie de contrainte naît en fait de la différence de paramètres de maille cristalline entre les deux matériaux.

K. Nakajima a établi un diagramme de phase pour les composés ternaires III-V permettant de savoir en fonction de la composition et de l'épaisseur déposée quel est le mode de croissance privilégié. [30] Son travail est basé sur le calcul de l'énergie libre de chaque structure. Cette énergie libre a été dérivée à partir de l'équilibre entre les énergies de contrainte, de surface et d'interface. La figure II-2 présente le résultat obtenu pour InPSb.

Notons que la croissance SK est la plus fréquemment rencontrée lorsque l'on cherche à faire croître des matériaux semi-conducteurs sous contrainte. Les échantillons étudiés dans le cadre du présent travail ont d'ailleurs été fabriqués selon ce mode SK.

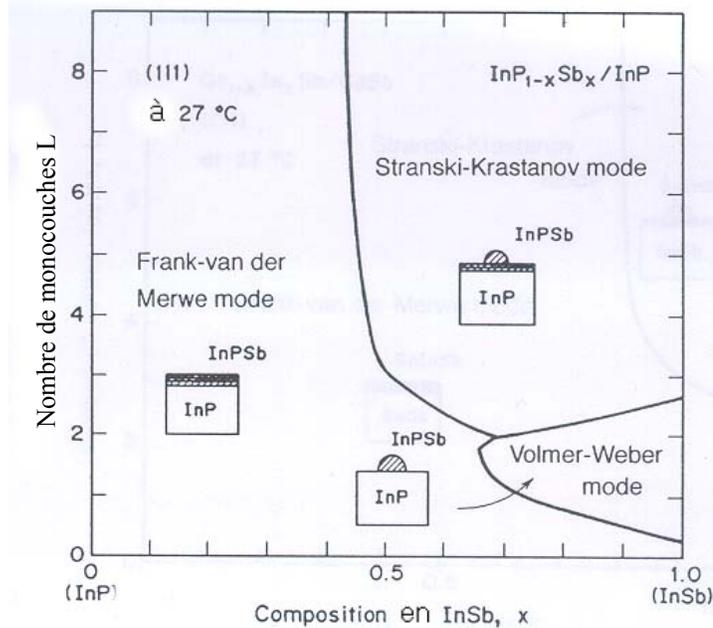


Figure II-22: Diagramme de phase épaisseur-composition pour les modes FM, SK et VW pour une structure InPSb/InP (111). [30]

### II.1.2 Points quantiques auto-assemblés InAs/GaAs.

Grâce à la méthode de croissance SK, il est donc possible de créer des points quantiques par MBE ou MOCVD sans utiliser de masque. Dans le cas d'InAs déposé sur un substrat de GaAs, il est possible de bénéficier de cet avantage. En effet, les paramètres de maille d'InAs et de GaAs diffèrent de 7%, par conséquent les premières couches d'InAs déposées cristallisent sous forme épitaxiale. Ces monocouches possèdent le paramètre de maille du substrat GaAs et sont donc sous contrainte. A partir d'une épaisseur critique, la contrainte devient significative et conduit à l'arrêt de la croissance ordonnée et à la création spontanée d'îlots distribués aléatoirement à la surface des échantillons. Il suffit ensuite de recouvrir la structure d'une autre couche de GaAs pour obtenir une structure de points quantiques. La forme et la taille moyenne

des îlots dépendent de nombreux facteurs, comme l'amplitude de la contrainte due à la différence de paramètre de maille entre les deux matériaux, ou encore la température de croissance. [31]

La figure II-3 présente la dépendance du nombre critique de monocouches d'InGaAs déposées sur un substrat de GaAs où a lieu la transition de phase par rapport à la composition en In. Sachant également que la composition en In joue sur la différence de paramètre de maille, moins InGaAs contient d'In et plus le paramètre de maille d'InGaAs se rapproche de celui du substrat GaAs. La figure II-3 nous permet également d'évaluer l'évolution de l'épaisseur critique en fonction de la contrainte. On constate évidemment que plus le matériau est sous contrainte, plus la transition de phase se produit rapidement.

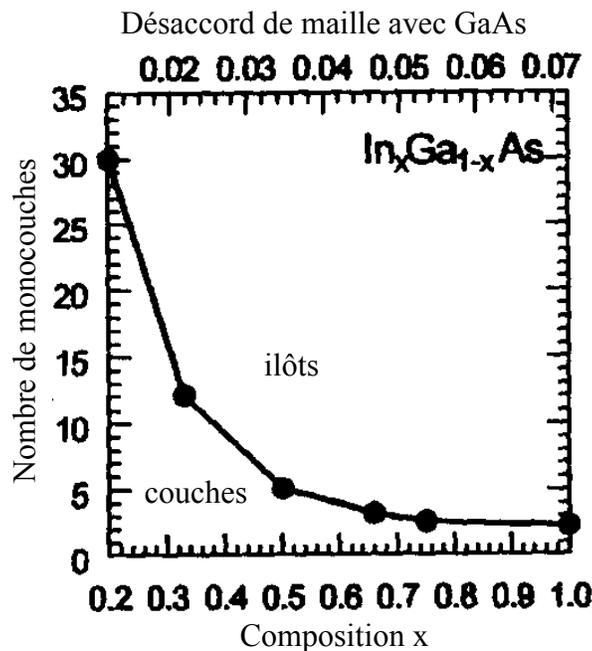


Figure II-3: Dépendance de l'épaisseur critique de la couche de InGaAs déposée à laquelle apparaît la croissance SK en fonction de la concentration en Indium. (ou, en d'autres mots, en fonction de la contrainte). [20]

La figure II-4 présente les différentes phases de création des îlots lors d'un dépôt d'InAs pur sur un substrat de GaAs. Selon la figure II-3, la transition de phase doit se produire après avoir déposé 1.8 monocouches.

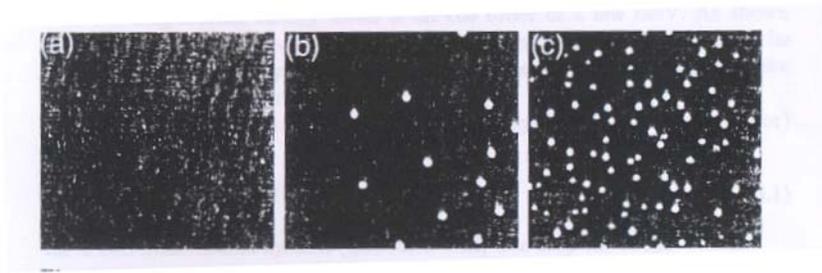


Figure II-4: Évolution des points quantiques auto assemblés InAs (cercles blancs) lors d'une croissance MBE sur un substrat GaAs. La figure (a) correspond à une épaisseur de 1.6 monocouches déposée, la figure (b) à 1.7 monocouches et la figure (c) à 1.8 monocouches. [20]

Les points quantiques formés par croissance SK possèdent un diamètre de l'ordre de 30 nm, voire même plus petit, et leur forme peut être celle d'une lentille tronquée ou pyramidale. [32, 33] Ce type de points quantiques sont généralement de grande qualité cristalline (peu ou pas de défauts d'interface). De plus, le procédé de fabrication est simple, dans le sens où il ne nécessite pas l'utilisation de masques. Par contre la distribution de taille des points quantiques n'est pas bien uniforme ce qui peut être un inconvénient dans certaines applications. Les progrès des technologies de croissance et de fabrication [31] laissent présager des améliorations dans ce domaine.

La figure II-5 décrit la fluctuation de taille de points quantiques InGaAs/GaAs fabriqués par MOCVD. La taille des points quantiques a été évaluée à partir d'images obtenues par microscopie électronique à transmission (TEM). On constate que la distribution des diamètres suit une loi gaussienne.

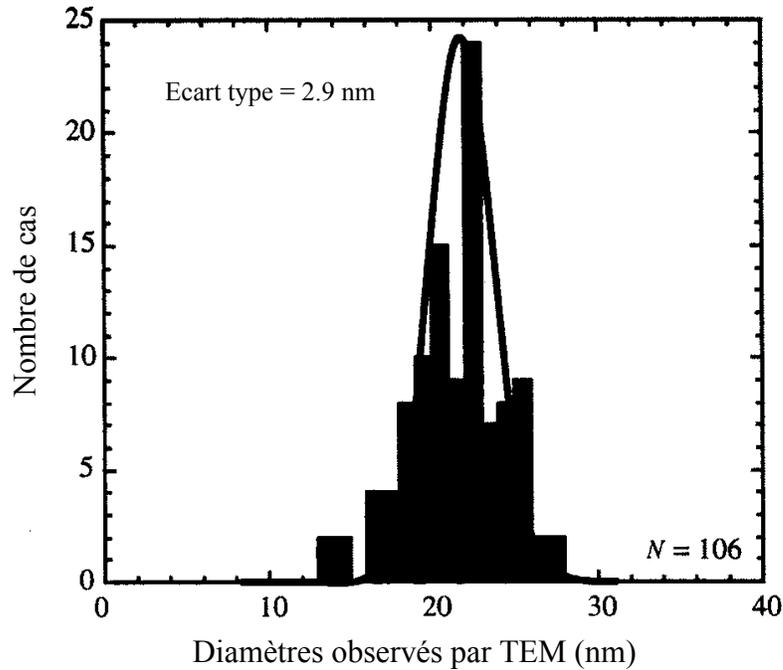


Figure II-5: Diamètres de 106 points quantiques InGaAs/GaAs crûs par MOCVD observés par imagerie électronique à transmission (TEM). La distribution suit une loi gaussienne d'écart type 2.9 nm. [34]

### II.1.3 Technique d'interdiffusion .

L'intérêt de l'interdiffusion est de pouvoir transformer une interface abrupte entre deux matériaux en une interface plus lisse. Dans notre cas l'interdiffusion est produite par recuit thermique rapide (RTA) effectué sous atmosphère neutre (90% azote + 10% hydrogène). En maîtrisant la durée et la température du recuit, il est possible de contrôler l'aspect de l'interface.

Dans le cas de points quantiques InAs/GaAs auto-assemblés, l'interdiffusion des atomes In et Ga à l'interface entre les boîtes quantiques InAs et les barrières GaAs implique un changement au niveau de la taille et de la composition des boîtes quantiques pendant le recuit. Il en résulte donc une modification du potentiel de confinement des boîtes quantiques. (cf paragraphe II.2.2)

Avant le recuit thermique rapide, les échantillons de type III-V sont la plupart du temps recouvert par une couche de SiO<sub>2</sub> puisqu'il est reconnu que SiO<sub>2</sub> favorise l'interdiffusion de

lacunes du groupe III, ce mécanisme génère ensuite l'interdiffusion des atomes In et Ga aux interfaces entre les boîtes quantiques et les barrières. [35]

## **II.2 Propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées.**

### **II.2.1 Allure des spectres de photoluminescence.**

Puisque les spectres de photoluminescence ou d'absorption (cf paragraphe IV.1) sont constitués par la superposition des lignes d'émission ou d'absorption de chaque point quantique et que la taille des points quantiques joue sur le potentiel de confinement et donc sur les niveaux d'énergie (cf paragraphe I.3), la distribution de la taille des boîtes quantiques va inévitablement causer un élargissement des pics de PL que l'on qualifie d'élargissement inhomogène (cf paragraphe I.5).

La figure II-6 présente les spectres simulés d'absorption d'un ensemble de points quantiques pour différentes distributions gaussiennes de taille. On constate que selon le niveau d'uniformité de la taille des boîtes quantiques, les spectres sont plus ou moins bien résolus.

Notons également que la distribution de taille des boîtes quantiques n'est pas le seul paramètre structurel pouvant influencer l'élargissement des pics des différents spectres d'absorption ou de luminescence. Par exemple, dans le cas de points quantiques InGaAs/GaAs, la variation de composition en In dans chaque boîte quantique implique aussi un élargissement des pics. [36]

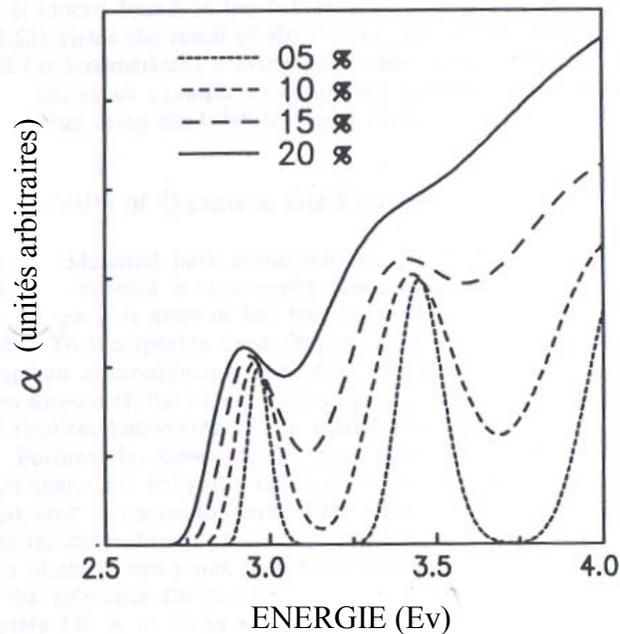


Figure II-6: Spectre d'absorption de points quantiques pour différentes distributions (gaussiennes) de taille dont l'écart type est donné en pourcentage. [37]

Il est difficile de s'affranchir de l'élargissement inhomogène lorsque l'on réalise des mesures d'absorption ou de luminescence, étant donné que l'échantillon est sondé sur une région contenant un grand nombre de points quantiques. Par contre, une meilleure maîtrise des procédés de fabrication permet d'améliorer considérablement la qualité des spectres. [31] On peut également limiter l'influence des paramètres structuraux des boîtes quantiques sur la largeur des pics en sondant un nombre limité de points quantiques. [38]

### II.2.2 Effet de l'interdiffusion sur les spectres de photoluminescence.

Expérimentalement, on peut constater que l'interdiffusion des points quantiques entraîne trois effets principaux (cf paragraphe IV.1) : plus la structure est interdiffusée et plus le décalage des niveaux quantiques vers les hautes énergie est visible, plus l'espacement inter-niveaux est réduit et plus les pics d'émission s'affinent. [39, 40]

Ces phénomènes expérimentaux peuvent se comprendre à l'aide d'un modèle simple où l'interdiffusion est modélisée par une loi de Fick à une dimension correspondant à la direction de croissance des boîtes quantiques. [40] Les principaux effets de l'interdiffusion sont effectivement attendus selon l'axe de croissance car le rapport d'aspect des points quantiques étudiés (hauteur divisée par le diamètre des boîtes) est faible. [41]

La figure II-7a présente le profil typique d'une boîte quantique ayant une forme de lentille tronquée, de hauteur 3.6 nm et de diamètre 25 nm. Un potentiel de confinement radial peut alors être déduit de ce profil en résolvant l'équation de Schrödinger pour la direction verticale en fonction de la position par rapport au centre de la boîte. (cf paragraphes I.3 et I.4)

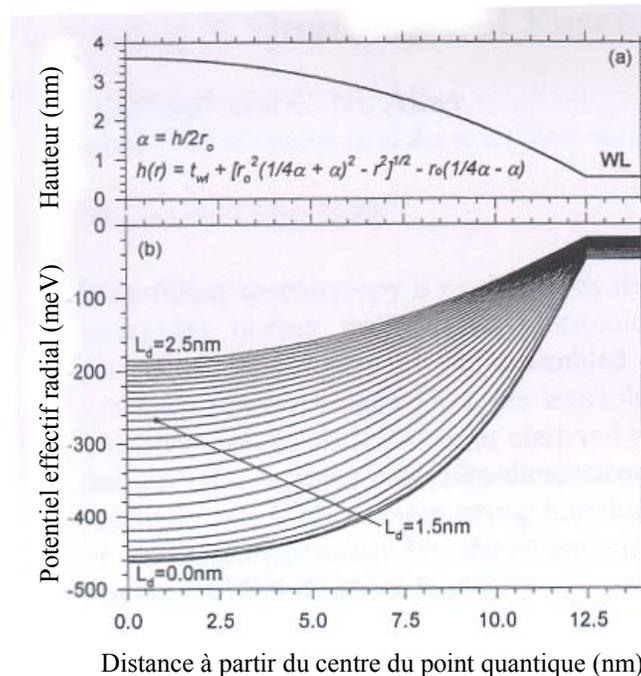


Figure II-7: Modélisation des effets de l'interdiffusion sur des points quantiques de diamètre 25nm, de hauteur 3.1nm et d'épaisseur de couche de mouillage (WL) 0.5nm (figure a). Le rayon effectif du potentiel de confinement est tracé sur la figure b) en fonction de la position par rapport au centre du point quantique et pour différentes longueurs de diffusion. [40]

La figure II-7b montre les résultats de la modélisation pour différentes longueurs de diffusion (i.e. pour différents degrés d'interdiffusion). On constate que la courbure du potentiel de confinement est moins prononcée et que sa profondeur a été réduite après interdiffusion, ce

qui conduit à un décalage des niveaux d'énergie vers les hautes énergies et à un espacement inter-niveaux plus étroit, tel qu'observé expérimentalement. [40] Si l'on compare pour une longueur de diffusion donnée l'évolution du potentiel effectif au centre et sur les bords de la boîte, on peut déduire que les régions où le confinement est plus fort sont plus rapidement modifiées par l'interdiffusion que les régions à faible confinement. Ainsi, on tend vers une uniformisation de l'ensemble des potentiels de confinement des points quantiques de la structure, ce qui se traduit sur les spectres de PL par une réduction de la largeur des pics.

### **II.2.3 Transitions optiques dans les points quantiques.**

Les transitions radiatives entre les états de conduction et de valence d'un point quantique répondent à des règles de sélection qui s'expriment en fonction des différents nombres quantiques caractérisant ces états. Il a été montré [42] dans le cas simple d'un système d'électrons et de trous sans interaction et dans un modèle à deux bandes (i.e. en négligeant la dégénérescence de la bande de valence), que les transitions inter-bandes permises impliquent des électrons et des trous possédant le même moment angulaire total  $m$  et des nombres quantiques angulaires (azimutaux)  $n_\theta$  opposés. Cela suppose donc également qu'électrons et trous soient dans des états où les nombres quantiques radiaux  $n_r$  sont identiques. On verra par la suite que les différents spectres obtenus expérimentalement permettent de valider les approximations faites dans cette approche.

## Chapitre III : Partie expérimentale

### III.1 Échantillons étudiés.

Deux séries d'échantillons ont été examinées. La première était constituée d'hétérostructures ne comprenant qu'une seule couche de points quantiques alors que dans la seconde série, les hétérostructures en comportaient 25. Les échantillons à simple couche ont été fabriqués à partir d'un substrat de GaAs (001) non dopé sur lequel on a fait croître par MBE de l'InAs. Comme il a été décrit précédemment, une couche mince de mouillage (2D) d'InAs se développe dans un premier temps suivie ensuite de la formation des îlots. Le tout est alors recouvert d'une couche (cap layer) de GaAs non dopé d'épaisseur 35 nm de façon à obtenir le confinement 0D caractéristique des points quantiques. Les points quantiques ainsi fabriqués ont une forme de lentille tronquée avec des diamètres et hauteurs moyens d'environ 20 nm et 2.9 nm respectivement. La densité des îlots est voisine de  $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ .

Plusieurs échantillons ont été découpés à partir de l'échantillon de base de façon à pouvoir réaliser différents recuits thermiques rapides d'interdiffusion. Auparavant, l'échantillon de base a été recouvert d'une épaisse couche de  $\text{SiO}_2$  (300nm). [41] Les recuits ont été réalisés à  $850^\circ\text{C}$  et pour des durées variant entre 15 et 60 secondes.

Les échantillons multicouches ont été obtenus selon le même principe que les échantillons à simple couche. Après la croissance de la première couche de points quantiques InAs, on dépose une couche de GaAs d'épaisseur 30 nm, puis on redémarre la croissance des points quantiques et ainsi de suite jusqu'à l'obtention du nombre de couches désiré. L'épaisseur de la couche de GaAs séparant deux couches de points quantiques InAs est importante. Si cette couche est suffisamment épaisse, la croissance des îlots se fait indépendamment des couches précédemment déposées. Par contre, si l'épaisseur est inférieure à une certaine valeur critique, les îlots vont s'aligner par rapport aux îlots des couches inférieures. En effet, si l'on considère par exemple le cas de la première couche d'InAs, les îlots vont créer une force de tension dans la couche de GaAs. Localement, le paramètre de maille du GaAs intermédiaire va donc être étiré. Ainsi au cours de la formation de la deuxième couche, InAs va préférentiellement migrer vers les zones où la différence de paramètre de maille est la plus faible, c'est à dire au dessus des îlots de la

première couche. (Fig. III-1) Dans notre cas, l'épaisseur de la couche de GaAs intermédiaire est suffisamment épaisse pour avoir des croissances d'îlots indépendantes entre chaque couche. La dernière couche de GaAs déposée (cap layer) possède une épaisseur de 100 nm.

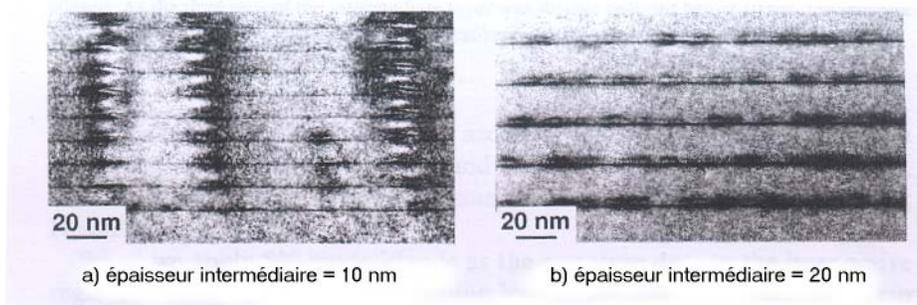


Figure III-14: Section transverse de points quantiques InAs/GaAs multi-couches obtenue par microscopie TEM pour deux épaisseurs différentes de couches de GaAs intermédiaires. A 10nm (figure a), les points quantiques s'alignent d'une couche à une autre, alors que ce n'est pas le cas pour un espacement de 20nm (figure b)[29]

Comme pour les échantillons à simple couche, l'échantillon de base multicouche a été découpé après avoir été recouvert soit de SiO<sub>2</sub>, soit de SrF<sub>2</sub> de façon à pouvoir effectuer différents recuits. Comme SrF<sub>2</sub> favorise moins l'interdiffusion que SiO<sub>2</sub> [39], le fait d'avoir utilisé les deux types de matériaux nous a permis d'obtenir une gamme plus étendue de degrés d'interdiffusion. Les recuits ont été pratiqués pour différentes températures, de 720 à 880°C et pour différentes durées variant de 15 à 45s.

### **III.2 Technique de la photoluminescence associée aux points quantiques.**

La photoluminescence est un excellent moyen de caractériser les points quantiques et de mettre en évidence leurs propriétés et notamment leur caractère 0D. Il s'agit en effet d'exciter les électrons de la bande de valence vers la bande de conduction à l'aide d'un signal lumineux ayant une énergie suffisante pour assurer la transition. Il a été montré précédemment (Fig. I-2) que dans le cas des points quantiques InAs/GaAs, les états de plus basse énergie sont associés aux états confinés des boîtes quantiques (InAs). Par conséquent, les électrons et les trous suffisamment proches des boîtes quantiques vont relaxer de manière non radiative dans les niveaux quantiques

(cf paragraphe III.3) avant de se recombinaison radiativement. En récoltant le signal issu de la recombinaison (spectre de photoluminescence), il devient alors possible d'obtenir des informations sur l'écart des niveaux d'énergie dans les points quantiques, et leur évolution en fonction des paramètres de recuit ou du champ magnétique, par exemple.

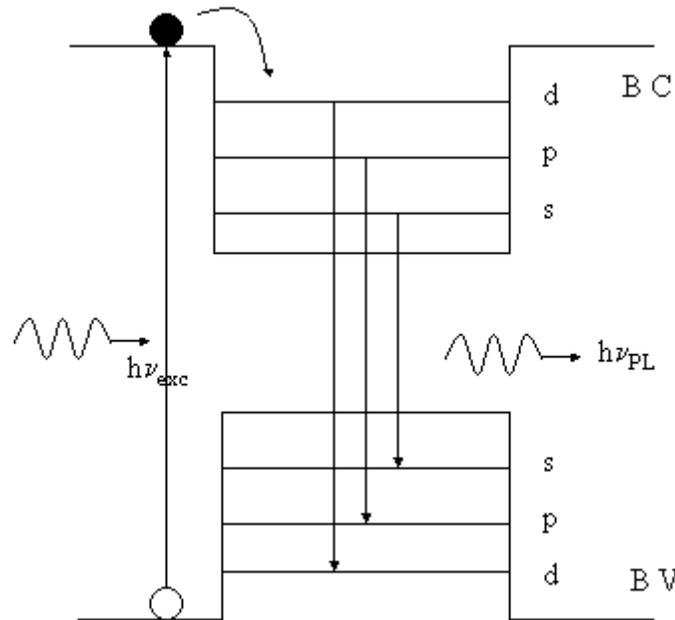


Figure III-2: Principe de la photoluminescence dans les points quantiques.

Compte tenu du fait que dans une boîte quantique la dégénérescence des états de basses énergies est faible, il est plus facile d'observer dans les spectres de PL la signature des états excités comparativement au cas des puits quantiques. De plus, la quantification complète des états rend plus difficile la relaxation inter-niveaux (cf paragraphe III.3), ce qui accentue cette spécificité des spectres de PL de points quantiques.

### **III.3 Relaxation des porteurs dans les points quantiques.**

La relaxation des porteurs joue un rôle important dans les performances de dispositifs optiques ultrarapides et les dispositifs lasers à points quantiques. Par conséquent, il est important d'en comprendre les mécanismes. Dans certains types de mesures, telle que l'excitation de la

photoluminescence (PLE), la possibilité d’observer les pics associés aux niveaux de plus hautes énergies (i.e. les niveaux excités des points quantiques) dépend de la compétition entre les processus de recombinaisons radiatives des paires électron-trou et ceux de relaxation (non radiatives) des porteurs. Les mécanismes de relaxation des porteurs dans les points quantiques peuvent en fait être regroupés en deux types, comme le montre la figure III-3. Le premier est associé à la relaxation des porteurs du continuum de la couche de mouillage vers les niveaux discrets des points quantiques, et le second se rapporte à la relaxation des porteurs à l’intérieur des boîtes quantiques, autrement dit entre les niveaux discrets.

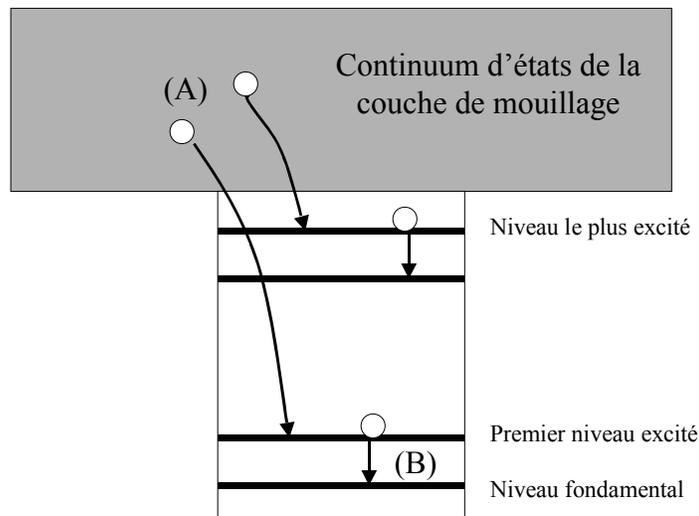
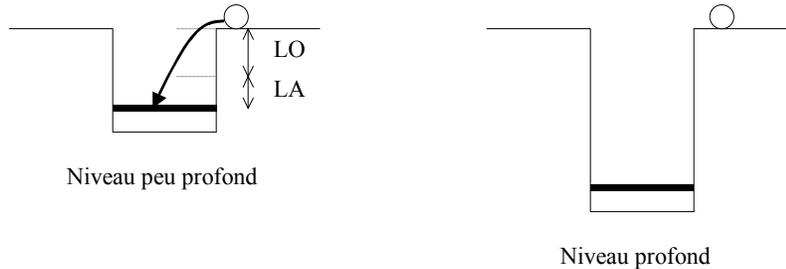


Figure III-3: Deux types de relaxation dans les points quantiques : (A) relaxation à partir du continuum de la couche de mouillage, et (B) relaxation entre les niveaux discrets.

En photoluminescence, dans le cas où l’énergie des photons d’excitation est supérieure au gap du matériau constituant les barrières de potentiel (GaAs dans notre cas), ces deux canaux de relaxation doivent être pris en compte. Puisque la loi de conservation de l’énergie doit être respectée, les porteurs qui relaxent doivent transmettre leur énergie en excès à d’autres particules telles que des phonons ou d’autres porteurs.

Parmi les différents mécanismes de relaxation possibles, mentionnons les processus faisant intervenir les interactions avec les phonons longitudinaux optiques (LO) et acoustiques (LA) et la relaxation Auger. (Fig. III-4)

(a) Processus multiphonons



(b) Processus Auger



Figure III-4: Schématisation des procédés de relaxation multi-phonons (figure a) et de relaxation Auger (figure b). (Relaxation de type A)

Pour devenir dominante, la relaxation Auger nécessite la présence d'une forte concentration de porteurs, que ce soit à l'extérieur des boîtes quantiques (i.e. dans la couche de mouillage) où à l'intérieur (relaxation Auger "intra-dot"). En effet, à forte densité, un électron peut par exemple plus facilement rencontrer un autre électron ou un trou, lui transférer son énergie et tomber dans les niveaux d'énergie des points quantiques. La relaxation Auger est donc efficace pour amener les porteurs dans les niveaux profonds des points quantiques tant que la concentration de porteurs dans la couche de mouillage est suffisante. [43]

Pour être efficaces, les procédés de relaxation multi-phonons imposent une correspondance entre l'énergie des phonons et la distance entre les niveaux discrets des points quantiques. Plus on fait intervenir simultanément de phonons dans le mécanisme et plus cette

contrainte de correspondance d'énergie est facile à obtenir mais d'un autre côté, plus le processus de relaxation comporte de phonons, et moins il est probable. En réalité, ce sont les processus faisant intervenir conjointement un phonon LA et un phonon LO qui assurent la meilleure relaxation multi-phonons puisque les phonons LO possèdent une énergie fixe relativement proche de celle de l'espacement inter-niveaux. [44]

En photoluminescence, les mécanismes de relaxation sont différents suivant la puissance d'excitation, c'est à dire suivant la densité de porteurs. En effet, à forte puissance, une grande quantité de porteurs est excitée, la relaxation la plus efficace se fera donc selon les processus Auger. On notera tout de même que lorsque la puissance atteint un certain seuil, la relaxation peut être limitée également par des phénomènes de remplissage des niveaux [45]. Par contre, à plus faible puissance, où le nombre de porteurs excités est moins élevé, la capture et la relaxation dans les points quantiques sont dominées par l'émission de phonons. Par conséquent, les porteurs sont dans un premier temps capturés par les niveaux de plus haute énergie des points quantiques avant de relaxer vers les niveaux de plus basse énergie comme s'ils descendaient une échelle de niveaux quantiques. Le procédé de capture se produit à un taux relativement élevé compte tenu du fait que les transitions ont lieu entre le continuum de la couche de mouillage et les niveaux discrets des points quantiques et que dans ce cas, la conservation de l'énergie est facilement respectée par ces processus multi-phonons. Cependant, la relaxation inter-niveaux est quant à elle ralentie de manière significative si la séparation des niveaux ne correspond pas aux énergies des phonons.

Les mécanismes de capture peuvent être fortement limités par les propriétés de transport des porteurs. C'est le cas notamment à basse température où la mobilité des porteurs et des excitons est réduite ce qui augmente considérablement le temps de capture par les boîtes quantiques. En présence d'un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches 2D, les porteurs auront tendance à parcourir des orbites cyclotron dont le rayon est inversement proportionnel à B. Dans le régime de capture quantique, le temps de capture est proportionnel au recouvrement des fonctions d'ondes associées aux porteurs de la couche de mouillage et de la boîte quantique. Il est possible de trouver des conditions d'excitation laser et de densités de boîtes quantiques pour lequel le champ B aura une influence notable sur le temps de

capture. Notons de plus que le temps de vie radiatif des porteurs dans la couche de mouillage a tendance à diminuer avec le champ B car celui-ci affecte l'extension des fonctions d'ondes des électrons et des trous. [46]

### **III.4 Effet de la température sur les spectres de photoluminescence.**

Intéressons-nous dans un premier temps à l'évolution de la largeur à mi-hauteur avec la température. Des manipulations expérimentales ont montré que la largeur à mi-hauteur du pic d'émission (PL) correspondant à l'état fondamental de points quantiques auto-assemblés restait indépendante de la température. [34] Cette observation confirme que la photoluminescence est le résultat de transitions inter-bandes entre les états discrets des bandes de conduction et de valence. En effet, tous les états d'une sous-bande donnée sont exactement associés au même niveau d'énergie, la température ne peut donc pas induire de transition à l'intérieur d'une même sous-bande par opposition avec le cas d'une sous-bande de puits quantique par exemple, où la densité d'états est continue.

Regardons maintenant le comportement des durées de vie de recombinaison associées aux différents niveaux discrets de points quantiques auto-assemblés avec la température. Tout d'abord, on a pu constater expérimentalement que la durée de vie restait quasiment indépendante des niveaux d'émission considérés. Ensuite, on s'est aperçu, toujours expérimentalement, que les durées de vie restaient quasiment constantes avec la température jusqu'à environ 300K. Cette caractéristique des points quantiques auto-assemblés est encore une fois due au caractère 0D de la densité d'états, par opposition à une distribution continue, dépendante de la température, telle qu'on en retrouve dans les systèmes 3D, 2D ou 1D. [47]

L'effet le plus visible de la température sur les spectres de PL des points quantiques auto-assemblés est la chute d'intensité des pics. Comme la durée de vie de recombinaison est indépendante de la température, cette chute de l'intensité peut s'expliquer par la présence de centres non radiatifs à l'extérieur des points quantiques. En effet, au cours des manipulations de photoluminescence, les porteurs sont excités dans les barrières de potentiel (GaAs dans notre cas) avant d'être capturés et de relaxer à l'intérieur des points quantiques. Par conséquent la présence

de centres non radiatifs dans la barrière de potentiel va affecter la capture des porteurs par les points quantiques. Sachant que plus la température est élevée et plus ces centres sont efficaces, on comprend que l'intensité des pics d'émission, qui traduit le nombre de porteurs présents dans les niveaux des points quantiques, se dégrade. Par ailleurs, il faut noter que d'autres facteurs peuvent entraîner une dégradation de l'intensité des pics d'émission, comme la présence de dislocations ou encore la présence de centres non radiatifs à l'intérieur même des points quantiques.

Notons finalement que la température joue également sur la position des pics d'émission des spectres de photoluminescence puisque le gap des semi-conducteurs utilisés varie avec la température.

### **III.5 Effet de la puissance d'excitation sur les spectres de photoluminescence.**

La figure III-5 présente la dépendance des spectres de photoluminescence d'un échantillon comportant 9 couches de points quantiques InAs/InGaAs crus par MOCVD, suivant la puissance d'excitation (i.e. suivant le nombre de porteurs excités). A très faible puissance, un seul pic est parfaitement défini, il s'agit du niveau fondamental des points quantiques. Puis quand la puissance augmente, un deuxième pic, lié au premier niveau excité, se développe, son intensité s'accroît au fur et à mesure que le nombre de porteurs excités augmente jusqu'à dépasser l'intensité du premier pic. A la plus forte densité d'excitation, un épaulement qui vient s'ajouter sur le spectre, du côté des hautes énergies est attribuable aux transitions associées au second niveau excité.

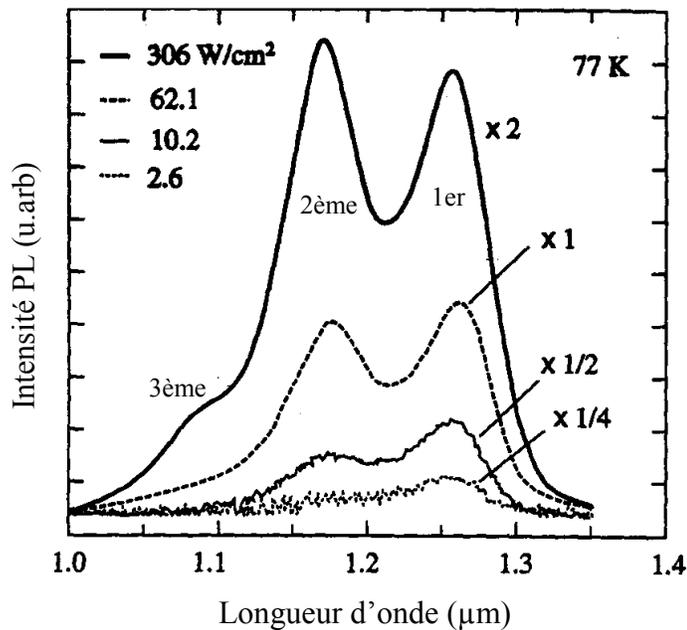


Figure III-5: Spectres PL de points quantiques InGaAs/GaAs composés de neuf couches pour différentes puissances d'excitation. Les échantillons ont été excités par faisceau laser Kr+ à une longueur d'onde de 647.1 nm. [34]

Le nombre de porteurs  $N_i$ , capturés par chaque état  $i$ , est déterminé par un équilibre entre plusieurs processus : la recombinaison radiative au niveau du pic  $i$ , la relaxation à partir de l'état  $i$  (cf paragraphe III.3) et l'émission thermique qui s'effectue à partir de cet état  $i$  (cf paragraphe III.4). Une évaluation du nombre moyen de porteurs présents dans chaque point quantique sera donnée au paragraphe III.6.2.

Trois caractéristiques sont à noter concernant le spectre d'émission de la figure III-5. Tout d'abord, plus l'ordre du niveau quantique est élevé et plus l'émission du pic associée est susceptible d'être intense (dans le cas de la figure III-5, ce phénomène est illustré par les niveaux s et p. Ceci est lié au fait que l'ordre de dégénérescence augmente avec l'indice des niveaux (cf paragraphe I.3). Deuxièmement, la position des pics reste constante avec la puissance d'excitation. Cette concordance de position est liée au caractère 0D de la densité d'états des points quantiques. Et finalement, l'intervalle entre des raies d'émission voisines reste constant, ce

qui est caractéristique d'un confinement quantique de type oscillateur harmonique (cf paragraphe I.3).

## **III.6 Magnéto-photoluminescence.**

### **III.6.1 Description de la manipulation expérimentale .**

La figure III-6 présente un schéma du montage expérimental utilisé pour caractériser nos échantillons. Les mesures de PL ont été réalisées en pompant optiquement l'échantillon à l'aide d'un laser Ti-Saphir émettant à une longueur d'onde de 740 nm, c'est-à-dire à une énergie supérieure à la bande interdite des barrières de GaAs. Ce faisceau d'excitation est acheminé vers l'échantillon à l'aide d'une fibre optique (fibre d'excitation) de diamètre de cœur 400  $\mu\text{m}$ . La fibre d'excitation est insérée dans une canne optique sur laquelle est fixé le porte échantillon. L'extrémité de cette fibre est fixée sur le porte échantillon avec un angle d'environ  $45^\circ$  par rapport à la verticale de l'échantillon. Le faisceau d'excitation sur l'échantillon est de forme elliptique avec un petit axe voisin de 500  $\mu\text{m}$ . La puissance maximale d'excitation atteignant l'échantillon avoisine 120 mW. Cette puissance peut être réduite en plaçant des filtres optiques adéquats à la sortie du laser. Afin de permettre une détection synchrone du signal de PL, l'excitation est hachée à une fréquence de 400 Hz.

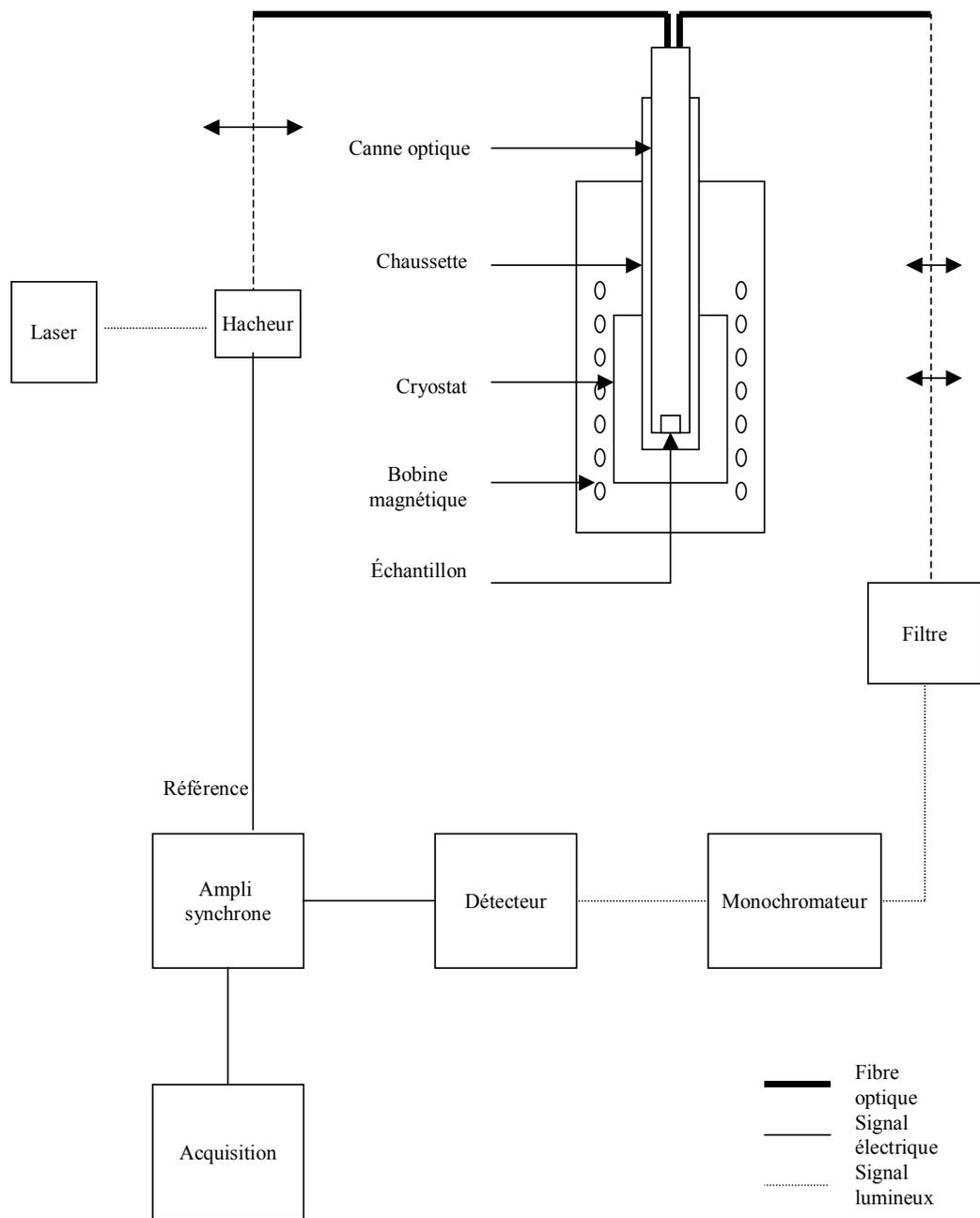


Figure III-6: Schéma du montage de magnéto-photoluminescence.

Une seconde fibre optique (fibre de signal PL) permet de collecter le signal de PL. Elle est identique à la fibre d'excitation et est elle aussi fixée sur le porte échantillon, mais à la verticale de l'échantillon (Fig. III-7). Cette fibre achemine le signal de PL vers un système de lentilles qui focalise celui-ci sur l'entrée d'un monochromateur. Un filtre optique passe-bas est également inséré dans le faisceau du signal de PL afin d'éliminer toute longueur d'onde inférieure à 790 nm, qui pourrait notamment provenir d'une réflexion partielle du faisceau d'excitation sur la surface de l'échantillon et possiblement être néfaste au détecteur. Ce dernier est fixé à la sortie du monochromateur. Deux types de détecteurs ont été utilisés suivant la gamme de longueurs d'onde à détecter, soit un tube photomultiplicateur InGaAs efficace entre 200 et 1000 nm et une photodiode au germanium refroidie à l'azote liquide fonctionnant entre 800 et 1500 nm.

La canne optique est insérée dans une chaussette dans laquelle il est possible de faire le vide. Cette chaussette est plongée dans un cryostat à hélium liquide, de telle façon que l'échantillon se retrouve au cœur d'une bobine supraconductrice permettant d'appliquer un champ magnétique  $B \leq 16$  T perpendiculairement au plan des couches de l'hétérostructure à points quantiques. La plupart des spectres de magnéto-PL ont été obtenus à une température de cryostat de 4.5 K.

La sortie du détecteur est raccordée directement à un amplificateur synchrone dont le signal de référence est fourni par le hacheur (400Hz). Lorsque le signal est trop faible, l'utilisation d'un préamplificateur de courant à la sortie du détecteur peut être avantageuse. Les spectres sont obtenus directement par un système d'acquisition de données.

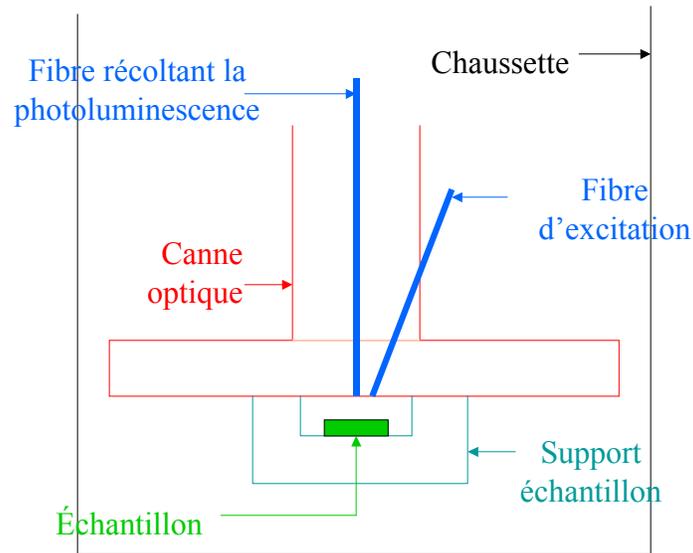


Figure III-7: Vue agrandie du porte-échantillon.

### III.6.2 Évaluation du nombre de porteurs par boîtes quantiques.

Intéressons-nous tout d'abord au cas des échantillons à simple couche.

Soit  $N$  le nombre de boîtes quantiques éclairées :

$$N = \frac{\pi \cdot d^2}{4} \cdot D \quad \text{Équation 3.1}$$

Où  $d$  représente le diamètre du faisceau d'excitation et  $D$  la densité de boîtes quantiques.

Supposons que tous les photons d'excitation sont absorbés dans les barrières de GaAs puis relaxent dans la couche de mouillage, le nombre de porteurs  $n$  présents dans la couche de mouillage peut alors s'écrire :

$$n = \frac{P_{exc} \cdot \tau}{h \cdot \nu} \quad \text{Équation 3.2}$$

Où  $P_{exc}$  représente la puissance d'excitation,  $\tau$  la durée de vie des porteurs dans la couche de mouillage,  $h$  la constante de Planck et  $\nu$  la fréquence du faisceau d'excitation.

Si l'on suppose maintenant que tous les porteurs de la couche de mouillage sont capturés par les boîtes quantiques, le nombre de porteurs par boîte quantique  $N_p$  s'exprime tel que :

$$N_p = \frac{n}{N} = \frac{4}{\pi} \cdot \frac{P_{exc} \cdot \tau}{h \cdot \nu \cdot d^2 D} \quad \text{Équation 3.3}$$

En prenant comme valeur numérique :

- $d = 500 \mu\text{m}$
- $D = 5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$
- $\tau = 1 \text{ ns}$
- $\lambda = \frac{C}{\nu} = 740 \text{ nm}$
- $P_{exc} = 120 \text{ mW}$

on obtient approximativement  $N_p \approx 45$ .

En ce qui concerne le cas des échantillons multi-couches, si l'on considère en première approximation que les 25 couches sont éclairées uniformément, le nombre de porteurs est donc 25 fois plus petit que dans le cas des échantillons à simple couche soit :  $N_p \approx 2$ .

### III.6.3 Correction des données.

Pour pouvoir exploiter correctement les spectres de photoluminescence obtenus, il est nécessaire de prendre en compte la réponse spectrale des différents éléments du montage qui sont traversés par le signal (monochromateur, fibre, lentilles, filtres, détecteur).

Le signal brut  $I_0$ , tel que donné par le détecteur peut s'exprimer de la manière suivante :

$$I_0(\lambda) = I_{PL}(\lambda) \times R_{\text{fibre}}(\lambda) \times R_{\text{opt}}(\lambda) \times R_{\text{Mono}}(\lambda) \times R_{\text{Det}}(\lambda) \quad \text{Équation 3.4}$$

Avec :

$I_0(\lambda)$  l'intensité brute obtenue expérimentalement

$I_{PL}(\lambda)$  l'intensité du signal PL

$R_{\text{fibre}}(\lambda)$  le facteur lié à la réponse de la fibre

$R_{\text{opt}}(\lambda)$  le facteur lié à la réponse de l'ensemble des optiques utilisés : lentilles, filtres.

$R_{\text{mono}}(\lambda)$  le facteur lié à la réponse du réseau du monochromateur

$R_{\text{Det}}(\lambda)$  le facteur lié à la réponse du détecteur

De façon plus compacte,  $I_0$  peut s'écrire :

$$I_0(\lambda) = I_{PL}(\lambda) \times K(\lambda), \quad \text{avec } K(\lambda) = R_{\text{fibre}}(\lambda) \times R_{\text{opt}}(\lambda) \times R_{\text{Mono}}(\lambda) \times R_{\text{Det}}(\lambda) \quad \text{Équation 3.5}$$

Pour corriger les données obtenues expérimentalement, il s'agit donc d'évaluer  $K(\lambda)$  pour la gamme de longueurs d'onde d'intérêt. Pour ce faire nous avons placé une source de lumière blanche à la place de l'échantillon dans le montage. Si on désigne par  $I_{LB}(\lambda)$  l'intensité spectrale de cette lampe blanche, et par  $I_1(\lambda)$  l'intensité lue au détecteur dans ces conditions, la réponse spectrale du système optique est donnée par :

$$K(\lambda) = I_1(\lambda) / I_{LB}(\lambda) \quad \text{Équation 3.6}$$

Pour déterminer l'intensité spectrale de la lampe, et ainsi permettre d'obtenir  $K(\lambda)$  à partir de la dernière relation, nous avons utilisé un pyromètre, possédant une réponse quasiment plate sur la gamme de longueurs d'onde considérée, comme détecteur. Pour ce faire, la lumière blanche a été directement envoyée sur l'entrée du monochromateur (sans fibre ni lentille), puis détectée à la sortie de ce dernier par le pyromètre. Dans ces conditions :

$$I_2(\lambda) = I_{LB}(\lambda) \times R_{mono}(\lambda) \times K_b \quad \text{Équation 3.7}$$

où  $I_2(\lambda)$  l'intensité brute détectée et  $K_b$  caractérise la réponse du pyromètre.

$R_{mono}(\lambda)$  a pu être obtenue en lissant la courbe donnée par le fabricant à l'aide d'une fonction polynomiale (Fig. III-8), il est maintenant possible de remonter à la valeur de  $I_{PL}(\lambda)$  au coefficient  $K_b$  près :

$$I_{PL}(\lambda) = \frac{I_0(\lambda) \times I_2(\lambda)}{I_1(\lambda) \times R_{mono}(\lambda) \times K_b} \quad \text{Équation 3.8}$$

Un lissage des courbes expérimentales  $I_1(\lambda)$  et  $I_2(\lambda)$  a par la suite permis d'obtenir la fonction  $K(\lambda)$  (Fig. III-9) et de corriger les données expérimentales de PL. Le facteur  $K_b$  a été considéré constant sur la gamme de longueurs d'onde considérée et n'est de ce fait pas pertinent pour les analyses des résultats qui nous concernent, celles-ci ne touchant que la position des pics de PL et leur intensité relative.

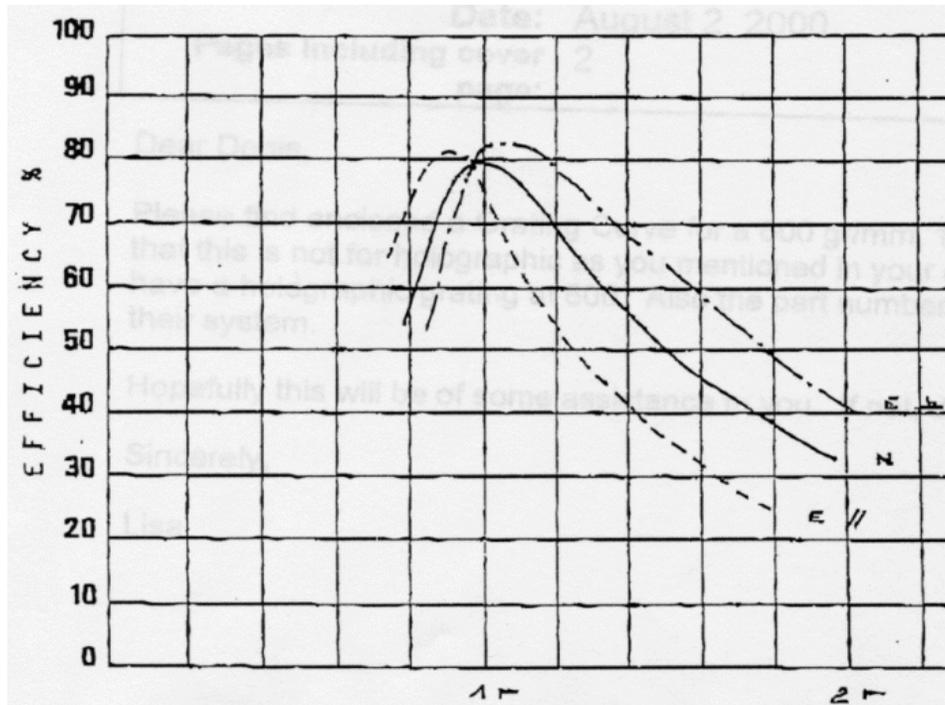
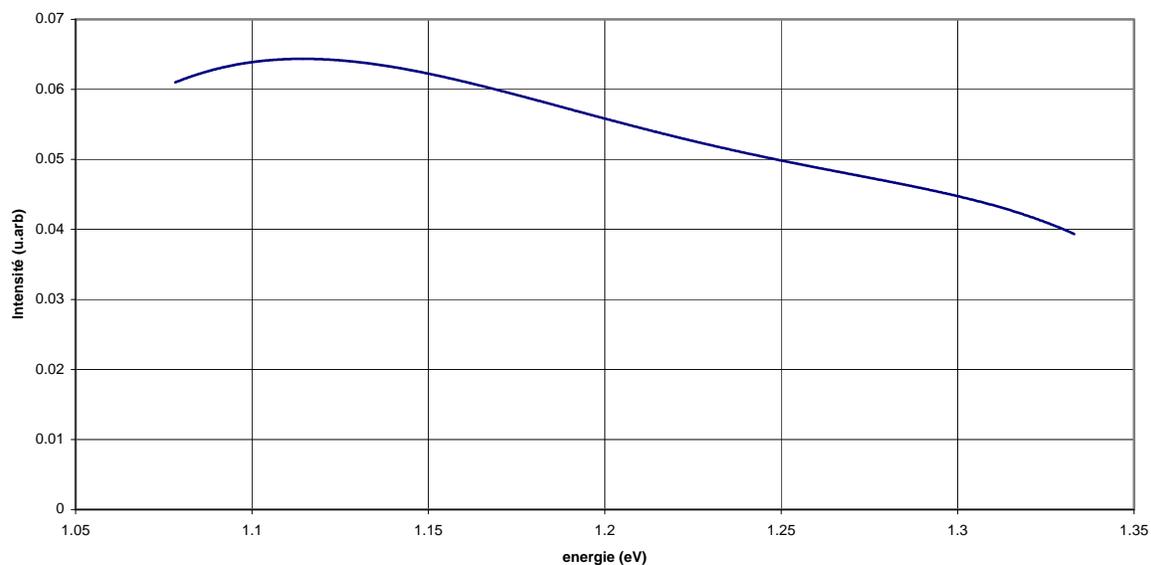


Figure III-8: Réponse spectrale du réseau du monochromateur utilisé.

Réponse spectrale  $K(E)$  du système optique utilisé Détecteur Germanium

a)



Réponse spectrale  $K(E)$  du système optique utilisé Photomultiplicateur

b)

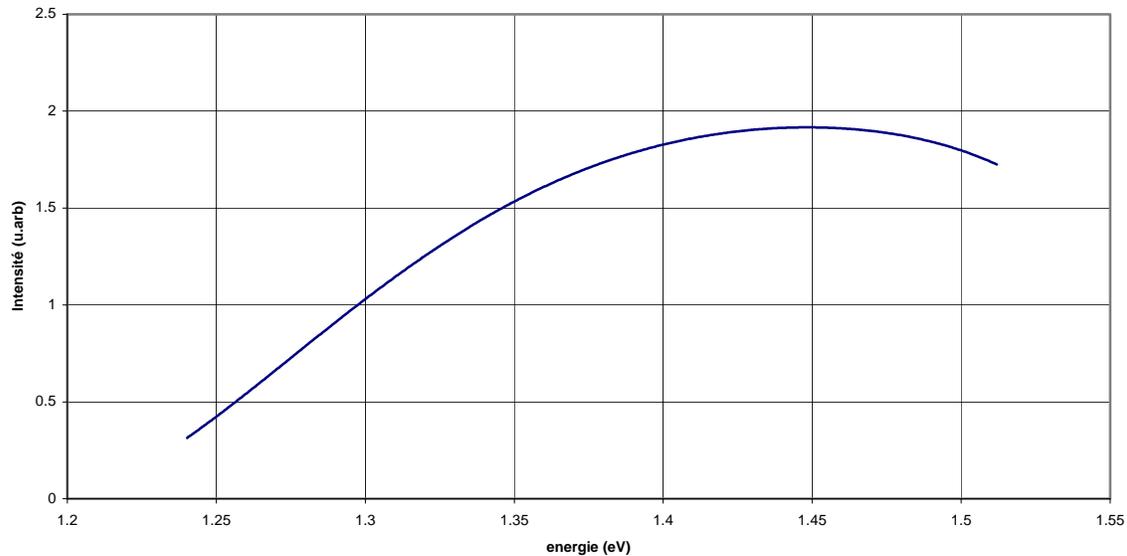


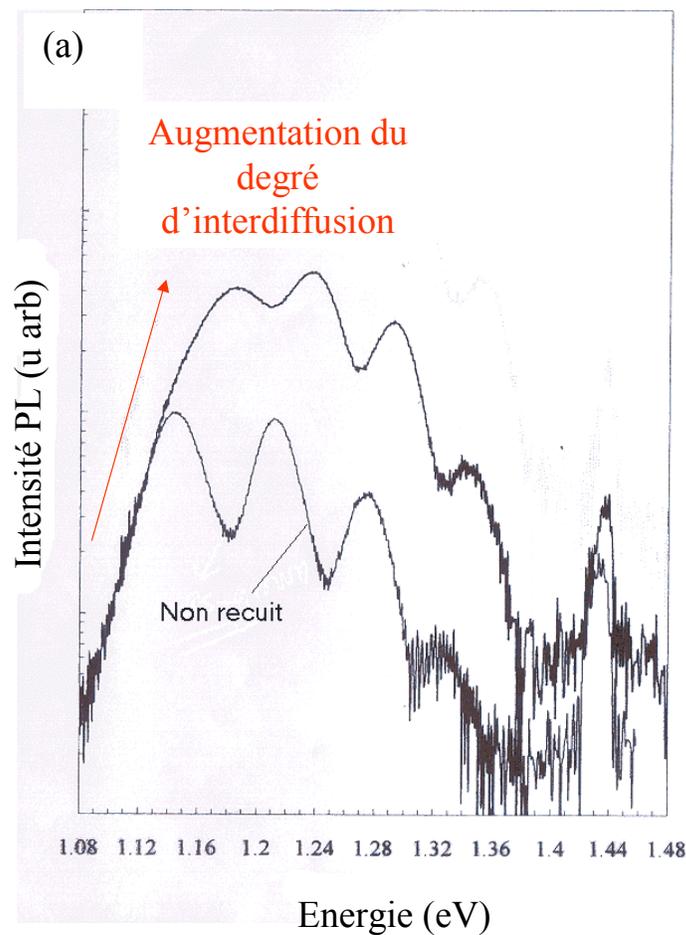
Figure III-9: Réponse spectrale  $K(E)$  du système optique utilisé avec le détecteur Germanium (figure a) et avec le photomultiplicateur (figure b).

## Chapitre IV : Résultats expérimentaux.

### IV.1 Présentation des résultats.

#### IV.1.1 Photoluminescence des échantillons étudiés.

Les figures IV-1 et IV-2 présentent les spectres de photoluminescence respectivement des échantillons à simple couche et multi-couches étudiés après différents recuits thermiques rapides. On observe clairement le déplacement des pics d'émission vers les hautes énergies, le rétrécissement de la largeur à mi-hauteur et la diminution de l'espace inter-pics lorsque le degré d'interdiffusion augmente. (cf paragraphe II.2.2)



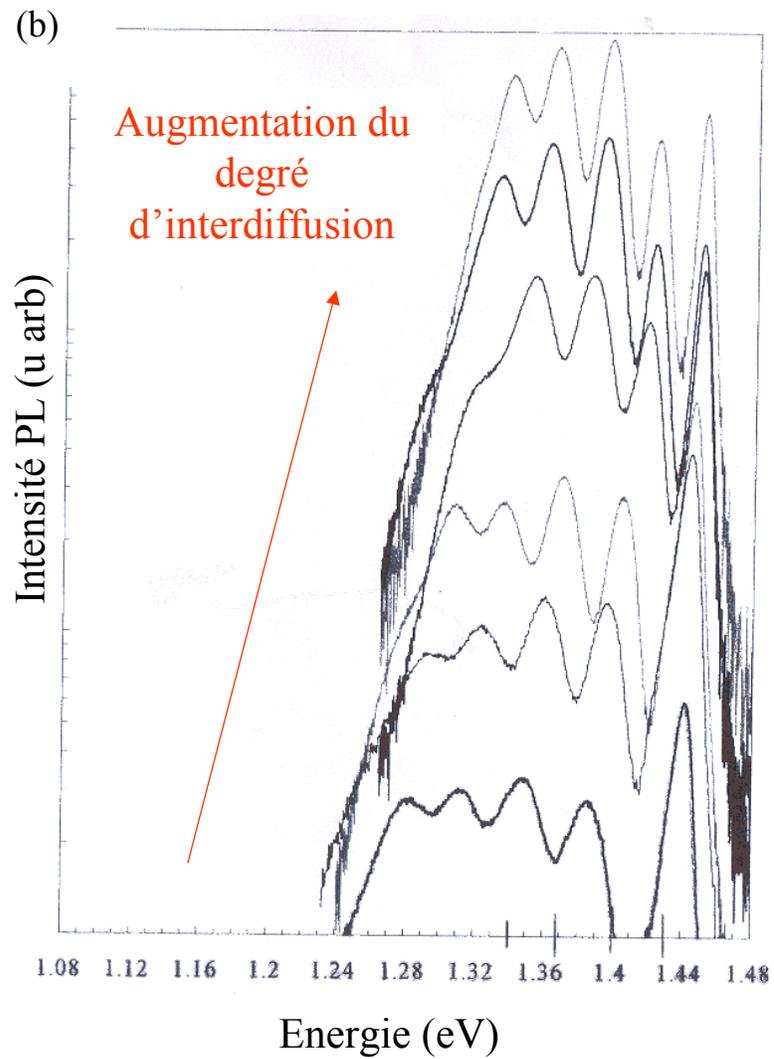


Figure IV-14: Spectres PL des échantillons à simple couche étudiés. Chaque courbe correspond à une durée de recuit différente et une température de recuit de 850°C. (la figure a présente les spectres PL des échantillons faiblement interdiffusés et la figure b ceux des échantillons plus interdiffusés)

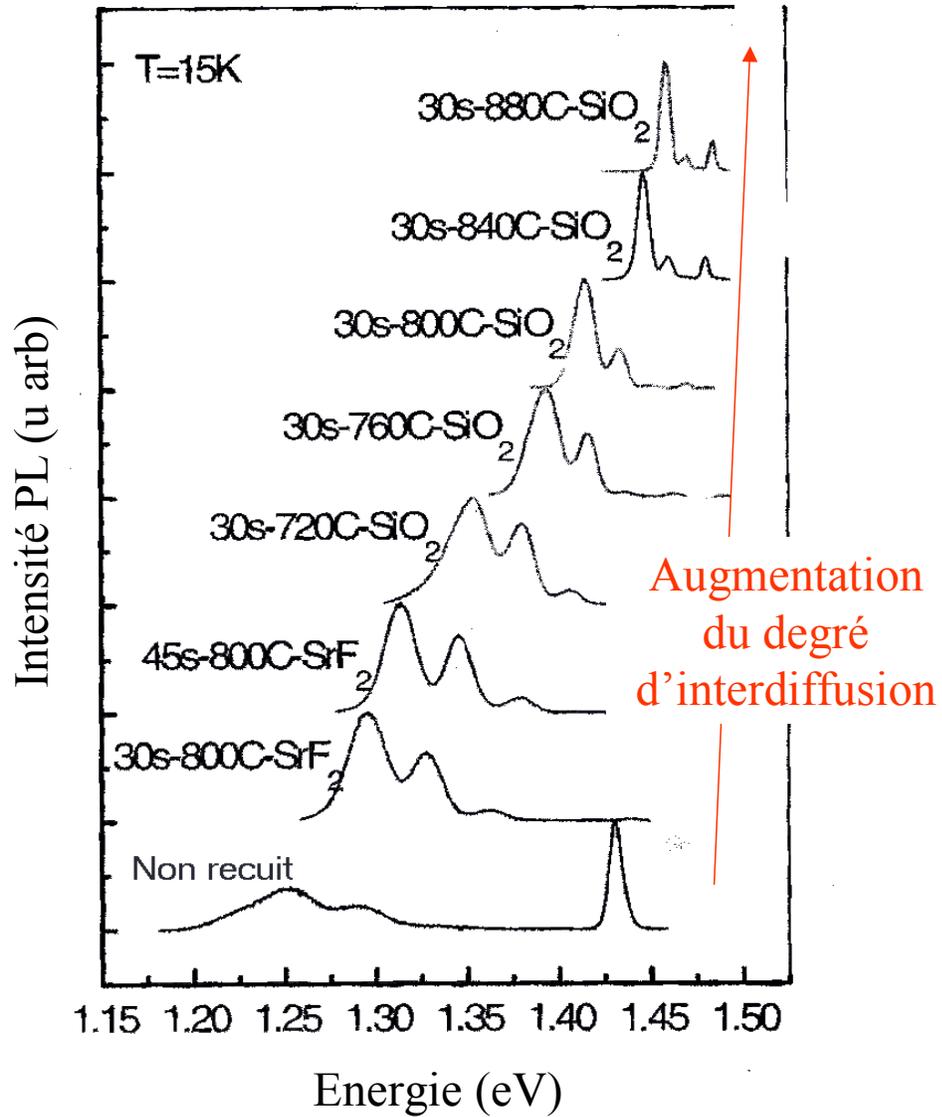
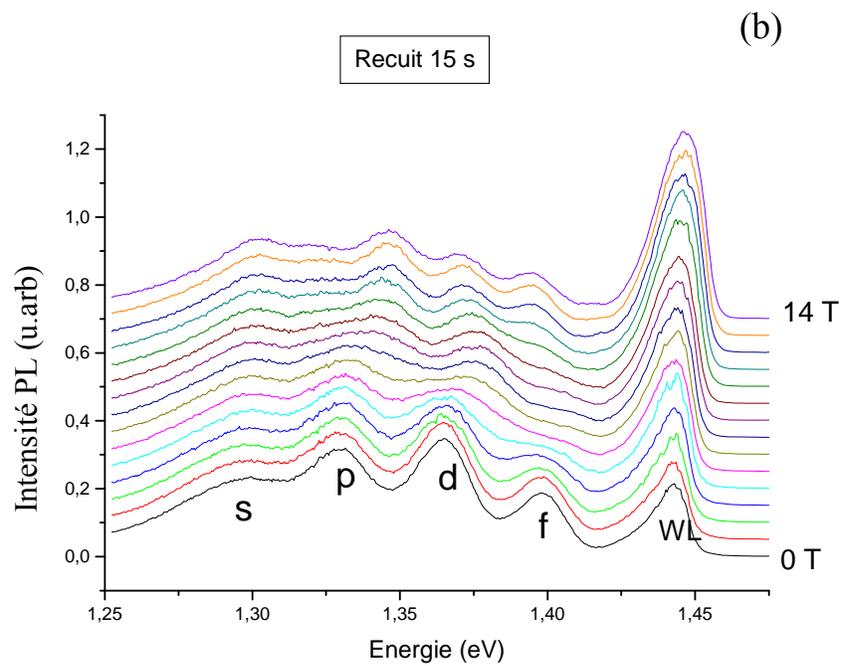
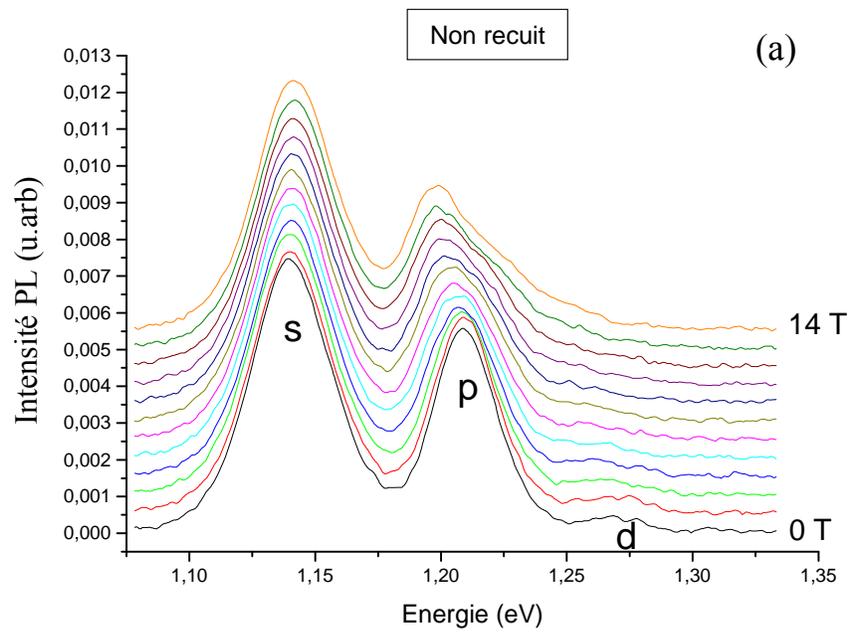


Figure IV-22: Spectres PL des échantillons multi-couches étudiés pour différentes interdiffusions. [39]

### IV.1.2 Magnéto-PL des échantillons à simple couche.



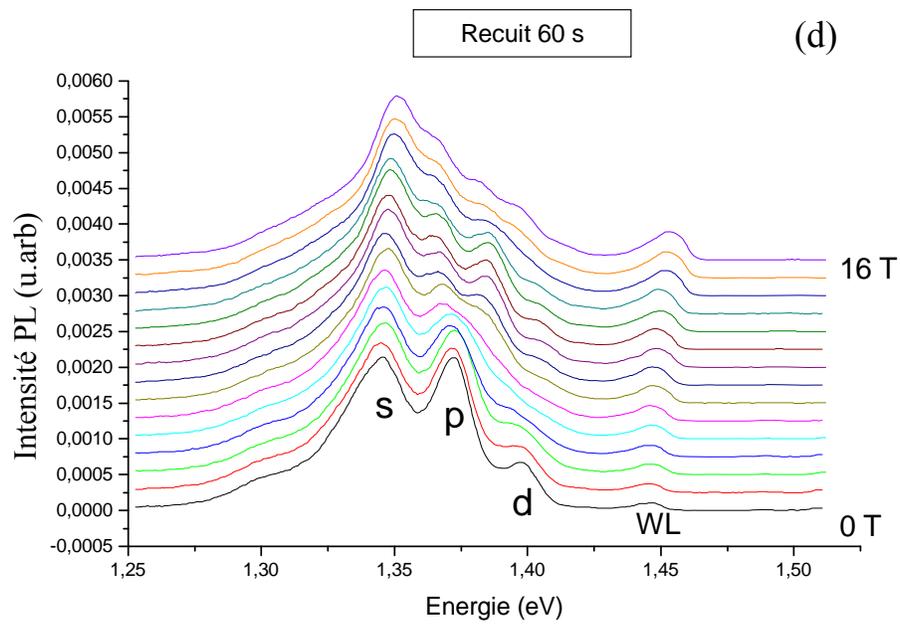
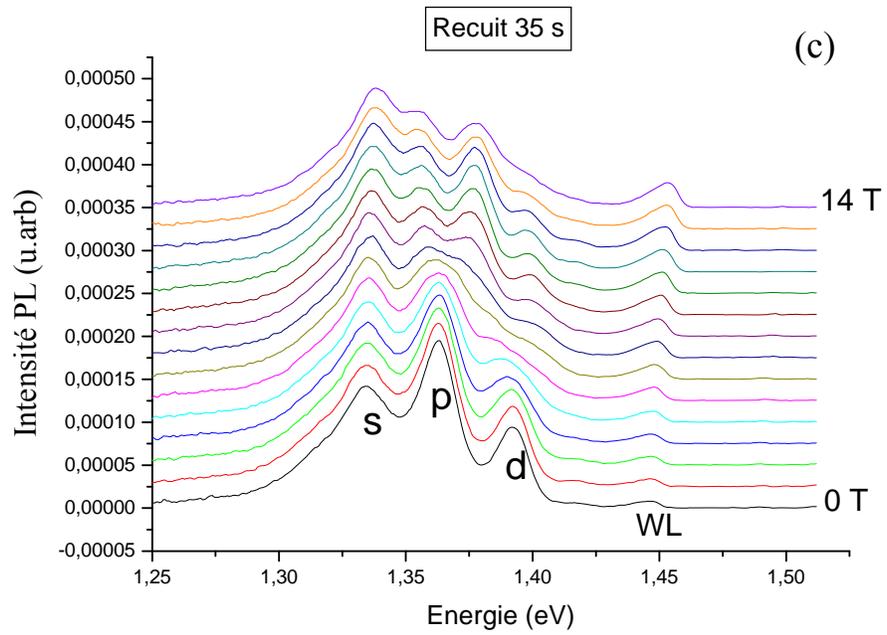


Figure IV-3: Spectres de magnéto-PL pour les échantillons à simple couche recuits à 850°C et pour des durées de recuit de 0 (a), 15 (b), 35 (c) et 60 (d) secondes. Le champ magnétique appliqué se situe dans la gamme 0 à 16 T. Les spectres ont été obtenus avec une puissance d'excitation de 120 mW.

Les figures IV-3 présentent les spectres de magnéto-PL pour certains des échantillons à simple couche décrits en figure IV-1. L'ensemble des spectres a été obtenu à forte puissance d'excitation (120 mW). Le champ magnétique appliqué est de 0 à 14 T, atteignant même 16T pour l'échantillon recuit 60 secondes.

Dans tous les cas, on observe clairement les pics PL correspondant aux orbitales s, p et d. Une faible structure attribuée à la recombinaison depuis l'orbitale f est visible dans certains cas.

Quand un champ magnétique est appliqué, les spectres révèlent une séparation des niveaux excités conjuguée avec une variation diamagnétique de l'état fondamental (orbitale s). La séparation des bandes d'émission est particulièrement bien résolue pour les échantillons fortement interdiffusés grâce à des largeurs de pics plus fines dans ces cas. On peut par ailleurs également noter que l'intensité du pic PL associé à la couche de mouillage s'accroît avec le champ magnétique pour tous les échantillons où la couche de mouillage est bien définie.

A plus faible intensité d'excitation (environ 12 mW), les spectres montrent clairement les pics d'émission associées aux orbitales s et p, tandis que l'orbitale d est beaucoup moins bien définie par rapport aux spectres à forte excitation. Malgré le fait que le remplissage des niveaux soit différent à faible excitation, puisque le nombre de porteurs excités est moins élevé, il semble que l'on retrouve le même comportement qu'à forte excitation. On peut tout de même constater un léger décalage du spectre vers les hautes énergies à faible excitation par rapport au spectre à forte excitation. On peut expliquer ce phénomène par un réchauffement de l'échantillon lorsqu'il est excité à forte puissance, on a estimé que sa température était dans ce cas voisine de 15 K au lieu de 4.5 K à faible puissance. (Fig. IV-4)

On observe également pour la plupart des échantillons considérés la présence d'une structure supplémentaire du côté des basses énergies des spectres, avant le pic d'émission correspondant à l'orbitale s. Il est difficile de savoir si cette structure est apparentée à une impureté ou bien à des recombinaisons multi-excitoniques. Notons que ces structures supplémentaires semblent apparaître pour les temps de recuit les plus longs.

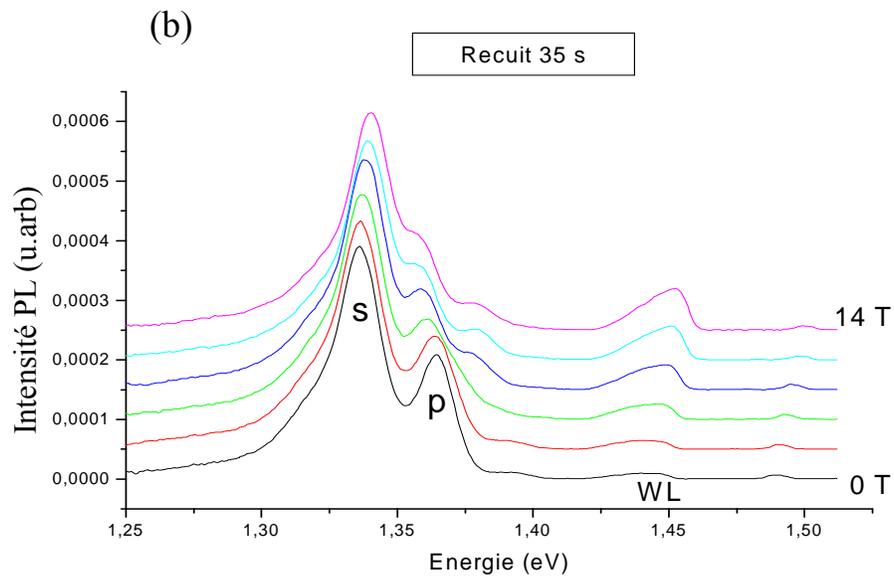
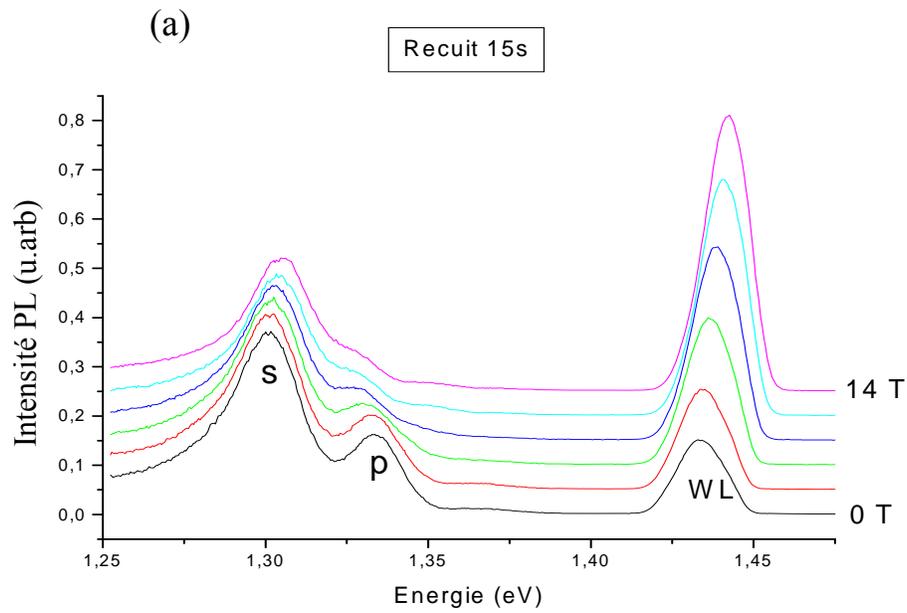
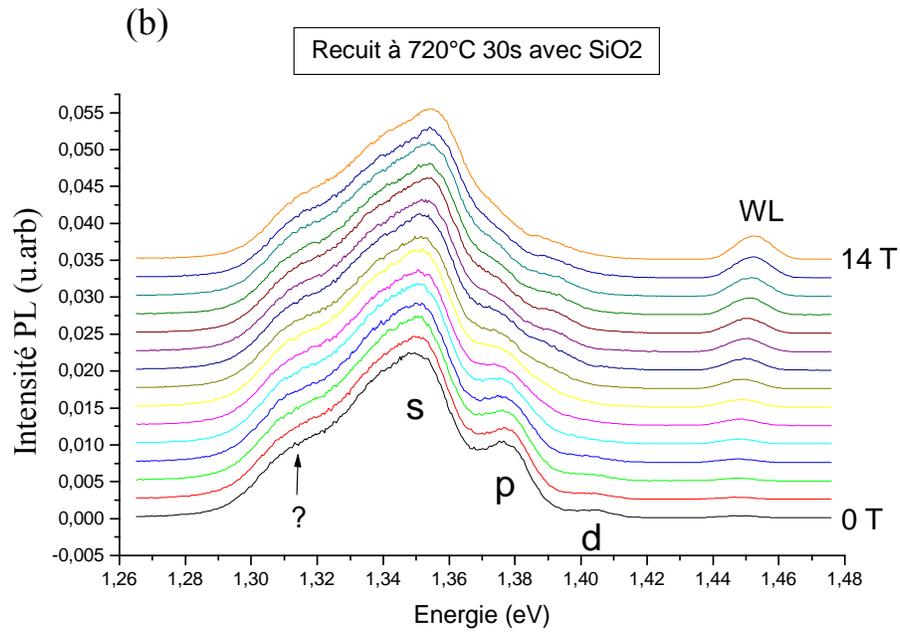
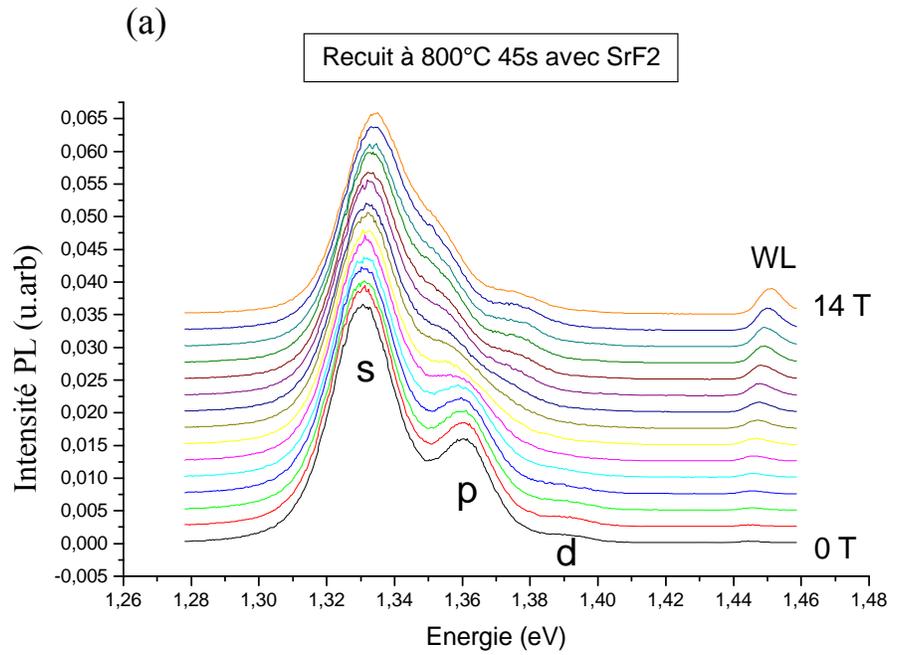


Figure IV-4: Spectres de magnéto-PL pour les échantillons à simple couche recuits à 850°C et pour des durées de recuit de 15 (a) et 35 (b) secondes. Le champ magnétique appliqué se situe dans la gamme 0 à 14T. Les spectres ont été obtenus avec une puissance d'excitation de 12 mW.

### IV.1.3 Magnéto-PL des échantillons multi-couches.



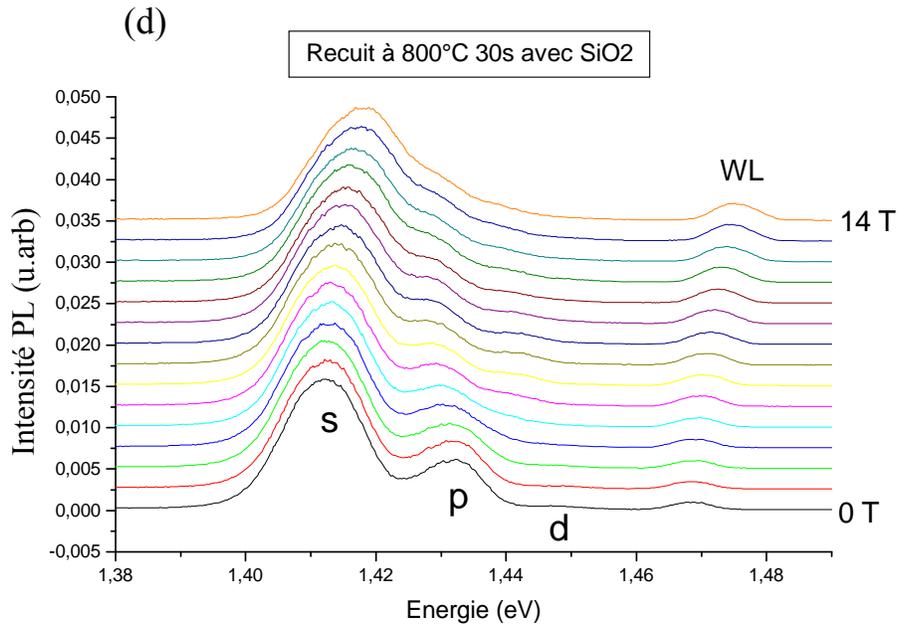
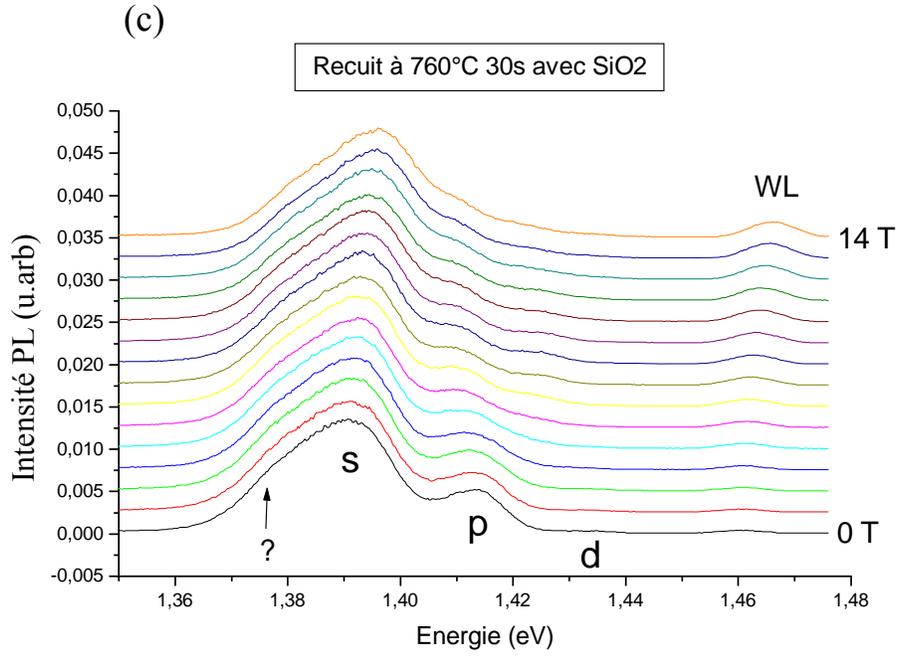


Figure IV-5: Spectres de magnéto-PL pour les échantillons multi-couches (25 couches) (respectivement recuit à 800°C pendant 45 s avec SrF<sub>2</sub> (a), recuit à 720°C pendant 30 s avec SiO<sub>2</sub> (b), recuit à 760°C pendant 30 s avec SiO<sub>2</sub> (c) et recuit à 800°C pendant 30 s avec SiO<sub>2</sub> (d)). Le champ magnétique appliqué se situe dans la gamme 0 à 14 T. Les spectres ont été obtenus avec une puissance d'excitation de 120 mW.

Les figures IV-5 présentent les spectres de magnéto-PL pour certains des échantillons multi-couches (25 couches) décrits en figure IV-2. Ces spectres ont été obtenus dans les mêmes conditions que pour les échantillons à simple couche, à savoir sous une puissance d'excitation d'environ 120 mW et sous différents champs magnétiques entre 0 et 14T.

Quel que soit l'échantillon considéré, les pics d'émission associés aux orbitales s et p sont parfaitement visibles. Par contre l'orbitale d est beaucoup moins bien définie par rapport aux échantillons à simple couche. Même en excitant les échantillons avec des puissances supérieures à 120 mW, la structure correspondant au niveau d ne présente pas d'amélioration. Ce comportement peut s'expliquer par le fait que beaucoup plus de boîtes quantiques sont soumises au faisceau d'excitation, par conséquent le remplissage est plus faible. (cf paragraphe III.6.2)

Même si les pics d'émission sont globalement moins bien définis par rapport aux échantillons à simple couche (particulièrement pour les plus faibles degrés d'interdiffusion), en raison d'un nombre plus important de points quantiques éclairés, accentuant ainsi les effets liés à la distribution de la taille des boîtes quantiques (cf paragraphe I.5), le comportement des orbitales s et p ne présente pas de différence par rapport aux échantillons à simple couche. On observe toujours la séparation du premier niveau excité (orbitale p) jumelée avec une variation diamagnétique du niveau fondamental. L'intensité de la couche de mouillage s'accroît au fur et à mesure que le champ magnétique augmente. Le pic correspondant à l'orbitale d n'est pas assez bien résolu pour pouvoir mettre en évidence une séparation en plusieurs pics sous B.

A plus faible puissance d'excitation (Fig. IV-6), on n'observe guère de différence par rapport aux spectres à forte excitation, si ce n'est que le niveau p est moins net et que le niveau d a disparu. Comme pour les échantillons à simple couche, on peut noter que les spectres à basse excitation sont légèrement décalés vers les hautes énergies par rapport aux spectres à forte excitation toujours en raison du réchauffement de l'échantillon lorsqu'il est éclairé à forte puissance (120 mW).

De manière analogue aux échantillons à simple couche, les spectres de PL de certains échantillons (échantillons recuits à 720 et 760 °C pendant 30s et avec SiO<sub>2</sub>) présentent des

irrégularités au niveau des basses énergies que l'on peut associer soit à des impuretés soit à des phénomènes d'interaction entre porteurs. La première hypothèse semble plus plausible dans ce cas car l'irrégularité n'est pas systématique alors que tous les échantillons sont soumis aux mêmes conditions expérimentales.

## **IV.2 Méthode de lissage des spectres.**

### **IV.2.1 Principes généraux.**

Les spectres PL ont été lissés en utilisant une somme de plusieurs gaussiennes sachant que la contribution de chaque niveau peut être décrite par une gaussienne puisque la densité d'états, théoriquement représentée par une fonction  $\delta$  dans les points quantiques, s'élargit de façon gaussienne. (cf paragraphe I.5)

Le nombre de gaussiennes utilisé dépend du nombre de niveaux que l'on distingue clairement sur les spectres. Pour les échantillons à simple couche, on a sommé six gaussiennes puisque les niveaux s, p et d étaient résolus correctement. Sachant que si l'on néglige la dégénérescence de spin, l'orbitale s est non dégénérée, l'orbitale p deux fois dégénérée et l'orbitale d trois fois dégénérée, on comprend la nécessité d'utiliser six gaussiennes. Dans la plupart des cas, l'orbitale f n'est pas assez bien définie pour pouvoir être prise en compte. De plus elle est dégénérée quatre fois ce qui suppose l'utilisation de quatre gaussiennes et complique donc sérieusement le lissage. Dans le cas des échantillons multi-couches, seules trois gaussiennes ont été sommées puisque seules les orbitales s et p sont suffisamment résolues, l'orbitale d n'apparaît pas assez clairement.

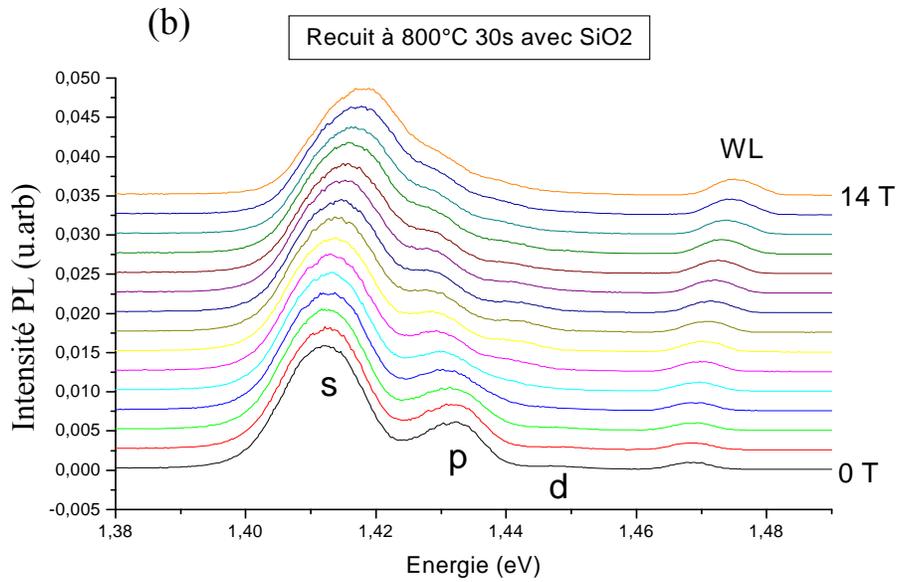
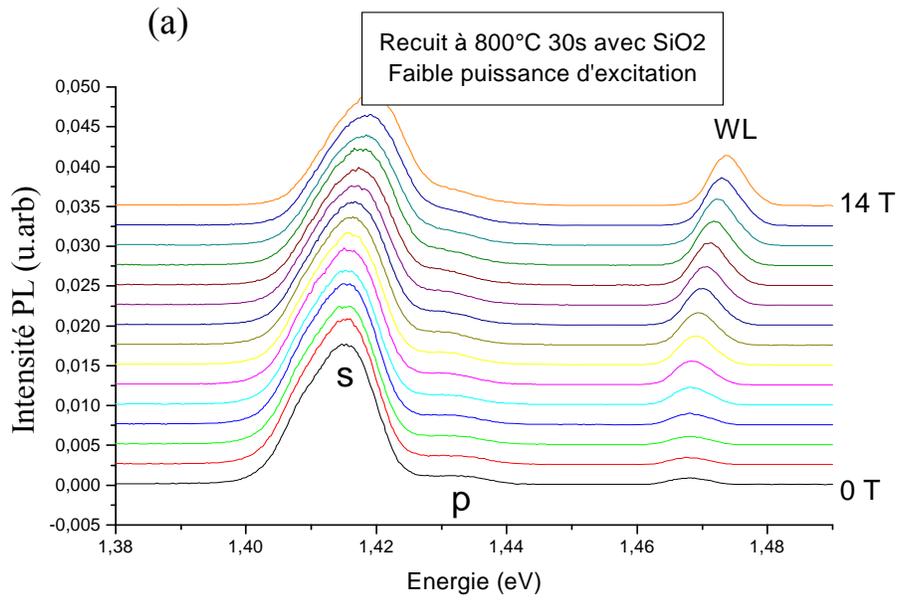


Figure IV-6: Comparaison entre les spectres obtenus à faible (a) et forte puissance d'excitation (b) pour l'échantillon à simple couche recuit à 850°C pendant 30 secondes avec SiO<sub>2</sub>.

Chaque gaussienne est entièrement caractérisée par trois paramètres : la position du maximum  $X_c$ , la largeur à mi-hauteur  $W$  et l'aire sous la courbe  $A$ . La forme normalisée  $G(x)$  d'une gaussienne prend donc la forme :

$$G(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{A}{W} \exp\left[-2\left(\frac{x - X_c}{W}\right)^2\right] \quad \text{Équation 4.1}$$

Le nombre de paramètres à ajuster croît rapidement avec le nombre de gaussiennes. Dans ce contexte, le lissage devient dénué de sens si l'on n'émet pas quelques hypothèses sur certains de ces paramètres, afin d'en limiter le nombre. Pour faciliter le lissage, on a appliqué plusieurs modèles permettant de déterminer la largeur à mi-hauteur des gaussiennes : un modèle où la largeur reste constante avec le champ magnétique, un autre modèle où elle varie linéairement avec la position du maximum (énergie du pic de PL) des gaussiennes, et un dernier modèle tenant compte de l'intensité du champ magnétique. Ces différents modèles seront discutés plus en détails dans les paragraphes IV.2.2, IV.2.3 et IV.2.4, respectivement.

La figure IV-7 illustre le lissage du spectre d'un échantillon à simple couche en appliquant le modèle de variation constante de la largeur à mi-hauteur avec  $B$ . On notera que la zone du lissage a été limitée à la gamme d'énergie correspondant aux pics les mieux définis de manière à s'affranchir au maximum des effets des irrégularités présents du côté des basses énergies et à minimiser l'influence des niveaux mal définis du côté des hautes énergies. Les calculs ont été réalisés numériquement selon la méthode Levenberg Marquard. [48]

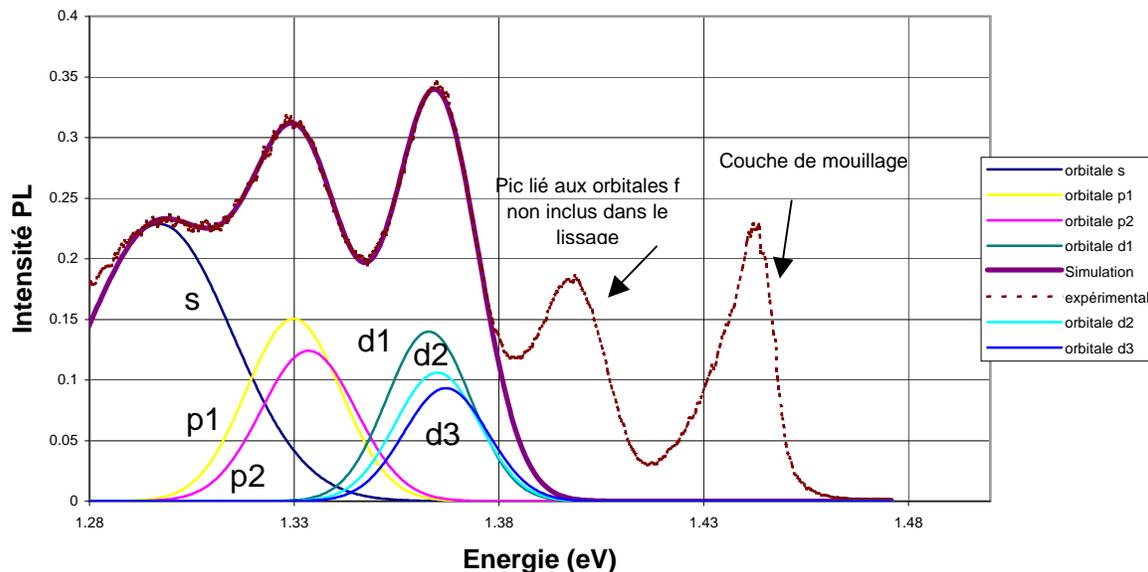


Figure IV-7: Exemple de lissage des données expérimentales par une somme de six gaussiennes pour l'échantillon à simple couche recuit à 850°C pendant 15 secondes et soumis à un champ magnétique de 1T.

#### IV.2.2 Modèle 1 : Largeur à mi-hauteur W indépendante du champ magnétique.

Le modèle le plus simple d'analyse consiste à considérer que la largeur à mi-hauteur reste constante malgré l'application du champ magnétique. Un examen visuel de différents spectres obtenus (cf par exemple Fig. IV-3 et IV-5), permet de constater que la largeur des pics varie peu en fonction du champ, et que par conséquent cette hypothèse n'est pas dénuée de sens, du moins en première approximation. La valeur de la largeur à mi-hauteur choisie est celle obtenue par le lissage du spectre à champ magnétique nul. Ce spectre est moins difficile à lisser, même si aucun paramètre n'est fixé, puisque l'on a besoin de considérer moins de gaussiennes par rapport aux cas où  $B \neq 0$ , la dégénérescence des niveaux excités des points quantiques étant levée (au moins partiellement) par le champ.

#### IV.2.3 Modèle 2 : Largeur à mi-hauteur W fonction de l'énergie de la transition PL considérée.

Il a été observé expérimentalement pour des échantillons similaires aux nôtres (points quantiques InAs/GaAs auto-assemblés fabriqués par MBE) que la largeur à mi-hauteur des gaussiennes diminue linéairement quand la position de la gaussienne se déplace vers les hautes énergies. [39] On a donc cherché à appliquer cette observation sur les spectres de magnéto-PL obtenus. La loi linéaire a été déduite du lissage des différents pics observés en fonction de l'énergie à  $B = 0$  et conservée pour toute la gamme de champ magnétique étudiée. Ce modèle de lissage nous permet en quelque sorte de prendre empiriquement en compte une influence du champ magnétique sur la largeur des pics, qui découle du fait que la position des niveaux d'énergie des points quantiques évolue avec  $B$ .

#### **IV.2.4 Modèle 3 : Largeur à mi-hauteur W fonction du champ magnétique B.**

On a dans un premier temps cherché à exprimer la largeur à mi-hauteur  $W$  en fonction du champ magnétique  $B$  d'une manière simple. Nous allons voir dans les lignes qui suivent qu'il est possible d'obtenir la forme suivante :

$$W(B) = W(0) - KB^2 \quad \text{Équation 4.2}$$

Où  $W(0)$  représente la largeur à mi-hauteur à champ magnétique nul et  $K$  est un coefficient dépendant essentiellement de la charge et de la masse effective des porteurs, ainsi que du potentiel de confinement, son expression sera détaillée plus loin.

Considérons la bande d'émission d'un spectre PL associé à l'orbitale  $k$ . Cette bande d'émission peut être lissée à l'aide d'une gaussienne de largeur à mi-hauteur  $W$ . Dans un premier temps, on se place à champ magnétique nul,  $W$  peut s'exprimer de la manière suivante : (Fig. IV-8)

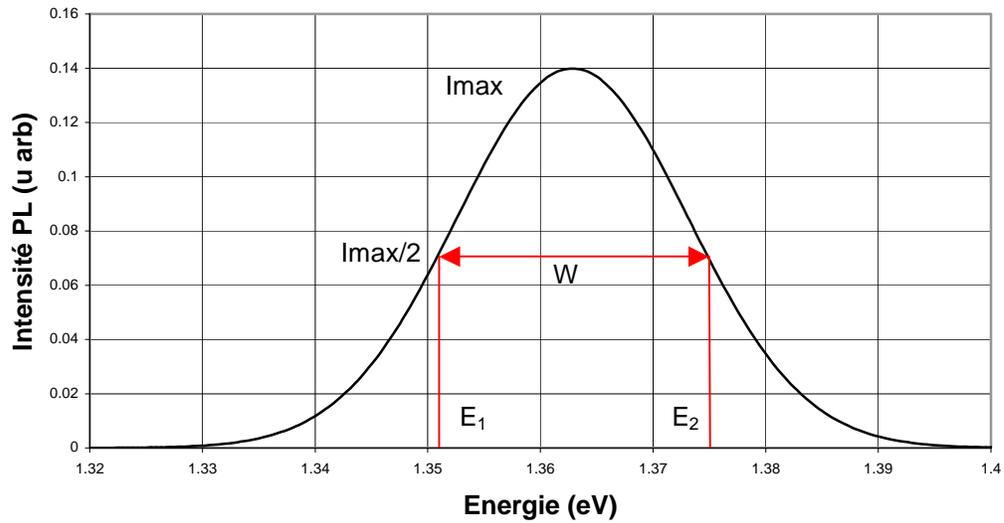


Figure IV-8: Caractéristiques d'une gaussienne représentant le pic d'émission PL d'une orbitale donnée (notée  $k$  dans le texte).

$$W = E_2 - E_1 \quad \text{Équation 4.3}$$

Où  $E_i$  est l'énergie de la transition liée à l'orbitale  $k$  pour un ensemble de points quantiques possédant le même potentiel de confinement  $V_i$  (c'est à dire les mêmes niveaux d'énergie).

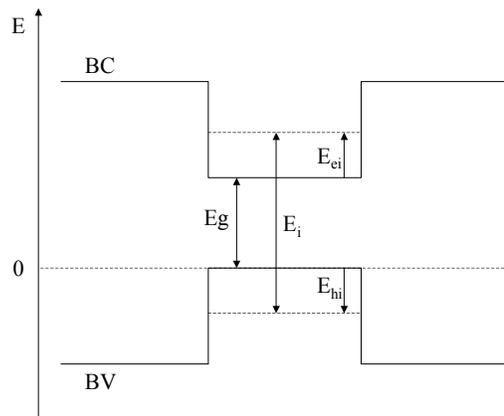


Figure IV-9: Schéma de bande d'une boîte quantique définissant les grandeurs utilisées dans le modèle  $W$  fonction de  $B$ .

Puisque  $E_i$  caractérise une énergie de transition entre les bandes de conduction et de valence,  $E_i$  peut s'écrire (Fig. IV-9) :

$$E_i = E_{e_i} - E_{h_i} + E_g \quad \text{Équation 4.4}$$

Avec  $E_{e_i}$  le niveau d'énergie associé à l'orbitale  $k$  des électrons dans la bande de conduction et  $E_{h_i}$  le niveau d'énergie de l'orbitale  $k$  pour les trous de la bande de valence. On suppose que la bande de valence est unique (cf paragraphe I.6)

Si l'on applique maintenant un champ magnétique et que l'on se place dans le contexte des états de Fock Darwin, et connaissant l'expression des niveaux d'énergie  $E_{e_i}$  et  $E_{h_i}$  en fonction des nombres quantiques  $n$  et  $m$  (cf paragraphe I.7 Équation 1.21 ), l'énergie de transition  $E_i(n,m)$  entre les états  $(n,m)$  de chacune de ces bandes s'écrit :

$$E_i(n,m) = E_{e_i}(n,m) - E_{h_i}(n,m) = \hbar(n+1)(\Omega_e - \Omega_h) - \frac{\hbar m}{2}(\omega_{c_e} - \omega_{c_h}) + E_g \quad \text{Équation 4.5}$$

$$\text{Soit} \quad W(B) = \hbar(n+1)\left((\Omega_{e_2} - \Omega_{h_2}) - (\Omega_{e_1} - \Omega_{h_1})\right) \quad \text{Équation 4.6}$$

Remarquons que dans le formalisme de Fock Darwin,  $E_{e_i}(n,m)$  et  $E_{h_i}(n,m)$  sont calculées respectivement par rapport au minimum de la bande de conduction et au maximum de la bande de valence, par conséquent, en prenant le maximum de la bande de valence comme référence,  $E_{e_i}(n,m)$  est positive et  $E_{h_i}(n,m)$  est négative. (Fig. IV-9)

Or en utilisant l'expression de la pulsation  $\Omega_i$  (cf paragraphe I.7) on a :

$$\Omega_i = \omega_{0_i} \left( 1 + \left( \frac{\omega_{c_i}}{2\omega_{0_i}} \right)^2 \right)^{1/2} \quad \text{Équation 4.7}$$

Sur la gamme de champs magnétiques appliquée, on peut considérer que la pulsation de confinement est supérieure à la pulsation cyclotron :

$$\omega_{c_i} \ll \omega_{0_i}$$

Par conséquent

$$\Omega_i \approx \omega_{0_i} \left( 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{\omega_{c_i}}{2\omega_{0_i}} \right)^2 \right)$$

Équation 4.8

Soit

$$\Omega_i \equiv \omega_{0_i} + \frac{1}{8} \frac{\omega_{c_i}^2}{\omega_{0_i}}$$

Équation 4.9

Sachant que  $\omega_{c_i}$  est proportionnel au champ magnétique B ( $\omega_c = eB/m$   $e$  étant la charge et  $m$  la masse effective du porteur ),  $\Omega_i$  peut prendre la forme suivante :

$$\Omega_i = \omega_{0_i} + K_i B^2$$

Équation 4.10

Avec :  $K_i = e^2 / (8m^2 \omega_{0_i})$  et  $i$  désigne le type de porteur

En utilisant cette dernière expression, on voit qu'il est possible de retrouver l'équation 4.2 en prenant :

$$W(0) = \hbar(n+1)(\omega_{0_{e_2}} - \omega_{0_{h_2}} - \omega_{0_{e_1}} + \omega_{0_{h_1}})$$

Équations 4.11

$$K = \hbar(n+1)(K_{e_2} - K_{h_2} - K_{e_1} + K_{h_1})$$

Il est à noter que l'obtention de cette formule n'a été valable que dans l'hypothèse où l'on considère que le champ magnétique ne déforme pas les gaussiennes, ce qui revient à supposer que l'équation 4.3 reste inchangée (au niveau des énergies  $E_1$  et  $E_2$  à prendre en compte) sur la gamme de champs magnétiques appliquée.

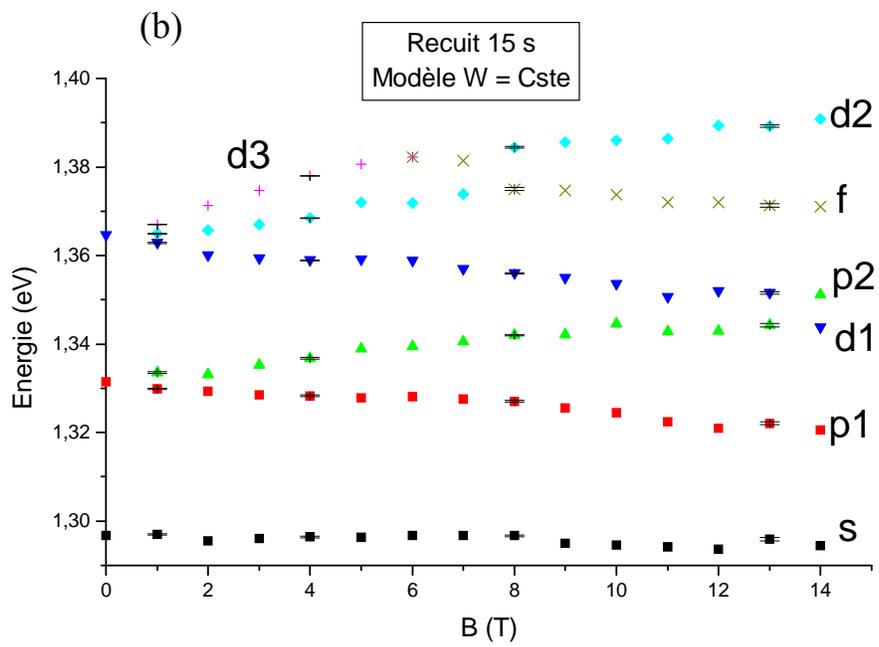
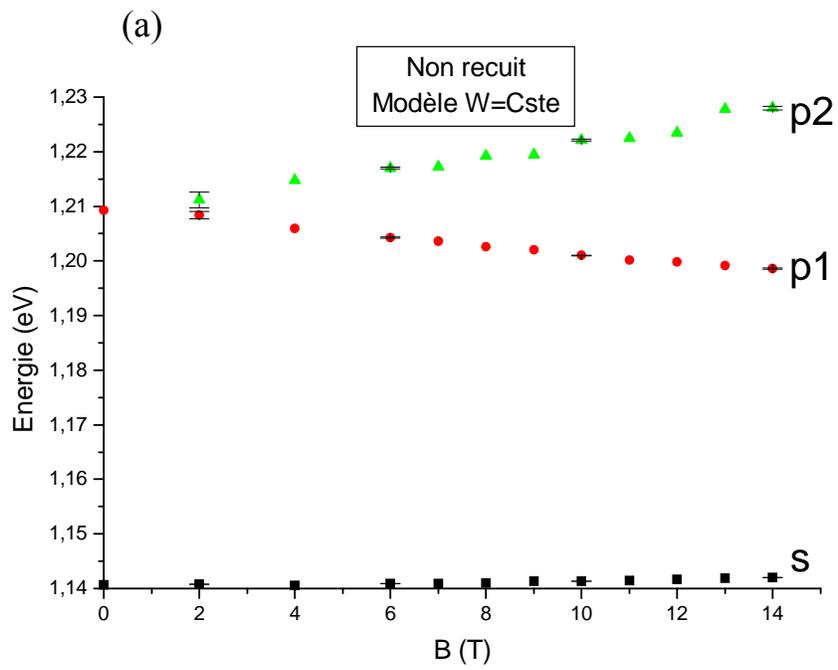
L'équation 4.2 une fois exprimée, on a alors cherché à l'utiliser dans le cadre du lissage des spectres. La difficulté a consisté à déterminer les paramètres  $W(0)$  et  $K$ . Pour ce faire, on a été contraint de lisser deux courbes, une à champ magnétique nul et l'autre à champ magnétique non nul, en faisant varier tous les paramètres, ce qui devient compliqué à champ magnétique non nul et limite donc la fiabilité du modèle.

On remarque également que la largeur à mi-hauteur dépend de  $n$ , plus l'ordre de la transition est élevé et plus la largeur à mi-hauteur du pic d'émission est grande. Sur les spectres que l'on a obtenus expérimentalement, ce phénomène n'est pas observé, ce qui limite encore la crédibilité du modèle. Cependant, ce modèle nous permettra de vérifier si la largeur à mi-hauteur est susceptible de varier en  $B^2$ . Notons tout de même que des groupes de recherche ont déjà observé une augmentation de la largeur à mi-hauteur avec  $n$  dans des manipulations de micro-magnéto-PL. [49]

### **IV.3 Analyse des données expérimentales et discussion.**

#### **IV.3.1 Position des pics à forte excitation pour les échantillons à simple couche.**

Les figures IV-10, IV-12 et IV-13 présentent les résultats de la procédure de lissage pour les trois modèles présentés auparavant et appliqués aux échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW). Les échantillons ont été recuits à 850°C. Ces résultats sont cohérents avec le comportement prévu par la théorie des états de Fock-Darwin (cf paragraphe I.7). Ils sont également en bon accord avec les études expérimentales précédemment menées par d'autres auteurs. [50]



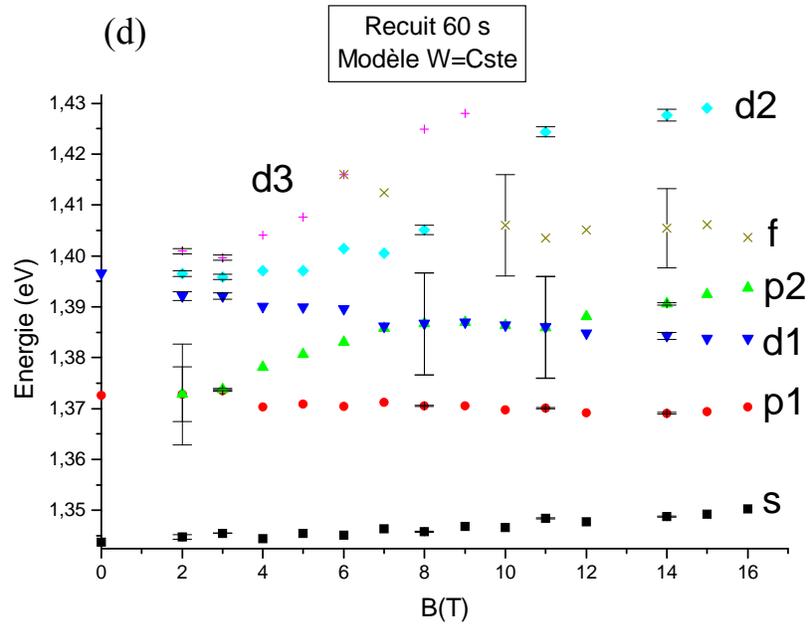
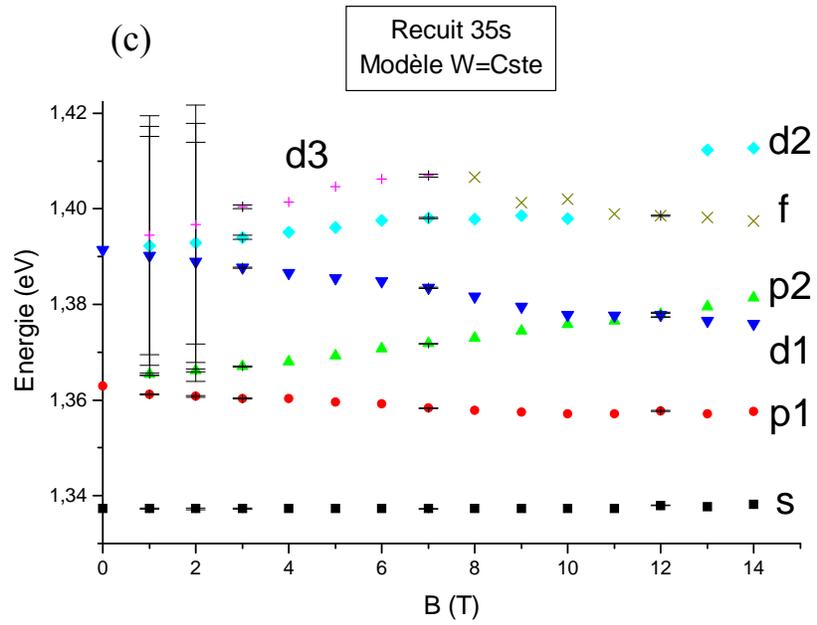


Figure IV-10: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW).

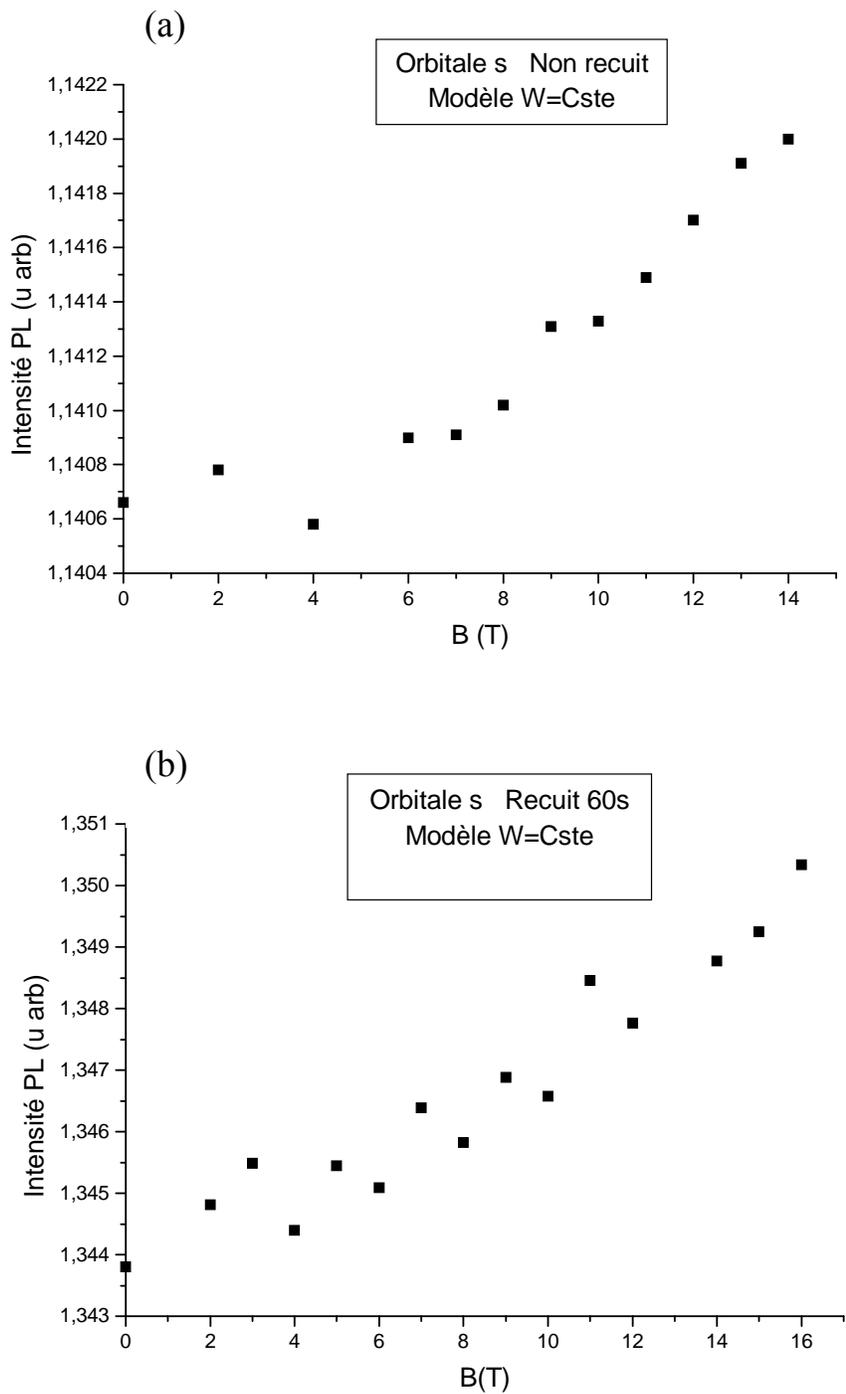
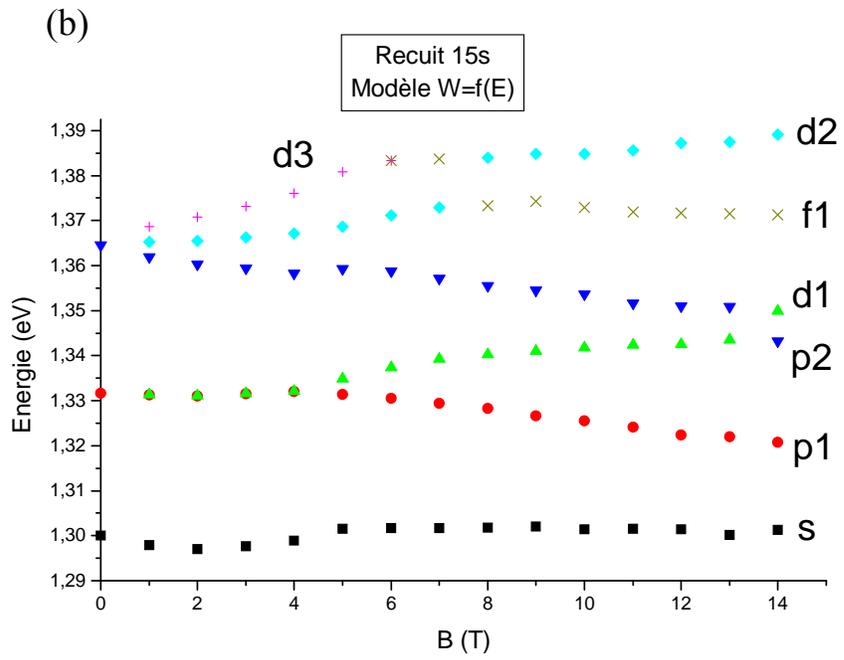
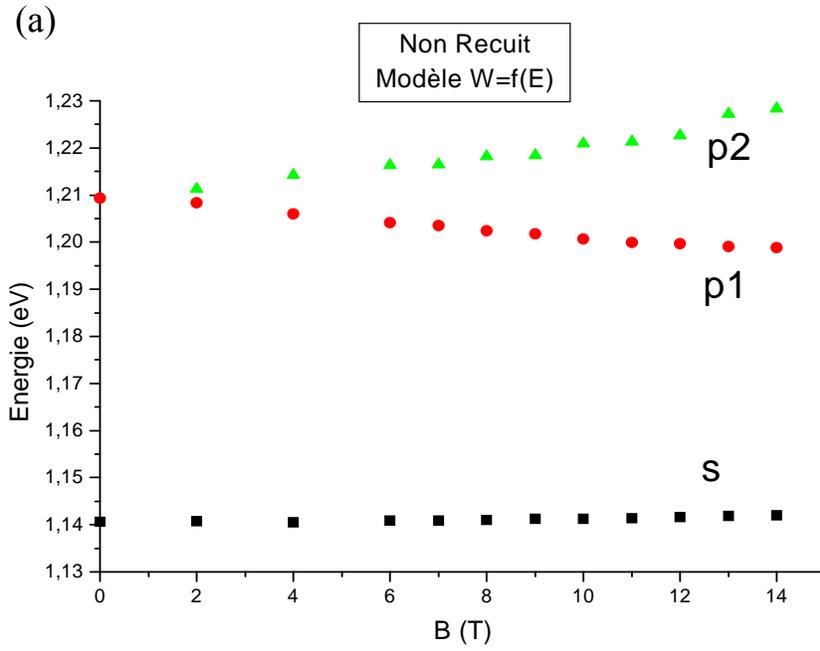


Figure IV-11: Mise en évidence du décalage diamagnétique sur les échantillons à simple couche non recuit (a) et recuit 60s (b) à forte puissance d'excitation (120 mW).



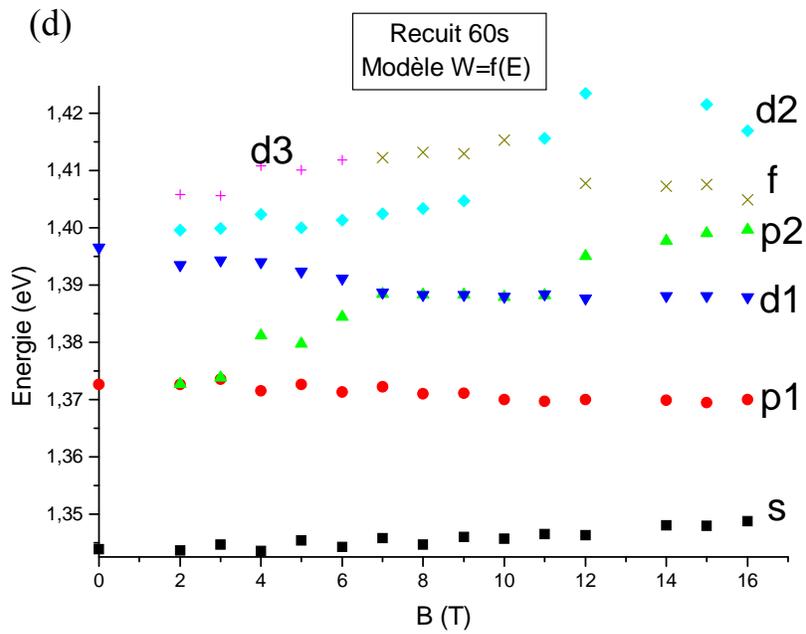
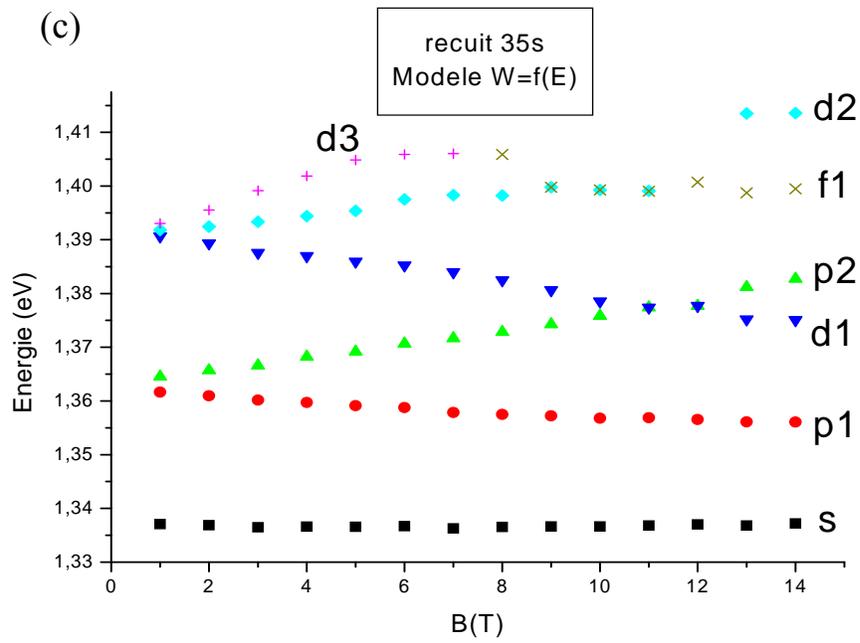
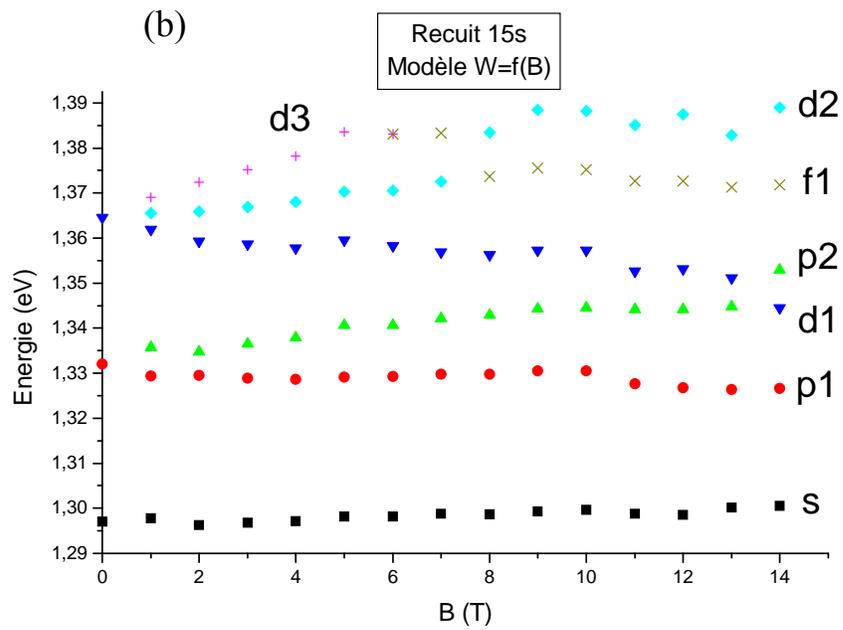
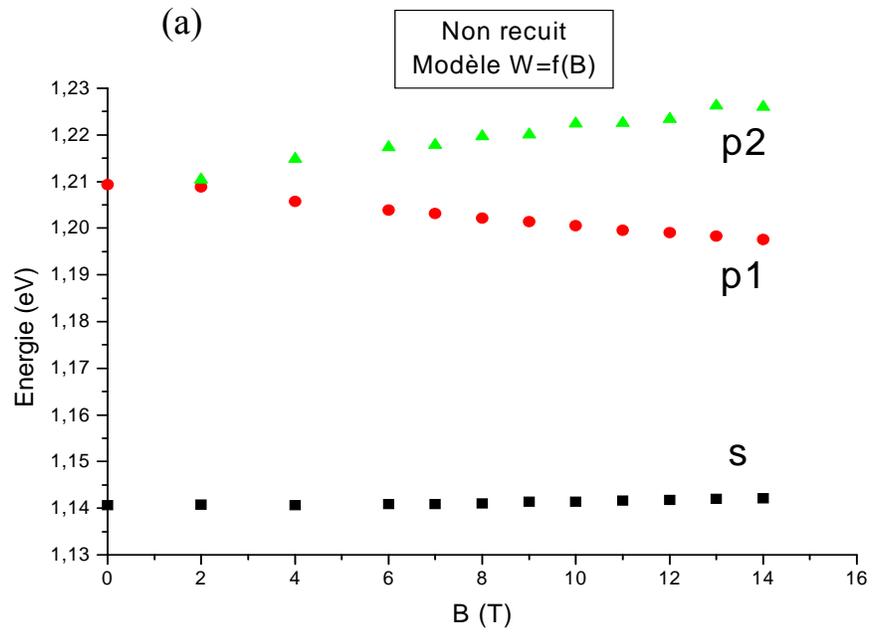


Figure IV-12: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur varie avec la position des pics pour les échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW).



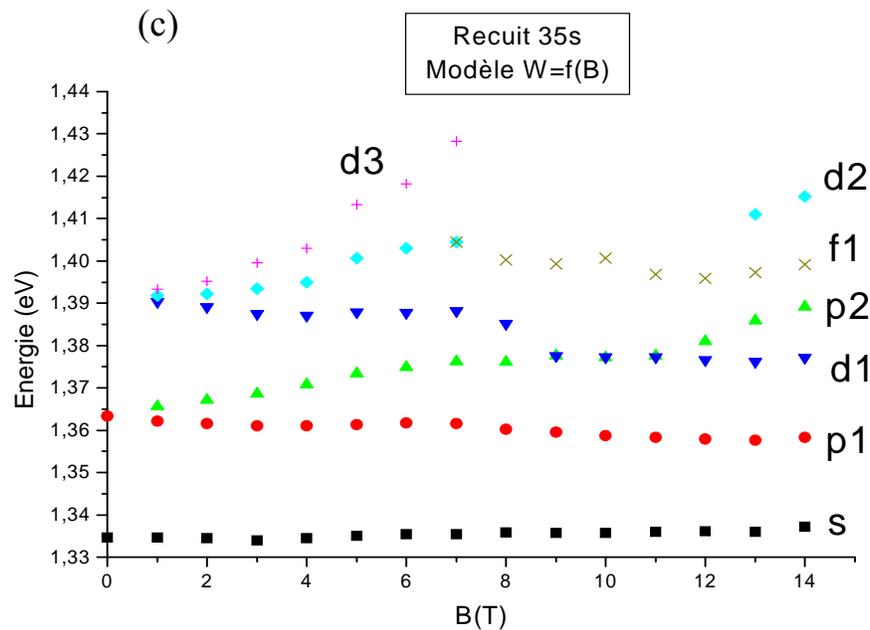


Figure IV-13: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur varie avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation (120 mW).

Tout d'abord, on peut constater qu'il y a peu de différence entre les trois modèles, ce qui suggère que sur la gamme de champs magnétiques appliquée, la largeur à mi-hauteur varie peu. Notons que l'échantillon recuit 60s n'a pu être traité par le modèle W fonction de B, les hypothèses imposées par le modèle (notamment  $\omega_{c_i} \ll \omega_{0_i}$ ) n'étant probablement plus vérifiées. (cf paragraphe IV.2.4)

Il faut également noter que l'incertitude sur la position des pics de plus haute énergie PL augmente lorsque la séparation inter-niveaux devient plus faible, puisque l'on s'est intentionnellement restreint à six gaussiennes dans la procédure de lissage et que les états de l'orbitale f rentrent en jeu à plus fort champ magnétique sur nos types d'échantillon. (Fig. IV-10d) Les incertitudes sont également plus importantes à faible champ magnétique, cela correspond en fait au début de la procédure de lissage où les contraintes de lissage sont plus sévères. Les comportements sur les incertitudes sont identiques quelque soit le modèle de lissage utilisé, c'est pourquoi les barres d'erreur n'ont pas été représentées sur les figures IV-12 et IV-13.

Les résultats extraits des lissages permettent de mettre en évidence la séparation des niveaux excités avec le champ magnétique, ainsi que le décalage diamagnétique du niveau fondamental (orbitale s) (Fig. IV-11). Sur les échantillons interdiffusés, il est également possible d'observer des croisements de niveaux qui se produisent à des champs magnétiques différents dépendamment du niveau considéré et du potentiel de confinement des points quantiques (c'est à dire dépendamment du degré d'interdiffusion induit par le recuit thermique rapide). Plus le degré d'interdiffusion est fort (i.e. plus la durée d'interdiffusion est longue) et plus le champ magnétique où apparaissent les points de croisement est faible. Par exemple, sur la gamme de champ magnétique étudiée, aucun croisement entre l'orbitale p de plus haute énergie et l'orbitale d de plus basse énergie n'est visible pour l'échantillon non recuit, alors que ce croisement apparaît aux alentours de 9 T pour l'échantillon recuit 60 s.(Fig. IV-10)

On constate également que plus le temps d'interdiffusion est long, et plus le décalage diamagnétique est facilement visible dans les figures. Ceci vient du fait que plus on interdiffuse et plus la pulsation de confinement  $\omega_0$  diminue, et donc la pulsation cyclotron  $\omega_c$  va devenir plus rapidement prédominante au fur et à mesure que le champ magnétique augmente. Tant que  $\omega_0$  domine, la position des niveaux quantiques varie diamagnétiquement (i.e. en  $B^2$ ), puis lorsque  $\omega_0$  devient négligeable par rapport à  $\omega_c$ , les niveaux quantiques évoluent linéairement avec B. [17] Dans notre contexte, le comportement diamagnétique ressort plus fortement dans les graphiques dans les conditions telles que  $\omega_0 \approx \omega_c$  pour un champ magnétique de quelques teslas, ce qui correspond aux échantillons les plus interdiffusés.

Les figures IV-14 présentent la position des pics d'émission résultant de la procédure de lissage où la largeur à mi-hauteur est constante quel que soit le champ magnétique appliqué, pour des échantillons à simple couche et à plus faible puissance d'excitation (12mW). Comme dans le cas à forte excitation, on retrouve le décalage diamagnétique du niveau fondamental jumelé avec une séparation du premier niveau excité. Il est également possible de distinguer un point de croisement entre l'orbitale p de plus haute énergie et l'orbitale d de plus basse énergie entre 10 et 12 T pour les deux échantillons considérés.

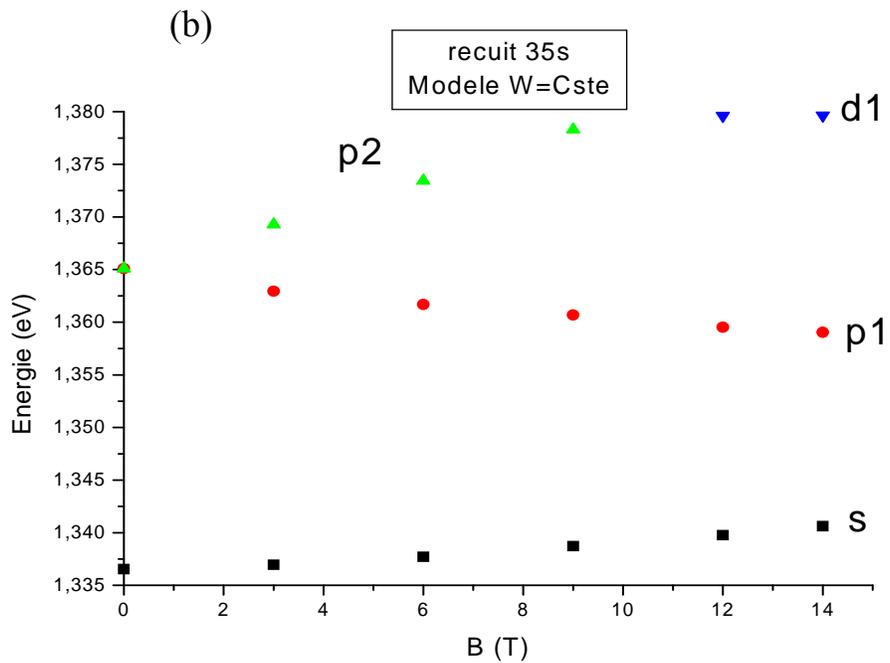
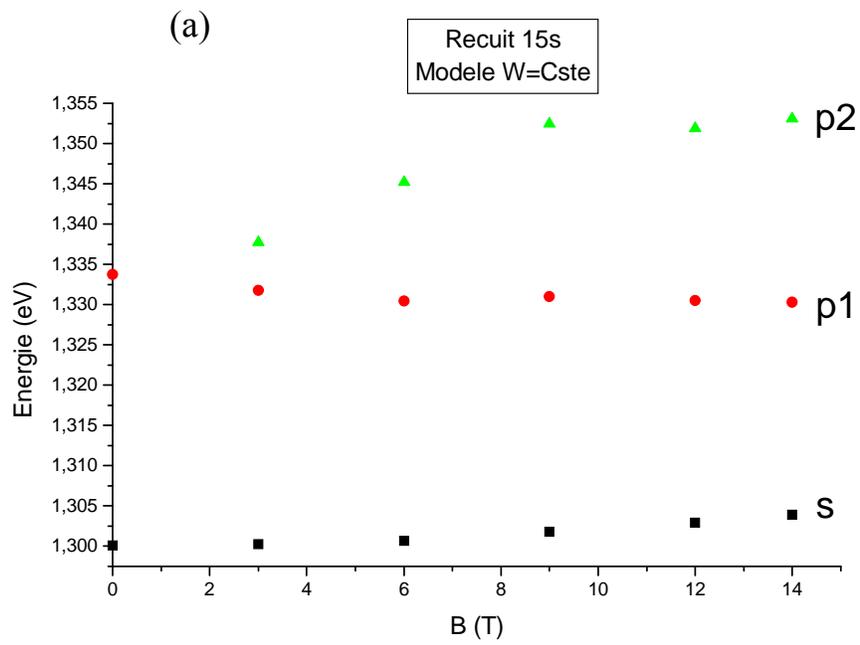


Figure IV-14: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche recuits 15 (a) et 35 (b) secondes à 850°C à faible puissance d'excitation (12mW).

Par comparaison avec le cas à forte excitation, on peut s'apercevoir que le décalage diamagnétique est plus prononcé à faible excitation. Cela pourrait possiblement être attribué à des effets dus aux interactions entre porteurs, qui sont plus prononcées à forte excitation où le nombre de porteurs excités est plus important, et qui pourraient ainsi avoir une influence prédominante.

Remarquons que lorsque les spectres PL font apparaître peu de niveaux quantiques, les incertitudes sur la position des pics sont faibles, c'est pourquoi aucune barre d'erreur n'est représentée sur la figure IV-14.

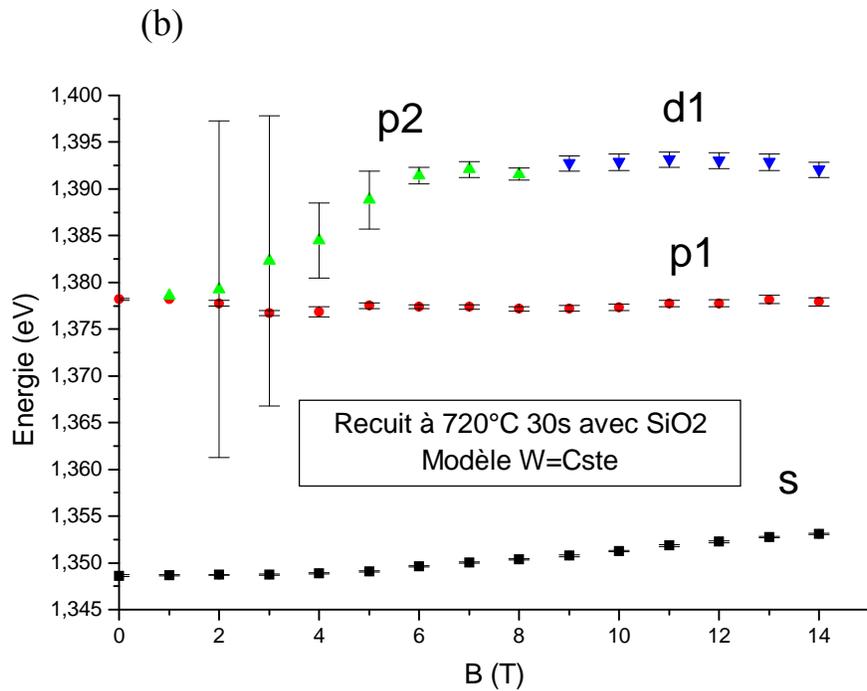
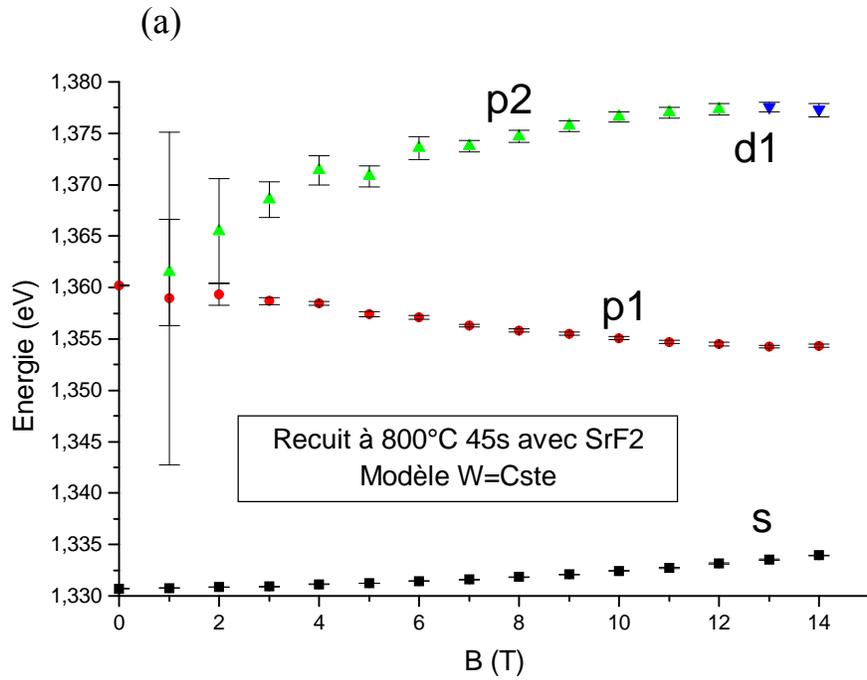
### **IV.3.2 Position des pics à forte excitation pour les échantillons multi-couches.**

Compte tenu du fait que seuls les pics associés aux orbitales s et p sont parfaitement bien définis, et que dans le cas des échantillons à simple couche peu de différences sont apparues entre les modèles, seul le modèle où la largeur à mi-hauteur est constante avec le champ magnétique a été appliqué dans le cas de l'échantillon multi-couches. La figure IV-15 présente le résultat de la procédure de lissage à forte excitation (120 mW). (Rappelons que les spectres réalisés à plus faible excitation (12 mW) n'apportent pas d'informations supplémentaires dans ce contexte (Fig. IV-6))

Les résultats obtenus sont semblables à ceux des échantillons à simple couche. On retrouve en effet le décalage diamagnétique du niveau fondamental, d'autant plus prononcé que le degré d'interdiffusion est fort. On observe également la séparation du premier niveau excité avec un point de croisement entre l'orbitale p de plus haute énergie et l'orbitale d de plus basse énergie. Ce point de croisement apparaît à des champs magnétiques d'autant plus faibles que le degré d'interdiffusion est fort.

On notera tout de même que l'évolution de l'orbitale p a été plus difficile à déterminer en raison du fait que les niveaux de plus haute énergie sont plus difficiles à distinguer sur les

spectres. Cela se ressent notamment pour la détermination des points de croisement, rendue plus imprécise.



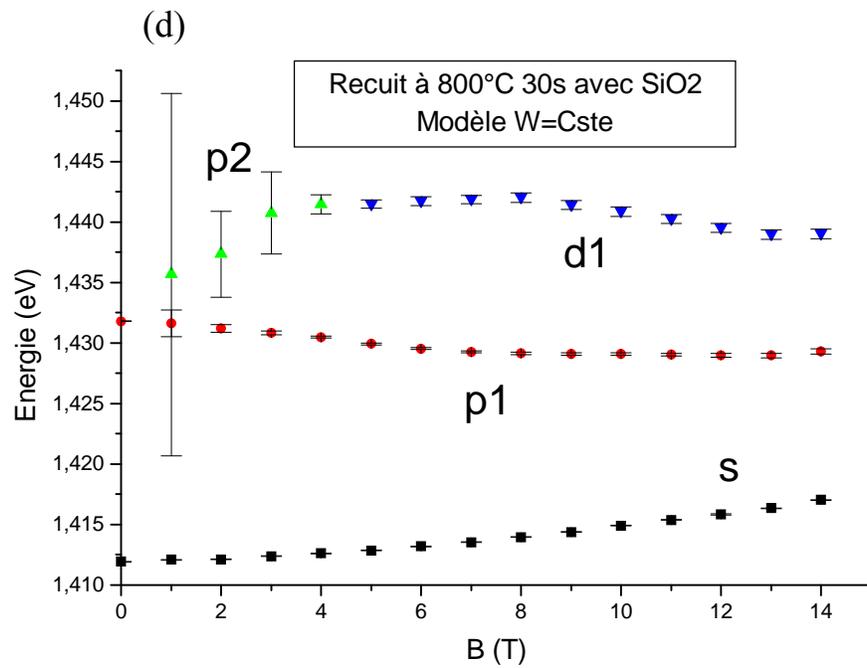
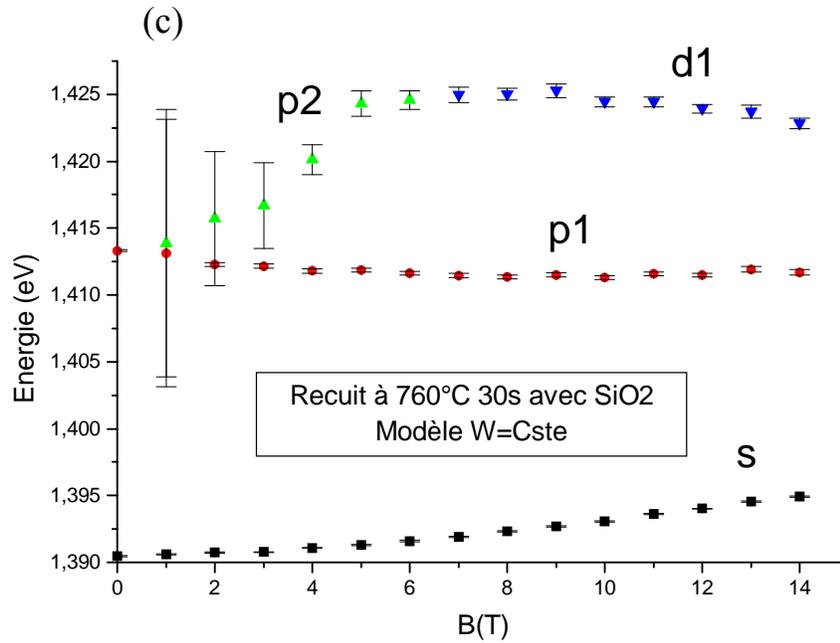


Figure IV-15: Évolution de la position des niveaux quantiques résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons multi-couches à forte puissance d'excitation (120 mW).

Comme pour les échantillons à simple couche, les barres d'erreur sont importantes à faible champ magnétique où les contraintes dans la procédure de lissage sont plus sévères.

### IV.3.3 Étude de la dynamique des porteurs.

Il est possible d'obtenir des informations sur la dynamique des porteurs dans les points quantiques à partir du rapport des aires sous les parties de courbes associées à la couche de mouillage et celles assimilées aux points quantiques  $A_{WL}/A_{QD}$ . Ce ratio des aires traduit en fait un rapport des intensités  $I_{WL}/I_{QD}$  et permet d'étudier l'importance relative des mécanismes de capture des porteurs par les boîtes quantiques versus les processus de recombinaison des porteurs dans la couche de mouillage, en fonction du champ magnétique.

#### IV.3.3.a Cas des échantillons multi-couches.

Les figures IV-16 présentent le rapport  $A_{WL}/A_{QD}$  (i.e.  $I_{WL}/I_{QD}$ ) pour les échantillons multi-couches à forte excitation (120 mW). Les résultats obtenus à faible puissance sont semblables à ceux obtenus à forte excitation en terme de nombre de niveaux excités observables, c'est pourquoi ils ne seront pas décrits ici. Notons tout de même qu'à faible puissance d'excitation, l'orbitale p est beaucoup moins bien définie.

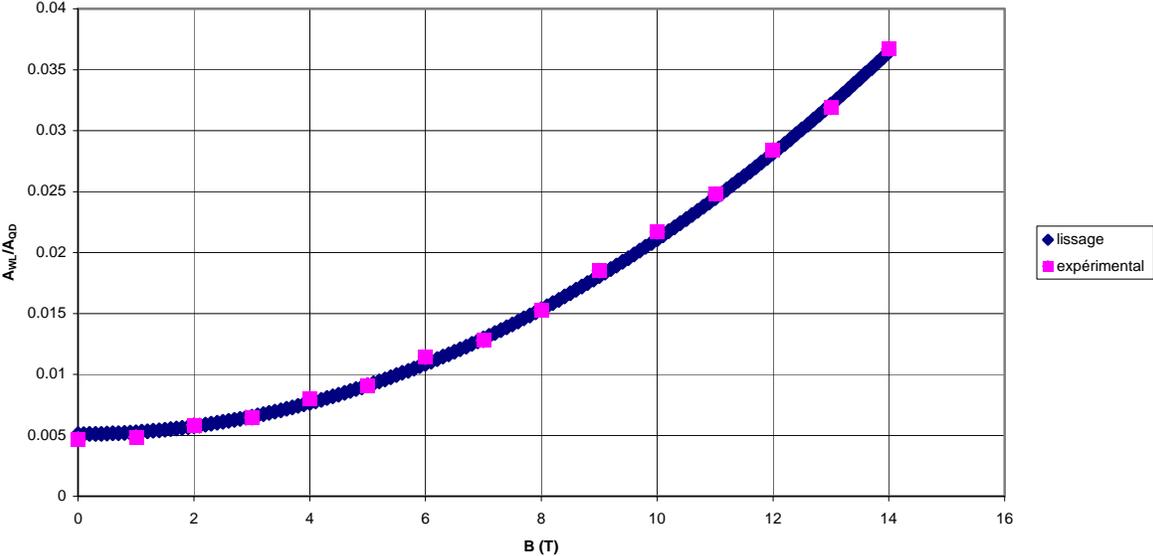
On constate qu'à faible champ magnétique, les points expérimentaux peuvent être lissés par une fonction polynomiale de type  $aB^2+b$ . Ensuite, à plus fort champ magnétique, le lissage devient linéaire. On constate également une évolution du rapport  $A_{WL}/A_{QD}$  en fonction du degré d'interdiffusion (Fig. IV-17). Cette dernière évolution se retrouve sur les lissages des courbes de la figure IV-16. Il est en effet possible d'observer que le champ magnétique marquant la transition entre les régimes quadratique et linéaire diminue lorsque le degré d'interdiffusion augmente.

En ce qui concerne l'aspect général des courbes représentant le rapport  $A_{WL}/A_{QD}$ , puisque les spectres ont été obtenus à basse température à partir d'échantillons exposés en continu à la source d'excitation (laser CW), et que les temps de relaxation dans les bandes de valence et de conduction de la couche de mouillage (2D) sont petits par rapport aux temps de recombinaison,

on a des raisons de penser que le comportement observé est cohérent avec la dépendance du temps de capture des porteurs par les boîtes avec le champ magnétique. En effet, dans ces conditions, les porteurs ont le temps d'explorer une grande région de la couche de mouillage avant d'être capturés par une boîte.

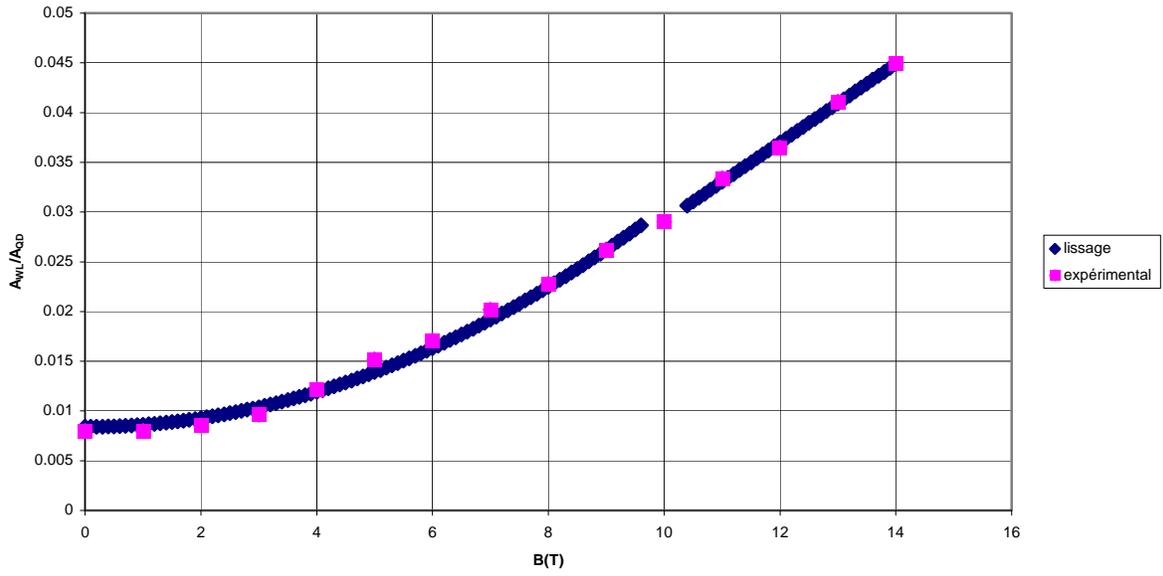
(a)

Recuit 800°C 45s avec SrF2



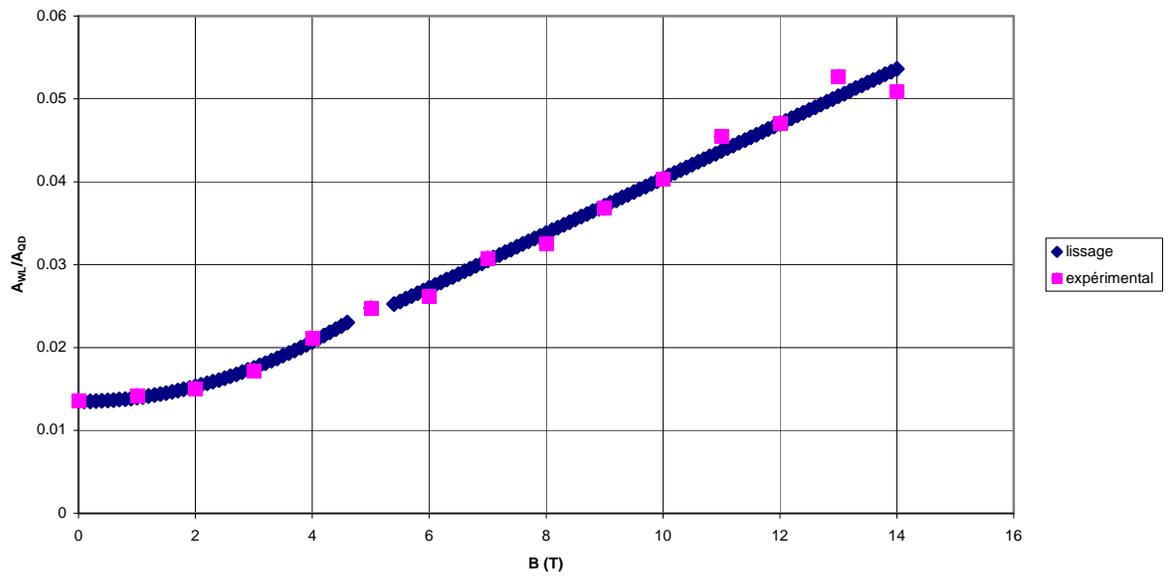
(b)

Recuit 720°C 30s avec SiO2



(c)

Recuit 760°C 30s avec SiO2



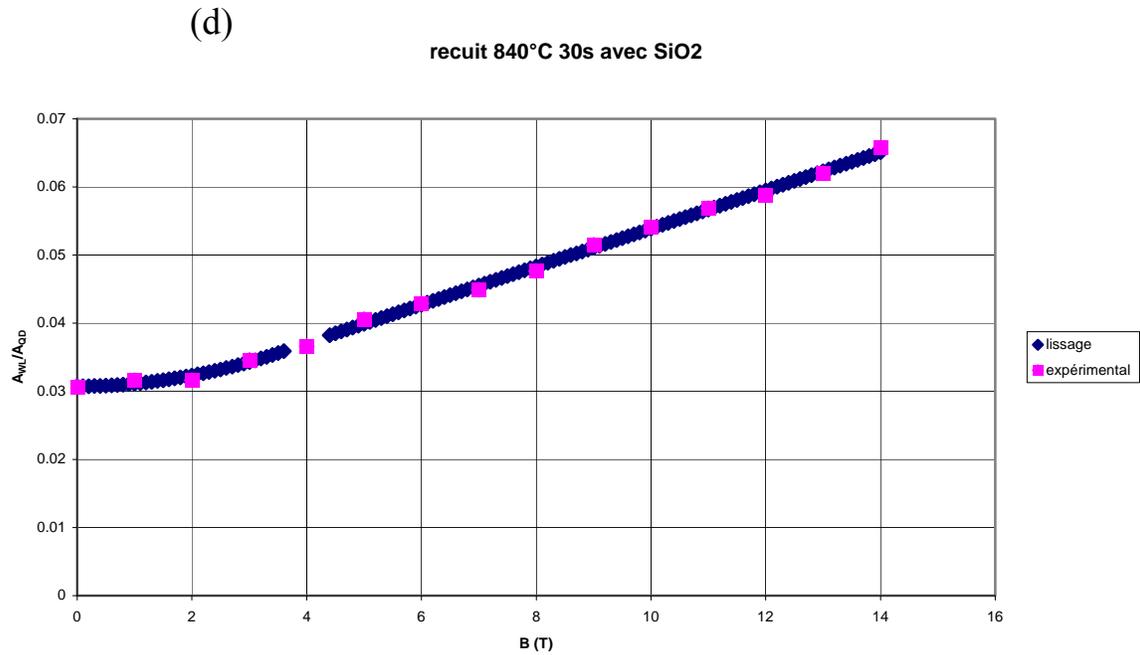


Figure IV-16: Évolution du rapport  $A_{WL} / A_{QD}$  en fonction du champ magnétique à forte excitation (120 mW) pour l'ensemble des échantillons multi-couches étudiés. Les courbes en trait plein représentent le lissage des points expérimentaux.

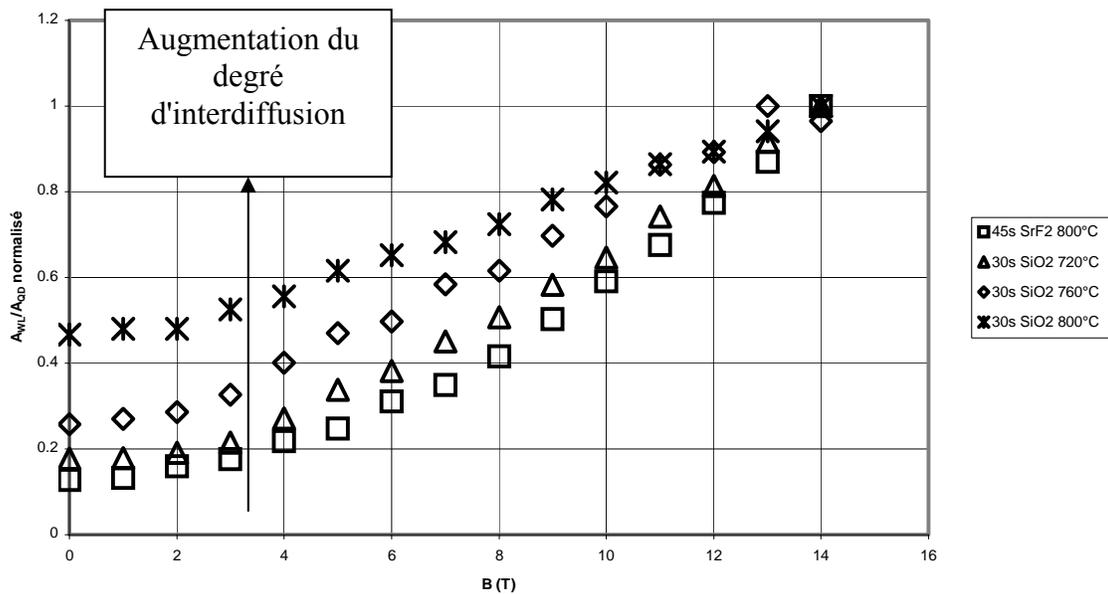


Figure IV-17: Comparaison du rapport  $A_{WL} / A_{QD}$  pour l'ensemble des échantillons multi-couches étudiés. Chaque courbe a été normalisée par rapport à la valeur obtenue à 14 T.

Par conséquent, c'est le transport classique des porteurs dans la couche de mouillage qui joue le rôle déterminant dans le temps de capture, les phénomènes de collisions porteurs-porteurs et porteurs-phonons (mécanismes de relaxation multi-phonons et Auger) étant quant à eux beaucoup plus rapides mais ne pouvant se produire que lorsqu'un porteur est à proximité d'une boîte. Or, l'aire couverte par les porteurs en un temps donné dans la couche de mouillage en présence d'un champ magnétique est essentiellement déterminée par l'aire des orbites cyclotron. Il est raisonnable de penser que ce sont les porteurs situés au pseudo-niveau de Fermi dans les bandes qui auront le plus de chance d'interagir avec les boîtes et d'être capturés, puisque ce sont ces porteurs qui vont parcourir des orbites ayant le rayon cyclotron le plus grand. À bas champ magnétique, lorsque de nombreux niveaux de Landau sont peuplés, le rayon cyclotron  $R_c$  s'exprime de la manière suivante :

$$R_c = \frac{\hbar k_f}{eB} \quad \text{Équation 4.12}$$

où  $k_f$  est tel que  $E_f = \frac{\hbar^2 k_f^2}{2m^*}$ ,  $E_f$  représente le pseudo niveau de Fermi et  $m^*$  la masse effective.

Dans ces conditions,  $E_f$  (et donc  $k_f$ ) sont indépendants de  $B$ , et par conséquent l'aire des orbites cyclotrons varie en  $B^{-2}$ . À très fort champ magnétique, lorsque seul le dernier niveau de Landau est occupé, le niveau de Fermi se met à croître linéairement avec  $B$ . Par conséquent,  $k_f \propto \sqrt{B}$  et l'aire des orbites cyclotron varie dans ce cas en  $B^{-1}$ .

Le temps de capture  $\tau_{cap}$  étant inversement proportionnel au nombre de boîtes rencontrées par les porteurs dans leur mouvement, et donc à l'aire circonscrite par les orbites cyclotron, on aura que  $\tau_{cap} \propto B^{-2}$  à bas champ magnétique, et  $\tau_{cap} \propto B^{-1}$  à fort champ magnétique. Selon ce raisonnement, la transition entre le régime bas champ et fort champ devrait intervenir dans les conditions où le dernier niveau de Landau est complètement rempli, et tous les autres sont vides, c'est-à-dire à un champ magnétique  $B_0$  tel que (en supposant que les niveaux de Landau sont dégénérés en spin) :

$$N_s = \frac{2eB_0}{h} \quad \text{Équation 4.13}$$

où  $N_s$  est la concentration de porteurs dans la bande considérée de la couche de mouillage. [51]

Par ailleurs, nous savons que l'intensité PL  $I_{QD}(t)$  est proportionnelle au nombre d'excitons  $N_{exc}(t)$  peuplant les boîtes quantiques :

$$I_{QD}(t) \propto N_{exc}(t) \quad \text{Équation 4.14}$$

Plaçons-nous au niveau de la bande de conduction et supposons que le nombre d'excitons présents dans les boîtes quantiques est égal au nombre d'électrons  $n_{QD}$  (on pourrait également faire le même raisonnement avec les trous de la bande de valence) :

$$I_{QD}(t) \propto n_{QD}(t) \quad \text{Équation 4.15}$$

Considérons maintenant l'équation d'évolution de la population des électrons dans les boîtes quantiques en régime stationnaire :

$$\frac{dn_{QD}(t)}{dt} = \frac{n_{WL}}{\tau_{cap}} - \frac{n_{QD}}{\tau_{WL}^{rad}} = 0 \quad \text{Équation 4.16}$$

où  $n_{WL}$  représente la population d'électrons dans la couche de mouillage et  $\tau_{cap}$ ,  $\tau_{WL}^{rad}$  correspondent respectivement au temps de capture par les points quantiques et au temps de recombinaison radiative dans la couche de mouillage.

Par conséquent :

$$n_{WL} = \frac{n_{QD} \cdot \tau_{cap}}{\tau_{WL}^{rad}} \quad \text{Équation 4.17}$$

De façon similaire au cas des boîtes quantiques, on peut supposer que l'intensité PL  $I_{WL}$  de la couche de mouillage est proportionnelle au nombre d'électrons  $n_{WL}$  qui y sont présents. Il vient donc :

$$\frac{I_{WL}(t)}{I_{QD}(t)} \propto \frac{n_{WL}(t)}{n_{QD}(t)} = \frac{\tau_{cap}}{\tau_{WL}^{rad}} \quad \text{Équation 4.18}$$

Dans le contexte de la discussion précédente concernant  $\tau_{cap}$  et dans l'hypothèse où la durée de vie radiative dans la couche de mouillage est indépendante du champ magnétique, on peut finalement écrire :

$$\frac{I_{WL}(t)}{I_{QD}(t)} \propto B^2 \quad \text{à bas champ magnétique}$$

Équations 4.19

$$\text{et } \frac{I_{WL}(t)}{I_{QD}(t)} \propto B \quad \text{à fort champ magnétique.}$$

Cette interprétation permet donc de rendre compte correctement, au moins qualitativement, du passage d'un comportement en  $B^2$  à un comportement linéaire en  $B$  du rapport  $A_{WL}/A_{QD}$  lorsque le champ magnétique augmente. Par contre, le champ magnétique correspondant au changement de régime ne se comporte pas comme ce modèle simple le prévoit. En effet, on observe expérimentalement que le régime linéaire en  $B$  se manifeste à un champ magnétique d'autant plus faible que le degré d'interdiffusion est fort. Or, à excitation égale, la concentration dans la couche de mouillage est plus grande pour les échantillons très interdiffusés, ce qui correspondrait à un champ  $B_0$  plus important selon le raisonnement exposé plus haut. Il semble plausible que les effets d'interactions porteurs-porteurs (processus Auger), qui n'ont pas été pris en considération dans notre interprétation et qui sont favorisés lorsque le nombre de porteurs augmente, puissent être à l'origine du comportement observé. Des études plus détaillées devront être effectuées pour confirmer cette hypothèse. Par ailleurs, le rôle possible dans le comportement de  $A_{WL}/A_{QD}$  d'une variation de la durée de vie radiative dans la couche de mouillage avec le champ magnétique devra également faire l'objet d'une analyse plus poussée.

D'autres auteurs [46] ont en effet mis en évidence une influence du champ magnétique sur la durée de vie radiative dans des puits quantiques simples. Il est probable qu'un tel effet se manifeste dans nos échantillons, et cause une partie de la variation du rapport  $A_{WL}/A_{QD}$ . De nouvelles analyses ont débuté à ce sujet mais le détail de celle-ci dépasse le cadre du présent travail, un début de raisonnement est toutefois fourni en annexe.

#### IV.3.3.b Cas des échantillons à simple couche.

##### *IV.3.3.b.i Faible excitation.*

La figure IV-18 présente le rapport  $I_{WL}/I_{QD}$  concernant les échantillons à simple couche dans le cas où l'on a réduit la puissance d'excitation (12 mW). On constate que les points expérimentaux sont bien lissés par une fonction polynomiale du type  $aB^2+b$  quelle que soit l'amplitude du champ magnétique contrairement aux échantillons multicouches où le lissage devenait linéaire à partir d'un certain champ magnétique. De plus, on ne remarque pas de variation importante avec les conditions de recuit comme le montre la figure IV-19.

Ceci peut au moins en partie être expliqué par le fait que, pour des conditions de recuit nominale-ment identiques, les échantillons à simple couche s'avèrent être moins interdiffusés que les échantillons multi-couches, comme le révèlent les données du tableau IV-1. On retrouve donc une certaine cohérence avec le comportement observé pour l'échantillon multi-couches le moins interdiffusé.

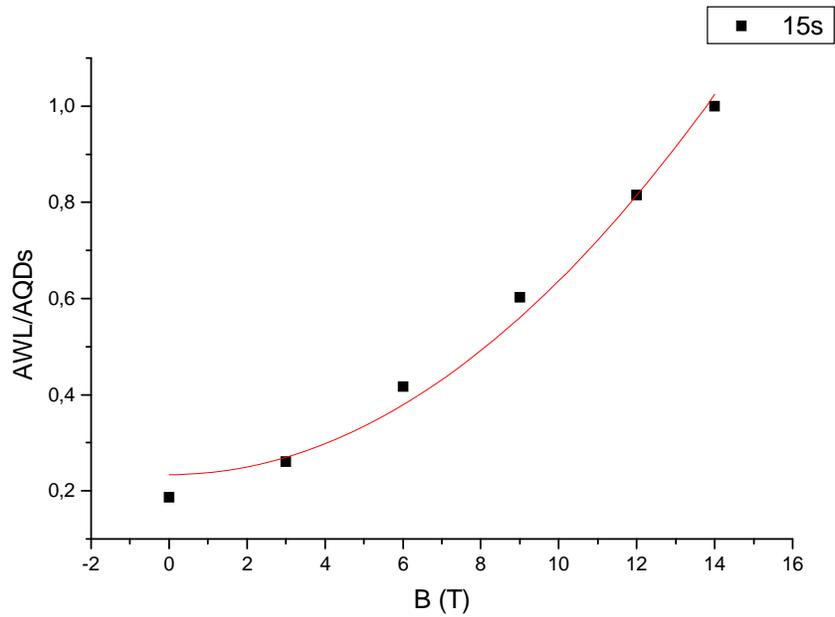


Figure IV-18: Évolution du rapport  $I_{WL} / I_{QD}$  de l'aire sous le pic de la couche de mouillage sur l'aire sous la courbe associée aux points quantiques en fonction du champ magnétique à faible excitation (12 mW) pour l'échantillon à simple couche recuit 15 s à 850°C. La courbe en trait plein représente le lissage des points expérimentaux par une fonction polynomiale du second ordre en  $B$ .

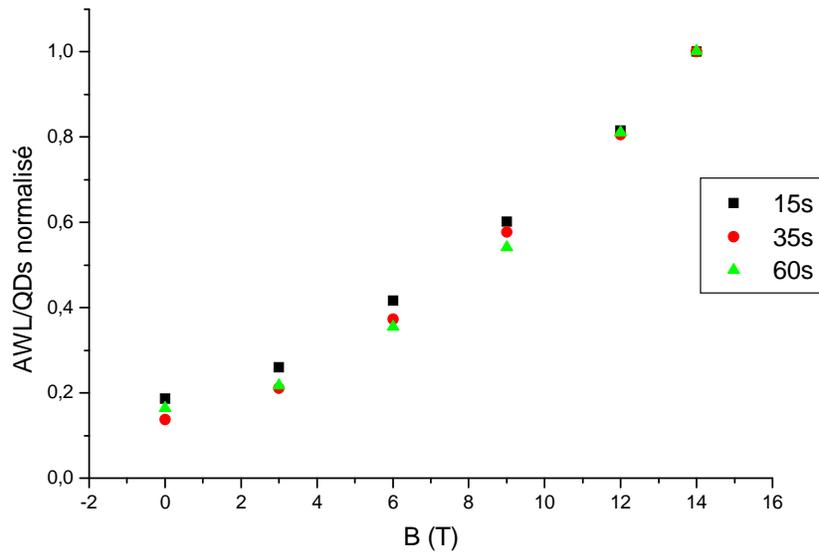


Figure IV-19: Comparaison à faible puissance d'excitation du rapport  $A_{WL} / A_{QD}$  pour l'ensemble des échantillons à simple couche étudiés. Chaque courbe a été normalisée par rapport à la valeur obtenue à 14T.

Échantillon	Type de recuit	$E_{WL}-E_S$ (meV)
simple couche	SiO2-15s	144
simple couche	SiO2-35s	109
simple couche	SiO2-60s	103
multi-couche	SrF2-45s-800°C	116
multi-couche	SiO2-30s-720°C	98
multi-couche	SiO2-30s-760°C	70
multi-couche	SiO2-30s-800°C	57

Tableau IV-1: Comparaison de la différence d'énergie  $E_{WL}-E_S$  entre le pic de PL associé à la couche de mouillage et le pic correspondant au niveau  $s$  des boîtes, pour les différentes conditions de recuit et pour les échantillons à simple couche et multi-couches. Le degré d'interdiffusion des échantillons est d'autant plus élevé que cette différence d'énergie est faible.

#### IV.3.3.b.ii Forte excitation.

La figure IV-20 présente le rapport de l'aire sous le pic de la couche de mouillage sur l'aire sous la courbe correspondant à l'ensemble des niveaux des points quantiques pour l'échantillon à simple couche recuit 15 s et soumis à une forte excitation (120 mW).

Quel que soit l'échantillon considéré, les résultats  $I_{WL}/I_{QD}$  sont similaires, comme le montre la figure IV-21. Il faut cependant noter que pour certains échantillons (ceux recuits 15s), l'accroissement de l'intensité du pic de PL correspondant à la couche de mouillage en fonction du degré d'interdiffusion est beaucoup plus marqué (Fig. IV-3 et IV-5).

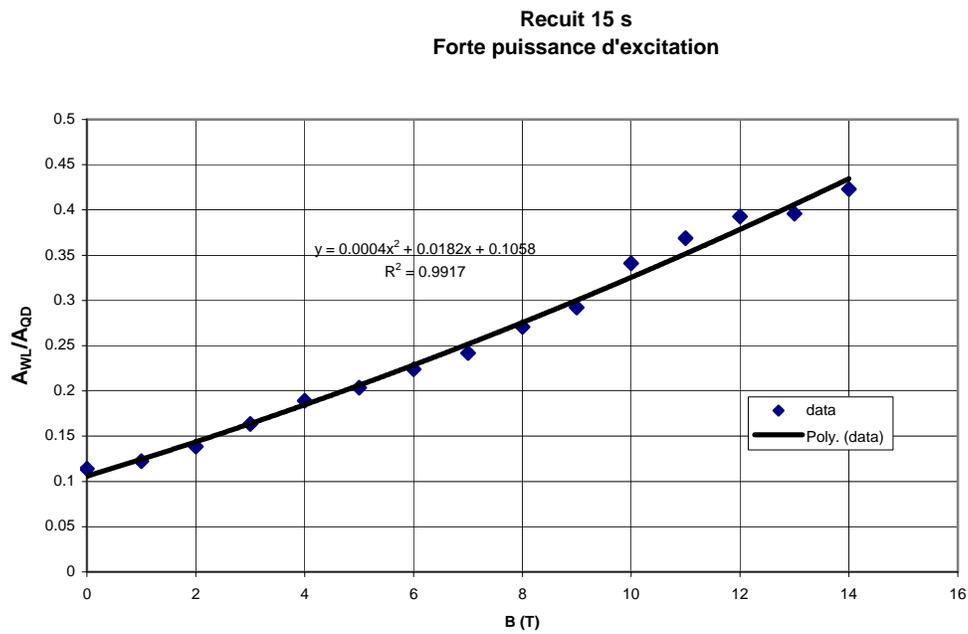


Figure IV-20: Évolution du rapport  $I_{WL} / I_{QD}$  de l'aire sous le pic de la couche de mouillage sur l'aire sous la courbe correspondant aux points quantiques en fonction du champ magnétique à forte excitation (120 mW) pour l'échantillon à simple couche recuit 15 s à 850°C. La courbe en trait plein représente le lissage des points expérimentaux par une fonction polynomiale du second ordre en  $B$ .

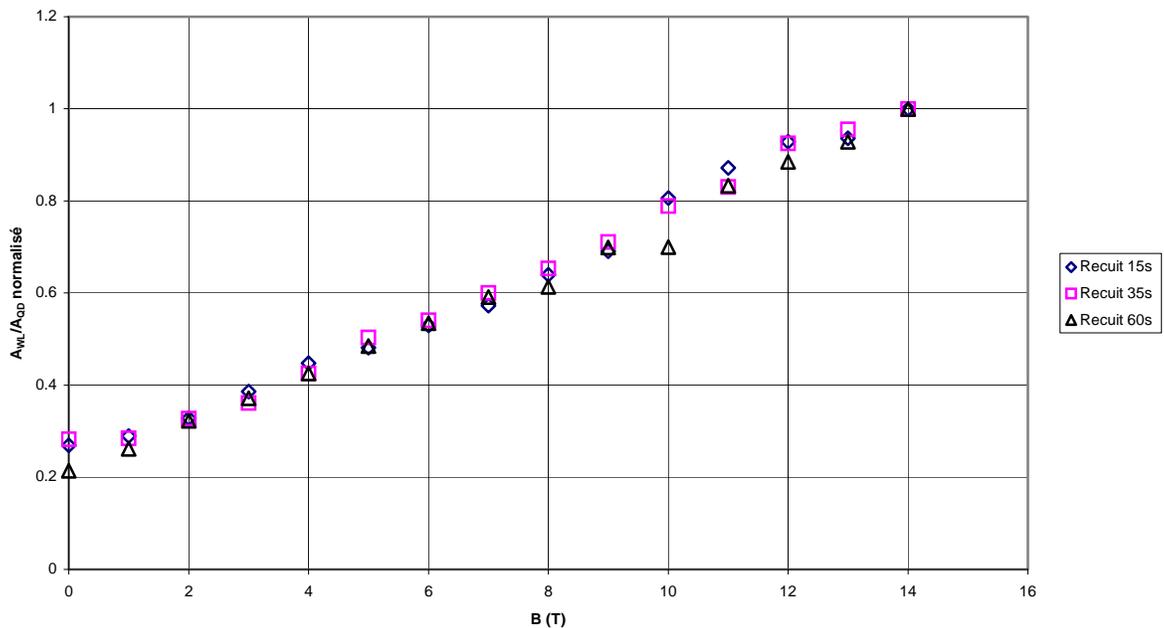


Figure IV-21: Comparaison du rapport  $A_{WL}/A_{QD}$  pour l'ensemble des échantillons à simple couche étudiés. Chaque courbe a été normalisée par rapport à la valeur obtenue à 14 T.

On peut également constater que les points expérimentaux ne sont plus lissés par une fonction du type  $aB^2+b$  comme c'était le cas à basse excitation, mais par une fonction polynomiale du second ordre en B. Cette différence comportementale pourrait possiblement être due à l'effet des interactions entre porteurs qui prennent beaucoup plus d'importance à forte excitation.

#### IV.3.4 Complément d'étude sur la dynamique des porteurs : comparaison des intensités associées à chaque niveau quantique.

Il n'est pas aisé d'obtenir des résultats précis concernant l'évolution individuelle de l'aire des différentes gaussiennes utilisées dans le lissage, du fait que l'on a choisi de s'affranchir des niveaux les plus excités et de limiter le nombre maximal de gaussiennes à utiliser. De plus la plupart des spectres présentent des irrégularités (présence d'épaulement sur les pics) du côté des basses énergies. Ces deux raisons perturbent les valeurs des aires résultant du lissage.

Plus les spectres révèlent de niveaux, plus le nombre de gaussiennes nécessaire pour lisser les points expérimentaux doit être élevé, ce qui accroît l'imprécision concernant la variation de l'intensité de chaque gaussienne. C'est pourquoi aucune information fiable n'a pu être extraite à cet égard dans le cas des échantillons à simple couche à forte puissance d'excitation.

Néanmoins, pour les échantillons à simple couche soumis à une faible excitation, on peut constater (Fig. IV-22) que globalement l'aire de chacune des gaussiennes diminue lorsque le champ magnétique augmente. Ce résultat est cohérent avec le fait que la section de capture efficace décroît lorsque B augmente. (cf paragraphe IV.3.3.a) Ce comportement se retrouve également pour les échantillons multi-couches et principalement pour le niveau fondamental car l'aire des niveaux excités varie peu. (Fig. IV-23)

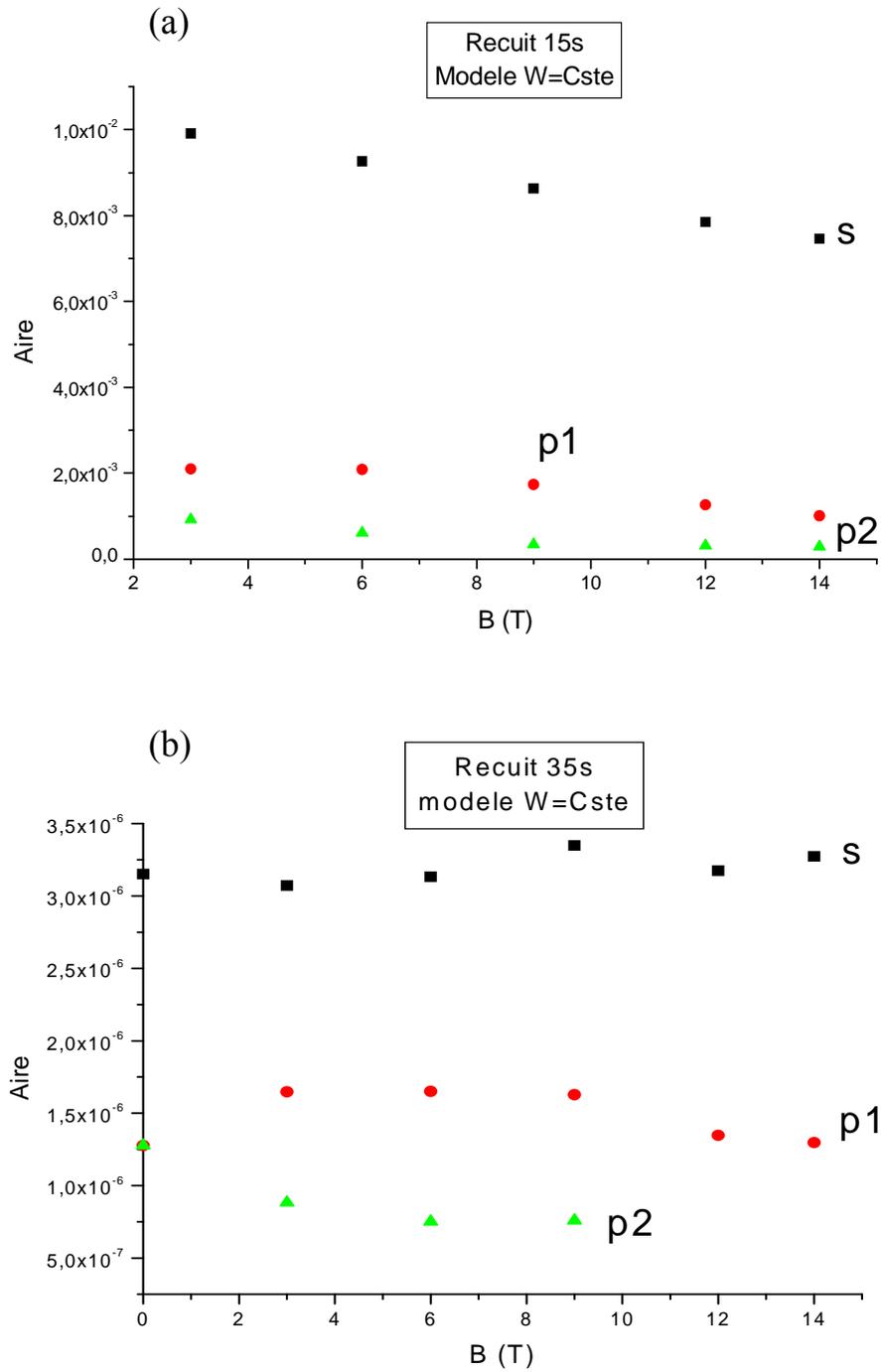
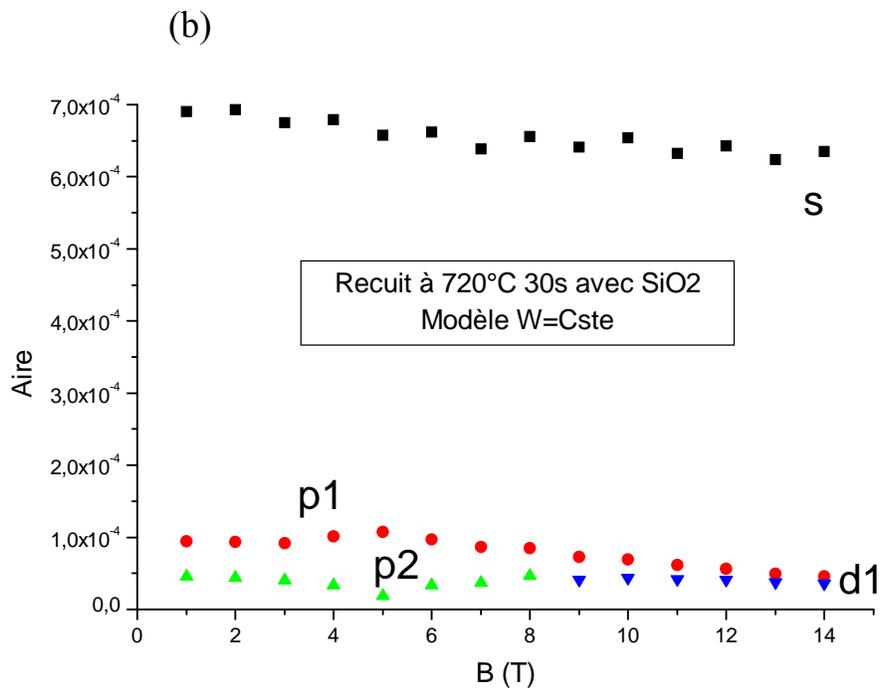
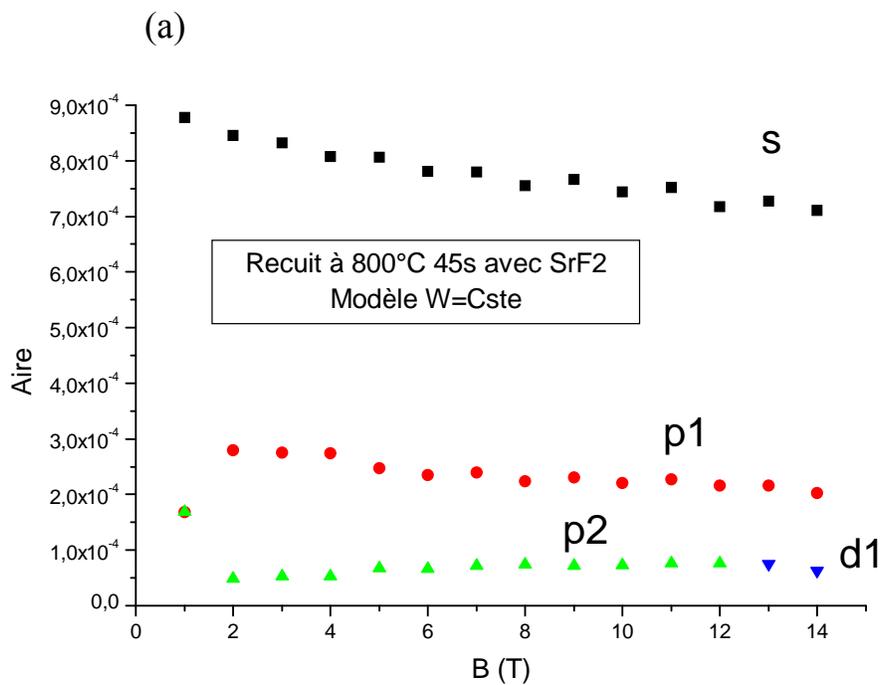


Figure IV-22: Évolution de l'aire associée à chaque niveau quantique résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons à simple couche recuit 15s (a) et 30s (b) à 850°C à faible puissance d'excitation (12mW).



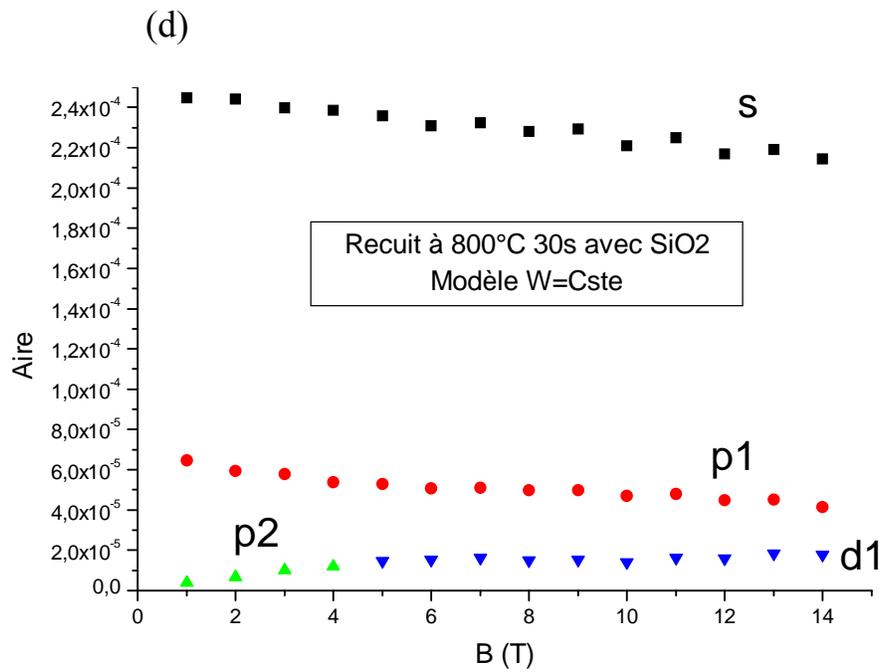
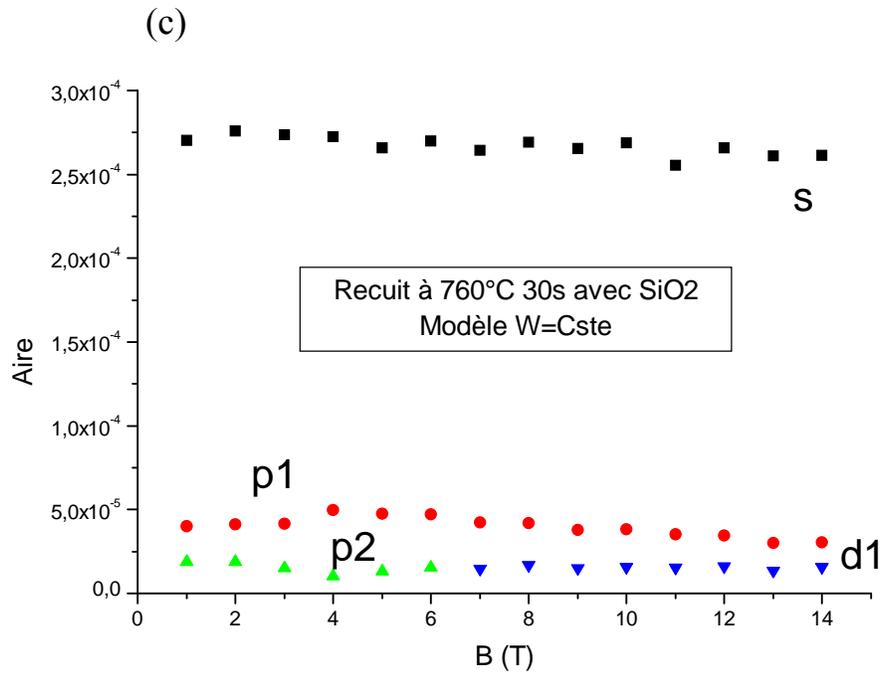


Figure IV-23: Évolution de l'aire associée à chaque niveau quantique résultant du modèle où la largeur à mi-hauteur reste constante avec le champ magnétique pour les échantillons multi-couches à forte puissance d'excitation (120 mW).

## **Conclusion.**

A l'aide d'expériences de magnéto-photoluminescence (à température de 4.5 K et champ magnétique entre 0 et 16 T), nous avons pu mettre en évidence l'évolution avec le champ magnétique du niveau fondamental (orbitale s) ainsi que de plusieurs niveaux excités (orbitales p, d, et quelques indications sur l'orbitale f) pour des structures à points quantiques InAs/GaAs interdiffusées à simple couche ou multi-couches. Une méthode d'analyse simple, basée essentiellement sur des lissages des spectres expérimentaux utilisant des sommes de gaussiennes et sur une modélisation de la largeur à mi-hauteur des raies d'émission PL, nous a permis d'obtenir la position et la largeur des différentes raies en fonction du champ magnétique. Un comportement caractérisé principalement par une variation diamagnétique de l'énergie du niveau fondamental accompagnée d'une séparation des niveaux excités suivant leur dégénérescence a été mis en évidence et s'est avéré être en bon accord avec une approche théorique basée sur les états de Fock-Darwin.

Par ailleurs, il a été possible d'étudier quelques aspects de la dynamique des porteurs sous champ magnétique dans les mêmes structures à points quantiques. Nous avons en effet déterminé que le rapport de l'intensité de PL associée à la couche de mouillage sur l'intensité liée à l'ensemble des points quantiques augmentait de manière non linéaire en fonction du champ magnétique. Ce comportement est qualitativement cohérent avec la dépendance du rayon de l'orbite cyclotron 2D (dans la couche de mouillage) avec le champ magnétique et de son influence sur la probabilité de capture des porteurs par les points quantiques. Une analyse plus développée du comportement du temps de vie radiatif avec le champ magnétique semble néanmoins nécessaire pour comprendre réellement le phénomène.

Les limites de notre méthode d'analyse ont été atteintes dans le cas des mesures de PL sous forte excitation, pour lesquelles la complexité des spectres obtenus entraînait l'utilisation d'un nombre important de paramètres ajustables dans notre approche. Néanmoins il semble que globalement, pour tous les types d'échantillons étudiés, l'intensité des raies d'émission diminue

avec le champ magnétique, en particulier dans le cas de l'orbitale s, ce qui est cohérent avec l'augmentation de l'intensité de la raie associée à la couche de mouillage.

Une suite logique au travail présenté ici consisterait à compléter l'analyse en incluant les effets d'interactions entre porteurs, complètement négligés dans notre première approche. Plusieurs groupes de recherche théorique ont en effet prédit l'existence de complexes excitoniques dans ce type de structure. Des mesures complémentaires de micro-PL apporteraient d'importantes informations dans ce contexte, en permettant de sonder un nombre réduit de points quantiques et ainsi de s'affranchir, au moins partiellement, des problèmes d'inhomogénéité de taille des boîtes quantiques qui empêchent l'étude détaillée de ces complexes excitoniques.

## Références

- [01] M. J. Kelly Low dimensional semiconductors chapitres 2 et 3 (Edition Clarendon Press Oxford 1995)
- [02] Reed, R.T. Bate, K. Bradshaw, W.M. Duncan, W.M. Frensley, J.W. Lee, H.D. Smith J. Vacuum and Technology B 4 p 358 (1986)
- [03] Cibert, P.M. Petroff, G.J. Dolan, S. Pearton, A.C. Gossard, J.H. English App.Phys.Letter 49 p 1275 (1986)
- [04] H. Temkin, G.J. Dolan, M.B. Panish, S.N.G. Chu App.Phys.Letter 50 p 413 (1987)
- [05] V. Gudmundsson, R.R. Gerhards Phys.Rev.B 55 p 4054 (1997)
- [06] S. Fafard, K. Hinzer, S. Raymond, M. Dion, J. McCaffrey, S. Charbonneau Sciences 274 p 1350 (1997)
- [07] S. Fafard, M. Spanner, S. Raymond, C.Ni. Allen, K. Hinzer, J. Lapointe, C. Struby, M. Gao, P. Hawrilak, C. Gould, A. Sachradja, P. Zawadski, H.C. Liu, Z.R. Wasilewski, J. McCaffrey Quantum Dots Devices SPIE proc.4078 p 100
- [08] G.Fishman Energie et fonction d'onde des semi-conducteurs (Les éditions de physique 1988)
- [09] A. Wojs, P. Hawrilak, S. Fafard, L. Jacak Phys.Rev.B 54 (8) p 5604
- [10] M. Bayer, V.B. Timofeev, T. Gutbrod, A. Forchel, R. Stefen, J. Oshinowo Phys.Rev.B 52 p 11623 (1995)
- [11] L. Jacak, P. Hawrylak, A. Wojs Quantum Dots section 8 (édition springer 1998)
- [12] A. Barenco, M.A. Dupertuis Phys.Rev.B 52 p 2766 (1995)
- [13] A. Wojs, P. Hawrilak Solid State communication 100 p 487 (1996)

- [14] V. Fock Zeitschrift für physik 47 p 446 (1928)
- [15] C.G. Darwin Proc Cambridge Philo. Soc. 27 p 86 (1930)
- [16] A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V.B. Timofeev, F. Schäfer, J.P. Reithmaier Phys.Rev.B 58 (12) p 7508
- [17] R. Provoost, M. Hayne, V.V. Moshchalkov, M.K. Zundel, K. Eberl App.Phys.Letter 75 (6) p 799
- [18] PD. Wang, J.L. Merz, S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, G. Ribeiro Meideros, M. Oestreich, P.M. Petroff, K. Uchida, N. Miura, H. Hakiyama, H. Sakaki Phys.Rev.B 53 (24) p 16458
- [19] L. Jacak, P. Hawrylak, A. Wojs Quantum Dots chapitre 3 (édition springer 1998)
- [20] L. Jacak, P. Hawrylak, A. Wojs Quantum Dots chapitre 2 (édition springer 1998)
- [21] Reed, R.T. Bate, K. Bradshaw, W.M. Duncan, W.M. Frensley, J.W. Lee, H.D. Smith J. Vacuum and Technology B 4 p 358 (1986)
- [22] Cibert, P.M. Petroff, G.J. Dolan, S. Pearton, A.C. Gossard, J.H. English App.Phys.Letter 49 p 1275 (1986)
- [23] R.C. Ashoori, H.L. Störmer, J.S. Weiner, L.N. Pfeifer, S.J. Pearton, K.W. Baldwin, K. West Phys.Rev.Letter 68 p 3088 (1992)
- [24] Sikorski, U. Merkt Phys.Rev.Letter 62 p 2164 (1989)
- [25] J. Alsmeier, E. Batke, J.P. Kotthaus Phys.Rev.B 41 p 1699 (1990)
- [26] K. Brunner, U. Bokelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle, G. Weimann Phys.Rev.Letter 69 p 3216 (1992)
- [27] A.I. Ekimov, A.L. Efros, A.A. Onushchenko Solid State Communication 56 p 921 (1985)

- [28] T. Fukui, S. Ando, Y. Tokura *App.Phys.Letter* 58 p 2018 (1991)
- [29] S. Mitsuru *Semiconductors and semimetals 60 Self Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots* chapitre 2 p119 (édition Academic Press 1999)
- [30] K. Nakajima *Jpn.J.App.Phys N°4A* 38 p 1875 (1999)
- [31] S. Fafard, Z.R. Wasilewski, C.Ni. Allen, D. Picard, P.G. Piva, JP. McCaffrey *Superlattices and microstructures Vol 25 N°1/2* p 87 (1999)
- [32] S. Raymond, S. Fafard, P.J. Pool, A. Wojs, P. Hawrilak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P.M. Petroff, J.L. Merz *Phys.Rev.B* 54 p 11548 (1996)
- [33] Marzin, J.M. Gerard, A. Izraël, D. Barrier, G. Bastard *Phys.Rev.Letter* 73 p 716 (1996)
- [34] S. Mitsuru *Semiconductors and semimetals 60 Self Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots* chapitre 4 pp 192-196 (edition Academic Press 1999)
- [35] J. Beauvais, J.H. Marsh, A.H. Kean, A.C. Bryce, C. Button *Electronics Letters* 28 (17) p 1670 (Aug . 1992)
- [36] S. Mitsuru *Semiconductors and semimetals 60 Self Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots* chapitre 4 pp 190-192 (edition Academic Press 1999)
- [37] L. Banyai, S.W. Koch *Semiconductor quantum dots* chapitre 2 pp 21-24 (édition World Scientific 1993)
- [38] K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle, G. Weiman *Phys.Rev.Letter* 69 (22) p 3216 (1992)
- [39] N. Perret, D. Morris, L. Franchomme-Fossé, R. Côté *Phys.Rev.B* 62 (8) p 5092 (2000)
- [40] S. Fafard, C.Ni. Allen *App.Phys.Letter* 75 (16) p 2374 (1999)

- [41] S. Mitsuru Semiconductors and semimetals 60 Self Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots chapitre 4 pp 125-130
- [42] L. Banyai, S.W. Koch Semiconductor quantum dots chapitre 2 pp 13-20 (édition World Scientific 1993)
- [43] U. Bockelman, T. Egeler Phys.Rev.B 46 p 15574 (1992)
- [44] T. Inoshita, H. Sakaki Phys.Rev.B 46 (11) p 7260 (1992)
- [45] D. Morris, S.Fafard Dynamics of Photoexcited Carrier in InAs/GaAs Self Assembled Quantum Dots (Non publié)
- [46] I. Aksenov, Y. Aoyagi, J. Kusano, T. Sugano, T. Yasuda, Y. Segawa Phys.Rev.B 52 (8) p 17430 (1995)
- [47] S. Mitsuru Semiconductors and semimetals 60 Self Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots chapitre 4 pp 200-207 (edition Academic Press 1999)
- [48] Press et Al Numerical Recipes in C, The art of scientific computing (édition Cambridge University Press 1988)
- [49] K. Mukai Semiconductors and semimetals 60 Self Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots p 196 (edition Academic Press 1999)
- [50] S. Raymond, P. Hawrilak, C. Gould, S. Fafard, A. Sachradja, M. Potemski, A. Wojs, S. Charbonneau, D. Leonard, P.M. Petroff, J.L. Merz Solid State Communication 101 (12) p 883 (1997)
- [51] C.W.J. Beenaker, H. Van Houten Quantum transport in semiconductor nanostructures Solid State Physics Vol 44 pp 1-228 (édition Academic Press 1991)
- [52] J. Feldman, G. Peter, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, R.J. Eliot Phys.Rev.Letter 59 p2337 (1987)

## **ANNEXE: Analyse du ratio de l'intensité de la couche de mouillage sur celle des boîtes quantiques.**

### **Comportement du temps de capture en champ magnétique**

Le transport classique (diffusion dans le plan des couches de mouillage (CM)) et la capture quantique (processus multi-phononiques et Auger) sont des mécanismes séquentiels qui affectent le temps moyen de capture des porteurs par les boîtes quantiques (BQs). Lorsque la densité de BQs est faible (c'est le cas pour nos échantillons) c'est le transport classique des porteurs dans la CM qui limite le temps de capture, à basse température ( $T < 60\text{K}$ ) tout du moins. Alors que les temps de transport des charges dans la CM peuvent atteindre quelques centaines de picosecondes à 15K, les temps de capture quantique sont limités à environ une dizaine de picosecondes et ces processus n'agissent que lorsqu'un porteur est à proximité d'une BQ. En présence d'un champ magnétique et dans la limite où le nombre de collisions inélastiques des porteurs est faible, ceux-ci vont décrire des orbites cyclotron bien définies. Il est raisonnable de penser que ce sont les porteurs situés au pseudo-niveau de Fermi dans les bandes de conduction et de valence qui auront le plus de chance d'interagir avec les BQs et d'être capturés puisque ce sont ces porteurs qui vont parcourir des orbites ayant le plus grand rayon cyclotron. Le rayon cyclotron  $R_c$  s'exprime de la manière suivante :

$$R_c = \frac{\hbar k_f}{eB} \quad \text{avec} \quad E_f = \frac{\hbar^2 k_f^2}{2m^*}$$

où  $E_f$  correspond à l'énergie du pseudo-niveau de Fermi. En 2D, la densité d'états est indépendante de l'énergie et s'exprime en fonction de la densité  $N_s$  de photoporteurs dans la CM en régime stationnaire. On obtient donc (à 0K):

$$E_f = \frac{\pi \hbar^2 N_s}{m^*}$$

À bas champ magnétique, dans le régime où de nombreux niveaux de Landau sont peuplés, la position du quasi-niveau de Fermi est indépendante de  $B$  de sorte que l'aire décrite par l'orbite cyclotron varie en  $B^{-2}$ . À fort champ magnétique, lorsque seul le dernier niveau de Landau est occupé,  $E_f$  se met à croître linéairement avec le champ  $B$ . Dans ces conditions, l'aire couverte par l'orbite cyclotron varie en  $B^{-1}$ . La transition entre le régime bas et haut champ magnétique s'effectue à une valeur de champ magnétique  $B_0$  qui dépend de la densité de porteurs dans la CM, soit :

$$B_0 = \frac{N_s \cdot h}{2e}$$

Pour les échantillons à couche unique, le tableau suivant résume l'ordre de grandeur des différents paramètres décrits plus haut. Notons que la valeur de  $N_s$  est calculée en supposant que tous les photons incidents sont absorbés et que les photoporteurs sont tous transférés dans la CM avant d'être capturés par les BQs. La valeur de  $N_s$  dépend alors du temps de vie considéré dans cette couche de mouillage ; ce temps est compris entre le temps maximal de recombinaison des porteurs (soit  $\approx 1$ ns) et le temps de capture par diffusion minimal à 15K (soit  $\approx 100$ ps).

**Tableau : Grandeurs caractéristiques pour une densité de BQs de  $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  et une taille de faisceau d'excitation de  $500 \mu\text{m}$**

<b>P<sub>exc.</sub></b> <b>(mW)</b>	<b>temps de</b> <b>vie dans la</b> <b>CM (ps)</b>	<b>N<sub>s</sub></b> <b>(cm<sup>-2</sup>)</b>	<b>B<sub>0</sub></b> <b>(T)</b>	<b>E<sub>f</sub></b> <b>(meV)</b>	<b>Rc</b> <b>(μm) pour</b> <b>B=1T</b>	<b>nombre</b> <b>moyen de BQs</b> <b>contenu dans</b> <b>l'orbite</b>
120	1000	$2.5 \times 10^{11}$	5	9	0.084	1
	100	$2.5 \times 10^{10}$	0.5	0.9	0.026	0.3
12	1000	$2.5 \times 10^{10}$	0.5	0.9	0.026	0.3

Note : pour les trous lourds, le rayon cyclotron à  $E_f$  est diminué d'un facteur d'environ 2 à 3 par rapport aux électrons.

Note 2: pour les échantillons multi-couches, la densité moyenne dans la CM devrait (pour une même puissance d'excitation) être diminuée d'au moins un facteur 10.

En champ magnétique et dans la limite où les orbites sont bien définies (période des orbites inférieure au temps de collisions entre porteurs) le mouvement des porteurs est totalement quantifié de sorte que la capture devient purement quantique. La probabilité de capture est alors proportionnelle au recouvrement des fonctions d'ondes électroniques barrière/BQ. Cette probabilité sera indépendante de B dans la limite où le nombre moyen de BQs contenu dans l'orbite cyclotron est grand, tandis qu'elle sera proportionnelle à l'aire de l'orbite dans le régime où le nombre moyen de BQs est inférieur ou égal à 1. Les grandeurs typiques calculées à l'aide des conditions de mesure qui prévalaient lors de l'expérimentation indique que l'on peut dans presque tous les cas possibles considérer que le temps de capture sera dépendant du champ magnétique. Les limites de comportement sont :

**orbite bien définie :** bas champ ( $B < B_0$ ) :  $\tau^{cap} = \tau_0^{cap} + a_0 B^2$

haut champ ( $B > B_0$ ) :  $\tau^{cap} = \tau_0^{cap} + a_0 B$

**orbite incomplète (sans quantification) :**  $\tau^{cap} = \tau_0^{cap}$

### **Comportement du temps de vie radiatif des porteurs dans la CM en fonction du champ magnétique**

En 2D, Feldman et al. [52] ont montré que le temps de vie radiatif des excitons libres à basse température est relié au ratio de l'aire de l'exciton de Bohr ( $A_{ex}$ ) sur l'aire de cohérence des excitons avant diffusion inélastique ( $A_c$ ) :

$$\tau_{rad.}^{2D} \propto \frac{A_{ex}}{A_c}$$

On s'attend intuitivement à ce que l'aire de l'exciton de Bohr diminue lorsque le champ B augmente à cause de l'augmentation du confinement magnétique. De plus, l'aire de cohérence de l'exciton devrait normalement augmenter avec B car le nombre de collisions avec les phonons et les impuretés du système diminue lorsque le rayon cyclotron diminue. Il est toutefois difficile d'extraire analytiquement la loi de puissance exacte du temps de vie de l'exciton en fonction du champ. Aksenov et al. [46] ont déduit, à partir de l'analyse des raies d'émission de puits quantiques, que le temps de vie radiatif devait décroître lorsque le champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches augmentait. Le comportement déduit de leur analyse était pratiquement linéaire entre 0 et 6 Tesla ; le temps de vie passait de 400ps à 200ps dans cette gamme de variation du champ appliqué. Nous allons restreindre notre analyse à une telle dépendance linéaire et écrire le temps de vie des excitons dans la CM comme :

$$\tau_{CM}^{rad.} = \tau_0^{rad.} - a_1 B$$

### **Comportement du ratio $I_{CM}/I_{BQ}$ en fonction du champ magnétique**

Pour déduire l'expression de ce comportement il faut résoudre les équations d'évolution des populations de porteurs dans la CM et dans les BQs en régime stationnaire. Considérons que la capture est ambipolaire (électrons et trous capturés au même taux) et que la recombinaison est de nature excitonique. Dans ce cas l'évolution de la population des électrons en excès dans la CM et dans les BQs suit essentiellement la population des excitons. Dans le cas où le temps de capture des porteurs par la CM et le temps de relaxation des porteurs (excitons) dans cette couche sont petits devant le temps de recombinaison radiatif des excitons, on peut écrire :

$$\frac{dn_{CM}(t)}{dt} = -\frac{n_{CM}(t)}{\tau^{cap}} \cdot \left( 1 - \frac{n_{BQ}(t)}{N_{BQ}^{Max.}} \right) - \frac{n_{CM}(t)}{\tau_{CM}^{rad.}} + g(t) = 0$$

$$\frac{dn_{BQ}(t)}{dt} = \frac{n_{CM}(t)}{\tau^{cap}} \cdot \left( 1 - \frac{n_{BQ}(t)}{N_{BQ}^{Max.}} \right) - \frac{n_{BQ}(t)}{\tau_{BQ}^{rad.}} = 0$$

où  $g(t)=g_0$  est le taux de génération de porteurs par BQ,  $n_{CM}$  et  $n_{BQ}$  représente respectivement les populations (par boîte) de porteurs dans la CM et dans les BQs,  $N_{BQ}^{Max.}$  correspond au nombre maximum de porteurs pouvant occuper les états discrets des BQs ( $\approx 20$  dans les BQs étudiées ici),  $\tau^{cap}$  et  $\tau_{BQ}^{rad.}$  représente respectivement le temps de capture par les BQs et le temps de recombinaison radiatif dans les BQs. L'intensité de PL émise par la CM ou par les BQs est proportionnelle au taux de recombinaison radiatif. Le ratio des intensités d'émission de la CM et des BQs s'écrira donc :

$$\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{n_{CM}}{\tau_{CM}^{rad.}} \cdot \frac{\tau_{BQ}^{rad.}}{n_{BQ}}$$

En utilisant la deuxième équation d'évolution, on peut réécrire ce ratio comme :

$$\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{\tau_{CM}^{cap}}{\tau_{CM}^{rad.}} \cdot \frac{1}{\left( 1 - \frac{n_{BQ}}{N_{BQ}^{Max.}} \right)}$$

Dans la limite de faible remplissage :  $\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{\tau_{CM}^{cap}}{\tau_{CM}^{rad.}}$ . Toutefois à forte puissance d'excitation laser

(expériences réalisées à 120mW sur les échantillons à couche unique) on ne peut plus négliger le facteur de remplissage devant 1 au dénominateur. Dans ce cas, la résolution de système d'équations d'évolution des populations nous permet d'obtenir une équation du deuxième ordre qu'il faudra résoudre pour isoler le nombre moyen de porteurs dans une BQ. Cette équation s'écrit:

$$\left( \frac{\tau_{CM}^{rad.}}{N_{BQ}^{Max.}} \right) \cdot (n_{BQ})^2 - \left( \tau_{CM}^{rad.} + \tau^{cap} + \frac{g_0 \tau_{CM}^{rad.} \tau_{BQ}^{rad.}}{N_{BQ}^{Max.}} \right) \cdot n_{BQ} - g_0 \tau_{CM}^{rad.} \tau_{BQ}^{rad.} = 0$$

Dans le contexte des discussions précédentes du comportement en champ B des temps de capture et de recombinaison des porteurs, on peut en déduire le comportement recherché du ratio  $I_{CM}^{PL}/I_{BQ}^{PL}$  en fonction de B. Pour ce faire, il faut bien distinguer les différents régimes d'excitation de champ:

### 1. Condition de faible remplissage (nombre moyen de porteurs par BQ < 5)

Dans ce cas, il est raisonnable de considérer que les orbites cyclotron seront bien définies de sorte que :

$$\text{à bas champ (B < B}_0\text{)} : \tau^{cap} = \tau_0^{cap} + a_0 B^2$$

$$\text{à haut champ (B > B}_0\text{)} : \tau^{cap} = \tau_0^{cap} + a_0 B$$

Dans ces conditions de faible excitation, le champ  $B_0$  est très faible (<1T). Notons de plus que:

$$\tau_{CM}^{rad.} = \tau_{CM_0}^{rad.} - a_1 B$$

Le ratio des intensités de PL s'écrit alors, pour presque toute la gamme de champ considéré dans ce travail (c'est à dire dans des conditions de haut champ) :

$$\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{\tau_0^{cap} + a_0 B}{\tau_{CM_0}^{rad.} - a_1 B}$$

### 2. Condition de fort remplissage (nombre moyen de porteurs par BQ > 10)

La situation est plus complexe dans ce cas car il faut résoudre l'équation du second ordre pour trouver  $n_{BQ}$  et  $n_{CM}$  en régime stationnaire. Ceci peut toutefois être réalisé si on remplace les

dépendances en champ des temps caractéristiques (pour le régime étudié) dans l'équation quadratique en  $n_{BQ}$ . Pour simplifier l'analyse on peut supposer que le temps de vie radiatif des

porteurs dans les BQs est indépendant du champ magnétique et que  $\tau_{CM}^{rad.} \gg \tau^{cap} + \frac{g_0 \tau_{CM}^{rad.} \tau_{BQ}^{rad.}}{N_{BQ}^{Max.}}$ .

Dans ce cas, l'équation quadratique se ramène à  $(n_{BQ})^2 - (N_{BQ}^{Max.}) \cdot n_{BQ} - g_0 N_{BQ}^{Max.} \tau_{BQ}^{rad.} = 0$ .

Ainsi le nombre moyen de porteur par boîte quantique est quasi-indépendant du champ B. Par conséquent, on se ramène à la situation précédente pour le comportement du ratio des intensités de PL en champ B, à l'exception que le changement de régime entre bas et haut champ devrait maintenant être plus facilement observable. De plus il n'est pas évident que les collisions porteurs-porteurs, dans ce régime d'excitation laser, ne détruiront pas l'allure des orbites cyclotron. Ainsi, on distinguera les régimes suivants :

**orbite incomplète (sans quantification):** 
$$\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{\tau_0^{cap}}{\tau_{CM_0}^{rad.} - a_1 B}$$

**orbite bien définie :**

**Bas champ ( $B < B_0$ ):** 
$$\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{\tau_0^{cap} + a_0 B^2}{\tau_{CM_0}^{rad.} - a_1 B}$$

**Haut champ ( $B > B_0$ ):** 
$$\frac{I_{CM}^{PL}}{I_{BQ}^{PL}} \propto \frac{\tau_0^{cap} + a_0 B}{\tau_{CM_0}^{rad.} - a_1 B}$$

Notons toutefois que dans le régime bas champ, l'orbite cyclotron est plus grande de sorte qu'elle aura tendance à disparaître plus facilement suite aux collisions porteurs-porteurs. Le régime bas champ se ramène peut-être au cas de l'orbite incomplète.