

# **Propriétés optiques et mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs dans des boîtes quantiques**

**Nathalie PERRET**

Thèse présentée au département de Physique  
en vue de l'obtention du grade de Docteur ès Science (Ph.D.)

FACULTÉ DES SCIENCES  
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE

Sherbrooke (Québec), Canada, Mai 2001

# Résumé

L'objet de ce doctorat est l'étude des propriétés optiques, et en particulier de la relaxation de l'énergie des porteurs dans des structures à boîtes quantiques d'InAs/GaAs. Le travail expérimental a été réalisé grâce aux techniques de photoluminescence (PL) continue et de photoluminescence résolue dans le temps, sur des échantillons comprenant un très grand nombre de boîtes. Pour l'analyse des résultats, nous nous sommes basés sur les connaissances déjà établies quant aux propriétés structurales et à la nature des transitions optiques dans des systèmes semblables.

À l'aide des mesures expérimentales effectuées sur une série d'échantillons de boîtes quantiques interdiffusées à divers degrés, et des calculs variationnels de leurs états électroniques, nous avons démontré clairement que la largeur des raies d'émission de la PL, qui est due aux inhomogénéités dans l'ensemble de boîtes étudié, peut être attribuée principalement à des fluctuations de la hauteur des boîtes.

D'autre part, la détermination des temps de montée et de décroissance des intensités de photoluminescence a montré l'importance de certains mécanismes de transport et de relaxation, en fonction des conditions expérimentales. En effet, les temps caractéristiques de la capture, de la relaxation interniveaux et de la recombinaison des porteurs varient significativement, selon le mécanisme prédominant, en fonction de la température, de la densité d'excitation et de la séparation interniveaux quantiques. Ainsi, les principaux mécanismes mis en évidence sont: la localisation des porteurs dans les barrières à basse température dans le cas des échantillons interdiffusés, les collisions de type Auger sous forte excitation, les processus multiphononiques et la ré-émission thermique à haute température.

Un modèle de relaxation, basé sur les équations d'évolution de la population de porteurs de chaque niveau quantique, a aussi été développé pour mieux identifier l'effet de chacun des principaux mécanismes de relaxation des porteurs considéré séparément. Ces simulations ont permis une analyse plus approfondie du rôle de ces mécanismes. Ainsi, nous avons mis en

évidence l'importance de la localisation des porteurs dans la couche de mouillage, ainsi que l'importance des mécanismes de collisions Auger lors de la capture, la capture et la relaxation interniveaux des porteurs vers tous les niveaux d'énergie inférieure simultanément. De plus, l'importance de la distribution initiale des porteurs dans les boîtes a été étudiée. Notre modèle permet de reproduire de façon très satisfaisante l'évolution des populations de porteurs dans quatre niveaux 0D confinés dans les boîtes.

Finalement, les résultats expérimentaux montrent que la relaxation de l'énergie des porteurs est beaucoup plus rapide que cela avait été prédit initialement par la théorie du "phonon bottleneck". Nos résultats indiquent que l'intensité lumineuse émise par les boîtes est régie principalement par le taux de capture/relaxation interniveaux des porteurs dans les boîtes. Mais elle est limitée par la ré-émission thermique des porteurs hors des boîtes, à haute température. La relaxation rapide des porteurs et la forte intensité lumineuse émise par les boîtes quantiques donnent enfin de grands espoirs pour le développement d'applications technologiques basées sur ces matériaux.

# Remerciements

J'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de recherche, P<sup>r</sup> Denis Morris qui m'a donné la chance de venir étudier au Québec et m'a guidé tout au long de ma thèse.

Je tiens à exprimer mes remerciements à tous nos collaborateurs, et en particulier au Dr Simon Fafard pour nous avoir fourni des échantillons de très grande qualité, ce qui nous a permis d'obtenir des résultats intéressants.

Je voudrais aussi remercier les professeurs, étudiants et techniciens du département de physique et du département de génie électrique pour toute l'aide qu'ils m'ont apportée durant toutes ces années passées à l'université de Sherbrooke.

Je profite de cette occasion pour remercier mes parents qui m'ont légué la "bosse des sciences" et n'ont pas hésité à traverser l'atlantique pour venir m'encourager.

Je suis reconnaissante enfin à tous mes amis et particulièrement à mon mari qui m'ont soutenue et encouragée dans les moments difficiles.

# Table des matières

<b>RÉSUMÉ</b> .....	<b>I</b>
<b>REMERCIEMENTS</b> .....	<b>III</b>
<b>LISTE DES FIGURES</b> .....	<b>VII</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX</b> .....	<b>XVI</b>
<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>1</b>
<b>CHAPITRE 1 GÉNÉRALITÉS SUR LES BOÎTES QUANTIQUES</b> .....	<b>7</b>
1.1 PRÉAMBULE .....	7
1.2 PROPRIÉTÉS STRUCTURALES ET OPTIQUES DES BOÎTES QUANTIQUES .....	9
1.2.1 Croissance par auto-assemblage .....	9
1.2.2 Autres techniques de fabrication .....	13
1.2.3 Modélisation de la structure de bande .....	16
1.2.4 Nature des transitions optiques .....	20
1.2.5 Énergie des transitions .....	30
1.3 DYNAMIQUE DES PORTEURS .....	34
1.3.1 Mécanismes de relaxation .....	34
1.3.2 Processus multi-phononiques .....	41
1.3.3 Collisions entre porteurs, mécanismes Auger .....	48
1.3.4 Mécanismes assistés par les défauts .....	53
1.3.5 Émission thermique .....	55
1.4 CONCLUSIONS .....	59

<b>CHAPITRE 2 ANALYSE EXPÉRIMENTALE .....</b>	<b>60</b>
2.1 OBJECTIFS .....	60
2.2 PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE.....	61
2.2.1 Les échantillons .....	61
2.2.2 Technique de recuit .....	64
2.2.3 Techniques de caractérisation .....	65
2.3 PROPRIÉTÉS OPTIQUES DES BOÎTES QUANTIQUES.....	70
2.3.1 Nature du matériau .....	70
2.3.2 Variation du potentiel de confinement .....	75
2.3.3 Émissions radiative et non-radiative .....	92
2.4 RELAXATION DES PORTEURS DANS LES BOÎTES QUANTIQUES.....	97
2.4.1 Généralités .....	97
2.4.2 Capture des barrières .....	99
2.4.3 Remplissage des niveaux des boîtes .....	111
2.4.4 Ralentissement de la relaxation .....	115
2.4.5 Recombinaison radiative .....	123
2.5 CONCLUSIONS .....	129
 <b>CHAPITRE 3 MODÉLISATION DE LA RELAXATION .....</b>	 <b>131</b>
3.1 MOTIVATIONS .....	131
3.2 SYMBOLES UTILISÉS .....	132
3.3 DESCRIPTION DES MODÈLES EXISTANTS .....	133
3.3.1 Interactions avec les phonons LA .....	133
3.3.2 Équations d'évolution classiques .....	136
3.3.3 Modèle des micro-états .....	139
3.3.4 Distribution aléatoire indépendante des porteurs .....	141
3.4 DÉVELOPPEMENT D'UN NOUVEAU MODÈLE.....	144
3.4.1 Principes de base.....	144
3.4.2 Mise au point des modèles.....	153

3.5	RÉSULTATS DES SIMULATIONS .....	163
3.5.1	Paramètres de modélisation.....	163
3.5.2	Mécanismes de relaxation dominants.....	168
3.5.3	Distribution initiale des porteurs .....	183
3.5.4	Modélisation des données expérimentales .....	188
3.6	CONCLUSIONS .....	198
<b>CHAPITRE 4 SYNTHÈSE DES RÉSULTATS .....</b>		<b>200</b>
<b>CONCLUSION .....</b>		<b>208</b>
<b>ANNEXE A DESCRIPTION DU PHOTOMULTIPLICATEUR UTILISÉ EN PHOTOLUMINESCENCE .....</b>		<b>211</b>
<b>ANNEXE B DESCRIPTION DU DÉTECTEUR AU GERMANIUM UTILISÉ EN PHOTOLUMINESCENCE .....</b>		<b>212</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>		<b>213</b>

# Liste des figures

Figure 1.1:	Image obtenue par TEM (microscope électronique en transmission) d'une BQ d'InAs/GaAs auto-assemblée fabriquée par MBE. Vue transversale d'une boîte en surface, non recouverte <sup>7</sup> . .....	10
Figure 1.3:	Image AFM de boîtes quantiques d'InP/InGaP fabriquées par MOCVD. (a) vue plane et (b) vue tri-dimensionnelle de la surface de l'échantillon <sup>15</sup> . .....	11
Figure 1.4:	Observations par microscope électronique par transmission (TEM) de boîtes quantiques de différentes formes et tailles, et empilement de trois couches de BQs couplées <sup>24, 25</sup> . .....	12
Figure 1.5:	Schémas montrant la variation probable d'un potentiel de confinement typique de BQ, avant (à gauche) et après (à droite) interdiffusion. ....	12
Figure 1.6:	(a) Schéma d'une structure à BQ après croissance d'îlots d'InP à la surface qui créent des contraintes dans le puits de GaInAs. (b) Bande de conduction du puits de GaInAs modulé par les contraintes de l'îlot d'InP <sup>31</sup> . ....	14
Figure 1.7:	Micrographie TEM de boîtes quantiques de GaAs/GaAlAs fabriquées par gravure sèche d'un puits quantique, avant (a) et après (b) recouvrement par une couche de GaAlAs <sup>33</sup> . ....	15
Figure 1.8:	Modélisation du potentiel d'une boîte quantique: structure semi-hémisphérique d'InAs posée sur une couche de mouillage d'InAs, le tout étant entouré de GaAs <sup>7</sup> . ....	16
Figure 1.9:	Spectre de photoluminescence à haute résolution d'une boîte quantique unique d'InAs/GaAs <sup>9</sup> . ....	20
Figure 1.10:	Spectres de photoluminescence de BQs d'InGaAs obtenus en excitant soit environ une centaine de BQs (micro-PL) soit environ $10^6$ BQs (macro-PL) <sup>50</sup> . ....	24
Figure 1.11:	Spectres de photoluminescence de BQs d'InAs/GaAs à forte densité d'excitation (A) et pour différentes densités d'excitation (B), pour une seule couche de BQs (A) et pour un empilement de 50 couches de BQs (B) <sup>28</sup> . ....	25
Figure 1.12:	Spectres de photoluminescence à différents taux d'occupation d'un ensemble de BQs auto-assemblées d'InAs/GaAs <sup>67</sup> . ....	27
Figure 1.13:	Spectres de photoluminescence obtenus pour une BQ unique d'InGaAs à différentes puissance d'excitation (de bas en haut: 200nW, 800nW, 2.9 $\mu$ W, 17 $\mu$ W, 310 $\mu$ W, 4.3mW) <sup>69</sup> . ....	28
Figure 1.14:	Spectres de micro-PL de BQs d'InAs obtenus à différentes intensités d'excitation <sup>73</sup> . ....	30
Figure 1.15:	Interdiffusion thermique de BQs ayant différents espaces interniveaux. (a) Spectres de PL montrant le remplissage des niveaux. (b) Différents échantillons interdiffusés dans les mêmes conditions. (c) BQs interdiffusées à différentes températures <sup>64</sup> . ....	33

Figure 1.16:	Principaux processus de relaxation de l'énergie des porteurs dans un système de boîtes quantiques .....	35
Figure 1.17:	Temps de décroissance du signal de PL résolu en temps pour chaque niveau d'énergie de BQs autoassemblées d'InGaAs/GaAs, à 4 K <sup>87</sup> .....	36
Figure 1.18:	Intensité de la photoluminescence en fonction de la température, pour des boîtes quantiques (QD) d'InGaAs/GaAs auto-assemblées comparée à un puits quantique (QW) de référence <sup>95</sup> .....	40
Figure 1.19:	Réduction du taux de relaxation du premier (ligne continue) et du deuxième (ligne pointillée) niveau excité calculé pour des BQs de GaAs/GaAlAs <sup>104</sup> .....	43
Figure 1.20:	Taux de relaxation électronique entre le premier état excité et le niveau fondamental, en fonction de l'énergie interniveaux <sup>107</sup> .....	43
Figure 1.21:	Spectres d'excitation de la photoluminescence obtenus à différentes énergies de détection (marquées par des croix). À l'intérieur, spectres de PL pour des excitations au maximum des résonances 1LO, 2LO et 3LO et au dessus du gap du GaAs <sup>4</sup> .....	45
Figure 1.22:	Spectre de photoluminescence de BQs d'InAs excitées au dessus de la barrière de GaAs (1.959 eV) et au dessous (1.165 eV) <sup>114</sup> .....	46
Figure 1.23:	Dépendance en température des temps de montée de la PL à basse et forte excitation pour des BQs auto-assemblées d'InGaAs/GaAs <sup>94</sup> .....	48
Figure 1.24:	Temps de montée de la PL de BQs auto-assemblées d'InGaAs/GaAs en fonction de la densité d'excitation, à basse température <sup>94</sup> .....	49
Figure 1.25:	Intermittence du signal émis par des BQs d'InP/GaInP à différentes densités d'excitations <sup>128</sup> .....	54
Figure 1.26:	Effet de l'émission thermique de BQs d'AlInAs/AlGaAs auto-assemblées. (a) Spectres de PL mesurés. (b) Spectres de PL calculés (c) Temps de décroissance du signal de PL et (d) Taux d'émission thermique des BQs à différentes énergies <sup>132</sup> .....	56
Figure 1.27:	Temps de décroissance du signal de PL de BQs auto-assemblées d'InAs/GaAs en fonction de la température sous excitation dans la couche de mouillage. La longueur d'onde d'émission se décale vers le rouge avec la température comme l'énergie de la bande interdite <sup>133</sup> .....	57
Figure 2.1:	Image obtenue par AFM pour une couche de BQs d'InGaAs (100) de surface réalisée dans les mêmes conditions que les couches enterrées <sup>18</sup> .....	63
Figure 2.2:	Image de BQs d'InGaAs (311)B obtenue par microscopie électronique à transmission en champ sombre. <sup>85</sup> .....	63
Figure 2.3:	Observation par TEM de BQs d'InAs fabriquées par MBE.....	64
Figure 2.4:	Schéma du montage pour la caractérisation par photoluminescence par excitation continue. ....	66
Figure 2.5:	Schéma du montage de photoluminescence résolue dans le temps.....	67
Figure 2.6:	Principe de "conversion des fréquences vers le haut" et de convolution de deux signaux.....	69

Figure 2.7:	Spectres de photoluminescence résolue dans le temps pour des échantillons d'InGaAs/GaAs (311)B.....	71
Figure 2.8:	Spectres de photoluminescence résolue dans le temps obtenus pour un échantillon à une seule couche de boîtes quantiques d'InAs/GaAs recuit (15s à 900°C) ou non.....	72
Figure 2.9:	Spectres de photoluminescence résolue dans le temps pour l'échantillon de BQs d'InAs/GaAs multicouches non recuit, obtenus à différents délais après l'excitation (a) et à différentes densités d'excitation (b).....	73
Figure 2.10:	Spectres de photoluminescence pour des boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs (100) après différentes durées de recuit à 900°C.....	74
Figure 2.11:	Spectres de photoluminescence continue pour des échantillons contenant 25 couches superposées (a) et une seule couche (b) de boîtes quantiques d'InAs/GaAs. Les conditions de recuit (température et durée) sont indiquées pour chaque spectre.....	76
Figure 2.12:	Position énergétique des principales transitions optiques observées en PL sur la figure précédente en fonction des conditions de recuit, pour l'échantillon de 25 couches (a) et l'échantillon à une seule couche de boîtes d'InAs/GaAs (b). .....	77
Figure 2.13:	Schémas représentant deux transitions optiques possibles $E_1$ et $E_2$ dans un potentiel de confinement quantique avant et après interdiffusion.....	78
Figure 2.14:	Largeur à mi-hauteur des pics de PL observés sur la Figure 2.11 en fonction de l'énergie moyenne de la transition correspondante pour l'échantillon à une seule couche (a) et celui à 25 couches (b) de boîtes quantiques. Tous les pics résolus ( $n=1, n=2, n=3, n=4$ et CM) de tous les spectres sont pris en compte. ....	80
Figure 2.15:	Influence des défauts introduits lors des recuits: spectres obtenus avant recuit, avec et sans dépôt de $\text{SiO}_2$ (partie supérieure) et spectres dont l'énergie des transitions est assez semblable ayant été obtenus par différentes conditions de recuits pour les échantillons multicouches.....	81
Figure 2.16:	Largeur des pics de PL des niveaux de plus basse énergie pour l'échantillon multicouches non recuit (a) et recuit 30s à 840°C, $\text{SrF}_2$ (b), en fonction de la température de l'échantillon.....	82
Figure 2.17:	Spectres de photoluminescence obtenus pour l'échantillon non-recuit à couche unique pour différentes densités d'excitation: 0.18, 0.9, 1.8, 6, 18, 60 et 180 $\text{W}/\text{cm}^2$ de bas en haut, à $T=15$ K, $E_{\text{exc}}=2.41$ eV.....	83
Figure 2.18:	Profils de potentiel effectif pour une boîte quantique non recuite ( $L_d=0$ ) entière ( $h=2.93$ nm) ou tronquée ( $h=1.96$ nm), et une boîte fortement recuite ( $L_d=2$ nm). Les autres paramètres fixes sont $\text{In}=100\%$ , $d=24$ nm et $h/d=1.222$ . ....	85
Figure 2.19:	Fonctions d'onde au carré pour le premier et le troisième niveau d'énergie confiné dans des boîtes de 11 nm de rayon. Les fonctions d'onde présentées correspondent à l'échantillon non recuit ( $L_d = 0$ ) et fortement recuit ( $L_d = 2$ nm), et avec une hauteur tronquée ( $h = 2.2$ nm), avec les paramètres de référence: $d = 22$ nm et $\text{In} = 100\%$ .....	86
Figure 2.20:	Variations en énergie des trois ou quatre premiers niveaux dues à des fluctuations de la hauteur des boîtes. Les différences en énergie sont calculées à partir des	

	valeurs obtenues pour $h = 2.2$ nm et $h = 2.69$ nm, avec les paramètres constants $d = 22$ nm et $I_n = 100$ %. Les calculs sont effectués pour différentes longueurs de diffusion de $L_d = 0$ à $L_d = 2.5$ nm.....	91
Figure 2.21:	Aire sous les pics de PL continue pour les échantillons de 25 couches recuits ou non recuit, pour cinq niveaux du système. ....	93
Figure 2.22:	Surface des pics de PL continue des premiers niveaux du système, en fonction de la température de l'échantillon de 25 couches recuit 30 s à 840°C, SrF <sub>2</sub> (a) ou non recuit (b). ....	94
Figure 2.23:	Intensité PL de la transition associée à la couche de mouillage en fonction de la température des l'échantillons de 25 couches non recuit ( $E_{CM}-E_{n=1}=176$ meV), peu recuit (30 s à 720°C, SiO <sub>2</sub> , $E_{CM}-E_{n=1}=96$ meV) et très recuit (30 s à 880°C, SiO <sub>2</sub> , $E_{CM}-E_{n=1}=25$ meV) .....	95
Figure 2.24:	Variation de l'intensité de l'émission de PL sous excitation continue, en fonction de la puissance d'excitation, pour les niveaux 0D d'un échantillon non recuit à une seule couche de boîtes ( $E_{CM}-E_{n=1}=284$ meV) et d'un échantillon multicouche recuit (30 s à 830°C, SiO <sub>2</sub> , $E_{CM}-E_{n=1}=40$ meV). ....	96
Figure 2.25:	Largeur à mi-hauteur des pics de PL de l'échantillon de 25 couches recuit (30s à 820°C, SiO <sub>2</sub> , $E_{CM}-E_{n=1}=37$ meV) en fonction de la densité d'excitation. ....	97
Figure 2.26:	Évolution des populations de porteurs dans le système de boîtes quantiques à court temps par photoluminescence résolue dans le temps, à 80 K. Les transitions correspondant à la couche de GaAs, à la couche de mouillage (CM) et au niveau fondamental ( $n=1$ ) sont représentées, pour un échantillon multicouche non recuit.	98
Figure 2.27:	Distribution initiale des photoporteurs dans le GaAs, en considérant un matériau homogène de coefficient d'absorption $0.004$ nm <sup>-1</sup> , $T=20$ K, $E=2$ eV. ....	100
Figure 2.28:	Cinétique de photoluminescence correspondant au signal émis par le GaAs, à différentes densités d'excitation, pour l'échantillon multicouches non recuit. ....	100
Figure 2.29:	Temps de décroissance du signal de la PL de la transition du GaAs, pour des échantillons multicouches ayant différentes énergies interniveaux ( $E_{n=2}-E_{n=1}$ ). ..	101
Figure 2.30:	Temps de décroissance du signal de PL pour la couche de mouillage, en fonction de l'énergie interniveaux $E_{n=2} - E_{n=1}$ , pour les échantillons multicouches. ....	103
Figure 2.31:	Signal de PL de la couche de mouillage en fonction de la température et de la puissance d'excitation: cinétiques (a) et temps de décroissance (b) à deux températures différentes, pour l'échantillon multicouches non recuit. ....	105
Figure 2.32:	Temps de décroissance du signal de PL de la couche de mouillage pour l'échantillon multicouches recuit (30 s à 880°C, SiO <sub>2</sub> , $E_{CM}-E_{n=1}=25$ meV) et non recuit ( $E_{CM}-E_{n=1}=176$ meV), en fonction de la température. ....	106
Figure 2.33:	Temps de montée de PL pour différents niveaux en fonction de la température de l'échantillon multicouches non recuit. ....	108
Figure 2.34:	Temps de montée de PL pour différents niveaux de l'échantillon très recuit (30 s à 880°C, SiO <sub>2</sub> , $E_{CM}-E_{n=1}=25$ meV), en fonction de la température. ....	110

Figure 2.35:	Temps de montée de la PL des niveaux de plus basse énergie en fonction de la puissance d'excitation, pour l'échantillon multicouches non-recuit. ....	112
Figure 2.36:	Temps de décroissance de la PL des niveaux confinés de plus basse énergie en fonction de la puissance d'excitation, pour l'échantillon multicouches non-recuit. ....	113
Figure 2.37:	Temps de décroissance de la PL en fonction de la température pour les différents niveaux de l'échantillon multicouches recuit 30 s à 880°C, SiO <sub>2</sub> , E <sub>CM</sub> -E <sub>n=1</sub> =25 meV (a) et non recuit (b). À cette densité d'excitation, le temps de décroissance du niveau fondamental de l'échantillon non recuit est supérieur à 2 ns à basse température. ....	114
Figure 2.38:	Temps de montée de la PL du niveau fondamental (n=1) en fonction de l'énergie entre deux transitions successives, pour les échantillons multicouches. ....	116
Figure 2.39:	Temps de montée de la PL du niveau fondamental (n=1) en fonction de l'énergie entre deux transitions successives, pour les échantillons multicouches. ....	117
Figure 2.40:	Temps de montée de la PL en fonction de la température pour le niveau fondamental (n=1) d'échantillons multicouches d'InAs/GaAs recuits ou non, à une densité d'excitation de 2 W/cm <sup>2</sup> (a), et de 20 W/cm <sup>2</sup> (b), E <sub>exc</sub> =1.67 eV. ....	118
Figure 2.41:	Temps de montée du signal de PL en fonction de la température, pour des échantillons de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs recuites ou non à 830°C. ....	120
Figure 2.42:	Modélisation des processus multiphononiques. Les données expérimentales correspondent au temps de montée de la PL du niveau fondamental en fonction de la température, pour l'échantillon recuit 30s à 880°C, SiO <sub>2</sub> , E <sub>CM</sub> -E <sub>n=1</sub> =25 meV. ....	122
Figure 2.43:	Temps de montée de la PL pour le niveau fondamental d'échantillons multicouches recuits ou non en fonction de la densité d'excitation. ....	123
Figure 2.44:	Temps de décroissance du niveau fondamental (n=1 ou s) pour des échantillons multicouches recuits ou non, en fonction de la séparation interniveaux. ....	124
Figure 2.45:	Temps de décroissance du niveau fondamental de l'échantillon multicouches non-recuit en fonction de la densité d'excitation. ....	125
Figure 2.46:	Temps de décroissance du niveau fondamental (niveau s) en fonction de la température pour différents échantillons multicouches recuits ou non, à une densité d'excitation de 2 W/cm <sup>2</sup> (a), et de 20 W/cm <sup>2</sup> (b), E <sub>exc</sub> =1.67 eV. ....	127
Figure 2.47:	Temps de décroissance de la PL en fonction de la température pour un échantillon de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs (100) non recuit et recuit à 830 °C pour différentes durées (30s, 1mn 30s, 2mn 30s). ....	128
Figure 3.1:	Évolution temporelle de la luminescence des différents états d'une BQ de confinement latéral $\hbar\omega_e = 6$ meV (a) et $\hbar\omega_e = 2$ meV (b). On considère initialement 50 excitons et $k_B T = 4$ meV. La température du réseau est 10 K. On considère la diffusion par phonons LA, la recombinaison radiative et non radiative ( $2 \times 10^9$ s <sup>-1</sup> ) et le blocage de Pauli <sup>119</sup> ....	135
Figure 3.2:	(a) Spectres de photoluminescence résolue en temps pour les quatre niveaux de plus faible énergie des BQs et pour le puits quantique à forte excitation. (b) Calcul du nombre moyen de porteurs des quatre premiers niveaux des BQs avec $\tau^{ph} = 570$	

	ps et $\tau^A = 1$ ps. (c) Calculs avec les mêmes paramètres mais en négligeant la diffusion de Coulomb. (d) Mêmes calculs que précédemment mais en négligeant les effets de remplissage <sup>92</sup> . . . . .	138
Figure 3.3:	Schéma représentant les processus de relaxation (temps caractéristique $\tau^l$ ) et de recombinaison (temps caractéristique $\tau^r$ ) possibles entre les différents états d'un système à deux niveaux qui sont soit remplis (1), soit non-remplis (0). Ces processus sont pris en compte dans le modèle des micro-états <sup>145</sup> . . . . .	140
Figure 3.4:	Schéma des canaux de relaxation et de recombinaison possibles en considérant deux états. On distingue quatre cas selon la distribution initiale de porteurs (A, B, C et D). Toutes les combinaisons de relaxation et/ou recombinaison sont indiquées de A1 à C1. $\tau_r$ et $\tau_{rel}$ sont respectivement les temps de recombinaison et de relaxation des porteurs <sup>89</sup> . . . . .	142
Figure 3.5:	Courbe de décroissance du nombre de porteurs calculée pour l'état excité. La forte pente est due à la relaxation et la seconde plus lente à la recombinaison des porteurs <sup>146</sup> . . . . .	144
Figure 3.6:	Schéma représentant les différents niveaux d'énergie considérés dans les structures à boîtes quantiques. $ 1\rangle$ , $ 2\rangle$ , $ 3\rangle$ et $ 4\rangle$ sont confinés dans la boîte, $ 5\rangle$ dans la couche de mouillage, $ 6\rangle$ et $ 7\rangle$ dans le GaAs . . . . .	146
Figure 3.7:	Schéma montrant une distribution planaire inhomogène des photo-porteurs et l'absorption inhomogène de ces porteurs dans la profondeur de l'échantillon. ....	147
Figure 3.8:	Distribution de Poisson du nombre de boîtes $m$ en fonction du nombre de porteurs $n$ . La distribution est centrée autour du nombre de porteurs moyen $n_o$ . . . . .	150
Figure 3.9:	Distribution gaussienne du nombre de boîtes quantiques $m$ en fonction du nombre de porteurs $n$ . La distribution est centrée autour du nombre moyen $n_o$ et la largeur à mi-hauteur est $FWHM$ . . . . .	151
Figure 3.10:	Distribution exponentielle du nombre de porteurs dans les BQs en fonction de la distance $z$ . . . . .	151
Figure 3.11:	Processus typiques de capture (a) et de relaxation interniveaux (b) faisant intervenir des phonons. . . . .	155
Figure 3.12:	Processus typiques de capture (a), de relaxation interniveaux avec un porteur dans la couche de mouillage (b) ou les deux porteurs confinés (c), et de recombinaison (d) dus à des collisions entre porteurs (mécanismes Auger). . . . .	155
Figure 3.13:	Processus Auger possibles entre deux porteurs de même niveau quantique, dans une boîte à quatre niveaux quantiques distincts et équidistants. . . . .	156
Figure 3.14:	Distribution gaussienne du nombre de porteurs dans l'ensemble des BQs. Les courbes correspondent à différentes largeurs de la gaussienne (FWHM) exprimées en fonction du nombre moyen de porteurs par BQ (20 porteurs ici). Le nombre total de BQ est normalisé dans tous les cas. . . . .	160
Figure 3.15:	Distribution exponentielle du nombre de porteurs dans l'ensemble des BQs représentant une distribution inhomogène des porteurs selon l'axe de croissance de	

	l'échantillon (d'une couche de BQs à l'autre). Les courbes correspondent à différents coefficients d'absorption.....	160
Figure 3.16:	Organigramme décrivant les étapes nécessaires aux calculs pour déterminer l'évolution de la population de chaque niveau du système, si on tient compte d'une distribution initiale gaussienne a) ou d'une distribution initiale exponentielle b) des porteurs. ....	162
Figure 3.17:	Schéma présentant des mécanismes de transport des porteurs dans des structures à boîtes quantiques .....	168
Figure 3.18:	Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux ( <i>s</i> , <i>p</i> , <i>d</i> , <i>f</i> et <i>CM</i> ) du système. On considère un temps de transport dans le GaAs (diffusion) et l'InAs extrêmement rapide.....	169
Figure 3.19:	Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère un temps de transport de 40 ps dans le GaAs, et extrêmement rapide dans l'InAs. ....	170
Figure 3.20:	Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère un temps de transport dans le GaAs et l'InAs de 40 ps et 400 ps respectivement, $n_o=20$ porteurs.....	171
Figure 3.21:	Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs et la relaxation seulement vers le niveau d'énergie immédiatement inférieur.....	172
Figure 3.22:	Évolution à long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs de la couche de mouillage et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.....	173
Figure 3.23:	Évolution à court temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs de la couche de mouillage et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.....	173
Figure 3.24:	Évolution à long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs du GaAs et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.....	174
Figure 3.25:	Évolution à court temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs du GaAs et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.....	175
Figure 3.26:	Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger intervenant durant la capture de la couche de mouillage vers chaque niveau confiné. ....	177
Figure 3.27:	Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger durant la capture et la relaxation interniveaux par l'interaction de porteurs 0-D et 2-D. ....	179
Figure 3.28:	Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger durant la capture et la relaxation interniveaux par l'interaction de porteurs confinés au même niveau. ....	180

Figure 3.29:	Évolution à court temps et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger durant la capture et la recombinaison. ....	182
Figure 3.30:	Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système, pour une distribution initiale de Poisson des porteurs. ....	184
Figure 3.31:	Évolution à court temps et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système, pour une distribution initiale Gaussienne des porteurs dans les BQs de largeur $FWHM = n_o$ . ....	185
Figure 3.32:	Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système, pour une distribution exponentielle des porteurs dans les BQs (coefficient d'absorption $\alpha = 0.004 \text{ nm}^{-1}$ ). ....	187
Figure 3.33:	Comparaison entre les données expérimentales à $20 \text{ W/cm}^2$ (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène (ligne continue). Les figures montrent l'évolution à long temps des trois premiers niveaux, $s$ , $p$ et $d$ en (a), et des niveaux $f$ et $CM$ en (b). ....	190
Figure 3.34:	Comparaison entre les données expérimentales à $20 \text{ W/cm}^2$ (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène (ligne continue). Évolution à court temps des quatre niveaux confinés dans les boîtes: $s$ , $p$ , $d$ et $f$ . ....	190
Figure 3.35:	Comparaison à long temps entre les données expérimentales à $20 \text{ W/cm}^2$ (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution gaussienne (ligne continue). Les figures montrent l'évolution des trois premiers niveaux, $s$ , $p$ et $d$ en (a), et des niveaux $f$ et $CM$ en (b). La largeur de la distribution est $FWHM = 0.5 n_o$ . ....	192
Figure 3.36:	Comparaison à court temps entre les données expérimentales à $20 \text{ W/cm}^2$ (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution gaussienne (ligne continue). Évolution des quatre niveaux confinés dans les boîtes: $s$ , $p$ , $d$ et $f$ . La largeur de la distribution est $FWHM = 0.5 n_o$ . ....	192
Figure 3.37:	Comparaison entre les données expérimentales à basse excitation ( $4 \text{ W/cm}^2$ ) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène. Les figures montrent l'évolution des deux premiers niveaux (a), ainsi que l'évolution du niveau $d$ et celui de la couche de mouillage (b). ....	194
Figure 3.38:	Comparaison entre les données expérimentales à basse excitation ( $4 \text{ W/cm}^2$ ) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution inhomogène (gaussienne). La largeur de la gaussienne est $FWHM=0.5 n_o$ . Les figures montrent l'évolution des deux premiers niveaux (a), ainsi que l'évolution des niveaux $d$ et de la couche de mouillage (b). ....	195
Figure 3.39:	Comparaison entre les données expérimentales à haute température (90 K) et forte excitation ( $20 \text{ W/cm}^2$ ), et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène. Les figures montrent l'évolution des deux premiers niveaux (a), ainsi que l'évolution des niveaux $d$ et $f$ (b). ....	197

Figure 4.1:	Schémas récapitulatifs décrivant la rapidité de la capture via le transport dans les barrières (a), la rapidité de la capture/relaxation multiphononique (b), la rapidité de la capture/relaxation Auger (c), et l'importance de la ré-émission thermique (d), en fonction de la puissance d'excitation $P_{exc}$ , de la séparation interniveaux $\Delta E$ , et de la température $T$ .....	203
Figure 4.2:	Schéma récapitulatif décrivant la rapidité globale de la capture et la relaxation interniveaux, en fonction de la puissance d'excitation $P_{exc}$ , de la séparation interniveaux $\Delta E$ , et de la température $T$ .....	204
Figure 4.4:	Schéma récapitulatif décrivant l'intensité lumineuse globale (caractérisée par l'émission de photons), en fonction de la densité d'excitation $P_{exc}$ , de la séparation interniveaux $\Delta E$ , et de la température $T$ .....	205

# Liste des tableaux

Tableau 2.1:	Énergie des niveaux électroniques en fonction des paramètres de simulation (diamètre $d$ , hauteur $h$ et concentration en Indium $In$ ), avant ( $L_d = 0$ ) et après ( $L_d = 2$ nm) interdiffusion.....	87
Tableau 2.2:	Variation en énergie des premiers niveaux électroniques suite à des variations des paramètres structuraux (diamètre $d$ , volume, hauteur $h$ et concentration en Indium), avant ( $L_d = 0$ ) et après ( $L_d = 2$ nm) interdiffusion.....	89
Tableau 3.1:	Tableau récapitulatif regroupant les différents paramètres utilisés lors des simulations réalisées pour étudier le rôle des principaux mécanismes de relaxation.....	166
Tableau 3.2:	Tableau récapitulatif regroupant les paramètres utilisés lors des simulations effectuées pour étudier le rôle de la distribution spatiale initiale des porteurs....	167
Tableau 3.3:	Tableau récapitulatif regroupant les paramètres utilisés lors de la modélisation des données expérimentales.....	168
Tableau 4.1:	Tableau récapitulatif présentant les effets dus aux principaux mécanismes de capture/relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques. ....	199
Tableau 4.2:	Tableau récapitulatif présentant les effets dus à différents mécanismes pouvant affecter la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques. ....	200

# Introduction

## *Historique*

Il y a plusieurs dizaines d'années, les semi-conducteurs sont apparus comme des matériaux aux propriétés exceptionnelles. Depuis, leur usage s'est très largement développé: ces matériaux sont utilisés comme support électronique dans de nombreux appareils que l'on retrouve partout dans notre vie quotidienne (radio, cellulaires, ordinateurs...). Ils ont permis le développement de l'opto-électronique, cette branche de l'électronique basée sur les interactions lumière-matière. Cette discipline s'intéresse à la conversion de l'électricité en lumière, ou vice-versa (lasers ou détecteurs). Certains dispositifs opto-électroniques peuvent même tirer avantage du transport d'informations à la vitesse de la lumière. L'opto-électronique connaît actuellement un essor spectaculaire, comme en témoigne le succès de l'industrie des télécommunications.

De plus, grâce à l'avancement technologique, il est possible de miniaturiser de plus en plus les composants électroniques en fabriquant des structures extrêmement petites: la microélectronique devient maintenant nano-électronique. Ainsi, il devient possible d'observer, à partir de certaines dimensions critiques des structures, que les lois de mécanique classique ne s'appliquent plus, car des effets quantiques comparables aux propriétés des atomes apparaissent (densité d'états discrète, énergie des particules quantifiée...). Alors, un des rêves des physiciens pourrait se réaliser: pouvoir contrôler parfaitement le transport et la localisation d'un électron unique. Le fait "d'enfermer" un électron dans une "boîte", de manière réversible, permettrait de modifier l'état du système à volonté. De nombreuses applications seraient alors possibles comme le transistor à un électron ou l'ordinateur quantique. Mais, après avoir imaginé ces structures

idéales aux effets quantiques "contrôlables", il restait bien sûr à leur donner vie, à les concrétiser. Et cela n'a rien de trivial de fabriquer des structures de bonne qualité de taille aussi réduite.

Il y a une dizaine d'années, les premières boîtes quantiques (appelées aussi points quantiques) étaient seulement des défauts d'interface dans des puits quantiques. Elles étaient formées durant le processus de croissance épitaxiale, par des fluctuations de potentiel dues à la rugosité (à l'échelle d'une monocouche) à l'interface d'un puits quantique étroit<sup>1</sup>. Mais la distribution de taille de ces structures pouvait être très importante. En outre, les paramètres de fabrication n'étaient pas maîtrisés. Puis de nouvelles techniques de micro usinage ont été développées pour réduire la taille de matériaux volumiques existants. Mais la qualité des structures ainsi obtenues est généralement très dépendante du processus de fabrication. Les effets quantiques peuvent même être masqués par d'autres effets (dus aux défauts d'interface...).

Finalement, des nanostructures ont pu être fabriquées par un processus particulier de croissance de matériaux appelé auto-assemblage. Cette technique, basée sur l'apparition d'un champ de contrainte lors du dépôt d'un matériau dont le paramètre de maille est sensiblement plus grand que celui du substrat, permet la formation d'un très grand nombre de petits îlots semblables. Cette technique a été optimisée et paraît la plus prometteuse aujourd'hui car elle permet un bon contrôle de tous les paramètres structuraux des boîtes quantiques. Ce sont maintenant des structures distinctes, exemptes de défauts, qui sont clairement observables avec un microscope électronique. Grâce à la maîtrise du processus de fabrication, les propriétés intrinsèques des boîtes peuvent être étudiées, ce qui pourra permettre de développer de nouvelles classes de dispositifs à effet quantique. La fabrication de boîtes quantiques auto-assemblées correspond à un changement technologique important, car elle est basée non plus sur la réduction de la taille d'un matériau volumique mais bien sur la construction d'amas d'atomes.

Ainsi, grâce au progrès technologique, il est devenu possible de réduire davantage les dimensions et la dimensionalité des structures. Des matériaux de grande qualité dont les caractéristiques sont parfaitement contrôlées peuvent maintenant être fabriquées. Les dimensions des structures peuvent être réduites jusqu'à atteindre quelques nanomètres, ce qui permet d'étudier et de tirer profit des effets quantiques.

## *Contexte actuel*

Le principe de base motivant l'immense intérêt soulevé par les boîtes quantiques repose sur la réduction de dimensionalité. En effet, lorsqu'on réduit les dimensions d'un matériau semi-conducteur, sa structure de bande électronique est modifiée. La densité d'états, qui est continue dans les matériaux volumiques 3D, devient discrète en 0D. Le confinement tridimensionnel des porteurs dans les boîtes quantiques se traduit par une quantification des états, semblable à celle des atomes. C'est pour cette raison que les boîtes quantiques sont aussi appelées "atomes artificiels". Ainsi, lorsqu'on réduit fortement la taille des structures quantiques, il devient possible de piéger un petit nombre d'électrons (quelques dizaines, généralement), en choisissant les matériaux semi-conducteurs de façon appropriée.

L'énorme avantage de ces nanostructures repose sur le fait que, contrairement aux atomes, il est possible de les façonner de manière à modifier leurs propriétés optiques et électroniques. L'étude des effets quantiques dans ces structures, pourtant relativement grandes par rapport à la taille de l'atome (ordre de grandeur mille fois supérieur), présente donc un grand intérêt tant au niveau fondamental qu'expérimental.

Depuis l'avènement des lasers émettant des impulsions ultracourtes (de l'ordre de la picoseconde ou de la femtoseconde), il est possible d'étudier précisément les phénomènes ultrarapides qui se produisent dans ces structures semi-conductrices. Il est donc possible de suivre l'évolution des populations de porteurs dans les différents niveaux d'énergie, et de mieux comprendre l'effet des interactions entre particules, ainsi que les mécanismes de relaxation de l'énergie mis en cause. La dynamique des porteurs dans des structures volumiques (3D) et dans les puits quantiques (2D) est relativement bien connue, mais de nombreuses controverses persistent encore sur les processus de relaxation dominants en 0D. L'étude des propriétés optiques des boîtes quantiques peut être mise en œuvre par de nombreuses expériences de photoluminescence par excitation continue et par excitation pulsée.

## *Intérêt fondamental et technologique*

D'abord, au niveau fondamental, l'étude de ces "atomes artificiels" ouvre un nouveau et excitant domaine pour l'étude de porteurs de charge (électrons et trous) confinés en 0D. Contrairement aux molécules et atomes réels, dans les boîtes quantiques, on observe une propriété spécifique qui est la formation de complexes multi-excitoniques<sup>2</sup>. L'étude des propriétés optiques de ces structures permettrait de mieux comprendre l'effet du confinement quantique sur les diverses interactions entre particules dans ce système 0D. Ainsi, les effets à N-corps dus aux interactions entre un petit nombre d'électrons et de trous confinés dans les boîtes, peuvent être directement observés sur le spectre optique.

Sur le plan technologique, depuis le règne de la microélectronique et de l'informatique dans notre vie quotidienne, tous les efforts sont portés sur la miniaturisation des composants, afin d'optimiser toujours davantage la puissance et la vitesse des systèmes électroniques. De grands progrès technologiques ont déjà permis de réduire fortement la taille des structures utilisées pour les composants. Si on réduit davantage les dimensions de ces structures, la théorie et les expériences montrent que les effets quantiques observés pourraient encore améliorer les performances des dispositifs optoélectroniques. C'est la principale raison qui a incité les chercheurs à développer ces nouveaux matériaux. L'étude de leurs propriétés optiques est donc d'un intérêt capital pour déterminer l'efficacité des futurs dispositifs optoélectroniques.

Dans les nanostructures 0D, la densité d'états est discrète et le nombre d'états est très limité, ce qui permet de saturer les niveaux d'énergie rapidement. Cet effet a une importante conséquence pour les lasers: l'inversion de population nécessaire au fonctionnement des lasers peut ainsi se produire plus aisément en nécessitant moins d'énergie. Mais il faut naturellement que les propriétés structurelles des boîtes (espace interniveaux, ...) soit appropriées<sup>3</sup>. Il faut aussi que le temps de relaxation des porteurs ne limite pas la capacité haute fréquence de l'émission laser<sup>4</sup> et que les interactions porteurs-photons soient importantes. En particulier, les structures multicouches présentent un grand intérêt pour les lasers à boîtes quantiques du fait de la grande densité de boîtes par unité de volume<sup>3,5,6</sup>.

Les détecteurs infrarouges à boîtes quantiques sont plus intéressants que ceux basés sur des puits quantiques, car ils présentent une réponse dans une large gamme de longueurs d'onde, et contrairement à ces derniers, la détection est possible à incidence normale, à cause des règles

de sélection découlant de la géométrie particulière des boîtes<sup>7</sup>. Les lasers et détecteurs infrarouges sont généralement basés sur les transitions interniveaux. La gamme de longueurs d'onde utile des dispositifs optiques peut généralement être ajustée en choisissant des matériaux appropriés lors de la fabrication des boîtes.

Les effets non-linéaires résonants peuvent être très importants dans ces structures, à cause de la forme particulière de la densité d'états 0D<sup>8</sup>. Ces effets peuvent être intéressants pour un certain nombre d'applications, comme la génération de seconde harmonique.

D'autres applications pourraient être développées dans la mesure où l'on arrive à mieux contrôler l'organisation et la taille des boîtes quantiques. On peut imaginer divers types de dispositifs basés sur le couplage électronique entre boîtes. La densité de stockage serait très importante grâce à la grande densité de boîtes quantiques<sup>7</sup>. Ainsi, il serait possible de développer des dispositifs de commutation ou de traitement quantique, des systèmes de mémoire optique, des réseaux de photo-détecteurs...

## *Objectifs de l'étude*

Puisqu'on peut maintenant fabriquer des boîtes quantiques de bonne qualité, il est indispensable d'étudier leurs propriétés afin d'optimiser encore les paramètres de fabrication, l'adéquation et l'implantation dans des dispositifs optoélectroniques existants, et développer de nouvelles applications. L'objet de ce travail est donc d'étudier les propriétés optiques des boîtes quantiques et, en particulier, les mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs: les identifier, comprendre leur rôle, et déterminer leur importance relative, ainsi que les effets qu'ils produisent. On tentera de présenter de façon claire et précise les connaissances établies pour les matériaux à boîtes quantiques, en essayant d'éclaircir les principaux points controversés.

Cette thèse comporte un premier chapitre qui permet, d'une part, de faire le point sur les connaissances actuelles sur les boîtes quantiques, au niveau expérimental et théorique, et d'autre part, de décrire et d'expliquer les notions de bases nécessaires à la compréhension du travail effectué dans le cadre de cette thèse. En particulier, les principaux mécanismes de relaxation sont développés, ainsi que les caractéristiques liées aux structures 0D et susceptibles d'influencer la dynamique des porteurs (fabrication, propriétés structurelles et optiques).

Le deuxième chapitre consiste en une description et une analyse des résultats expérimentaux obtenus par photoluminescence. D'abord, nous tenterons d'expliquer l'origine de la largeur inhomogène des raies de PL. Ensuite, nous présenterons une étude systématique des propriétés optiques et de la dynamique (relaxation/transport) des porteurs dans le système étudié (boîtes quantiques et couches barrières), en fonction de différents paramètres structuraux (espace interniveaux) et expérimentaux (température, conditions d'excitation).

Enfin, dans le dernier chapitre, nous présenterons une série de simulations montrant l'évolution temporelle de la population de porteurs dans les différents niveaux des boîtes quantiques, en tenant compte de différents mécanismes de relaxation et de transport des porteurs, ainsi que de la distribution initiale des porteurs dans les boîtes. Nous discuterons de l'importance relative probable des différents processus et nous modéliserons plusieurs jeux de cinétiques obtenus expérimentalement sous différentes conditions.

# Chapitre 1 Généralités sur les boîtes quantiques

## *1.1 Preamble*

De nombreuses études ont déjà été réalisées sur les boîtes quantiques (BQs), depuis environ dix ans, depuis qu'elles ont pu être concrétisées sous la forme de nanostructures. Étant donné la vaste littérature dans ce domaine, cette étude sera restreinte aux phénomènes susceptibles d'affecter les propriétés optiques. De plus, il faut noter que les connaissances dans ce domaine sont très récentes et, du fait des progrès technologiques, les articles les plus significatifs (notamment les études expérimentales) datent de trois ans tout au plus. Un certain nombre de points concernant la relaxation des porteurs sont encore très controversés et des études supplémentaires, en particulier pour la mesure des temps de relaxation, apparaissent nécessaires pour éclaircir ces points "sombres".

Les structures à boîtes quantiques sont basées sur un principe simple: pour confiner des porteurs en trois dimensions, il faut enfermer un volume très restreint d'un matériau de faible bande interdite dans un matériau de plus grande bande interdite. Les électrons et les trous sont ainsi piégés par un confinement tri-dimensionnel dans le matériau de plus faible bande interdite. Les porteurs de charge sont confinés dans toutes les directions, lorsque les dimensions des structures deviennent inférieures à environ 50 nm, selon les matériaux utilisés<sup>9</sup>. Les structures à

boîtes quantiques présentent des propriétés zéro-dimensionnelles (0D) qui se rapprochent de celles des atomes.

L'intérêt est de fabriquer un atome artificiel dont les propriétés peuvent être contrôlées avec une relativement grande latitude. Les propriétés optiques et électroniques vont toutefois être dépendantes à divers degrés des techniques de fabrication. Généralement, les paramètres de fabrication sont optimisés pour que les contraintes dans les BQs soient telles qu'il n'y ait pas formation de dislocations ou coalescence d'îlots<sup>10, 11</sup>. D'autre part, il est possible de manipuler les états d'énergie discrets des boîtes en modifiant physiquement le confinement des BQs<sup>12, 13</sup>.

Le but de ce chapitre est double: faire le point sur les connaissances établies jusqu'à présent sur le sujet, et introduire les notions nécessaires à l'analyse des résultats obtenus. Ce chapitre présente les principales propriétés optiques et structurales des boîtes quantiques, et plus particulièrement la dynamique des particules (électrons, trous, excitons) dans les boîtes. Étant donné le très grand nombre de publications dans ce domaine, nous présenterons un aperçu global, non exhaustif, des résultats les plus importants parus dans la littérature scientifique jusqu'en l'an 2000.

Des techniques très différentes et originales ont été mises au point pour fabriquer ces structures, et ainsi observer des effets quantiques. Des effets 0D ont effectivement pu être mis en évidence, ainsi que d'autres propriétés liées à la structure même des BQs. Les propriétés optiques observées s'avèrent très intéressantes, mais il devient indispensable d'approfondir la compréhension des mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs, en tenant compte des interactions entre les particules, puisque ces interactions semblent jouer un rôle primordial, probablement accentué par le confinement quantique 3D. Les techniques de spectroscopie optique permettent d'obtenir de nombreuses informations quant à la relaxation de l'énergie des porteurs dans les boîtes.

## ***1.2 Propriétés structurales et optiques des boîtes quantiques***

De nombreux efforts ont été investis afin de fabriquer, de manière simple et reproductible, des structures de petite taille (de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres), de très bonne qualité (les défauts ou dislocations endommageraient les propriétés optiques et électroniques), présentant une bonne homogénéité sur l'ensemble de l'échantillon, avec des matériaux habituellement utilisés en microélectronique. Deux approches ont donné des résultats intéressants, selon la manière d'aborder le problème: de "haut en bas", si on cherche à réduire la taille de la matière, et de "bas en haut", si on cherche à construire des amas ou de très grosses molécules à partir d'atomes. De nombreuses méthodes originales ont été proposées, mais seules les techniques les plus prometteuses sont décrites ici. La méthode la plus largement répandue et la mieux développée est la méthode de croissance par auto-assemblage de BQs.

### ***1.2.1 Croissance par auto-assemblage***

Cette technique s'est très largement développée depuis les premières observations de BQs se formant spontanément lors de la croissance de couches contraintes<sup>14, 15</sup>. Elle consiste à faire croître sur un substrat un matériau dont le paramètre de maille est sensiblement plus grand que celui du substrat (7.2 % pour le système InAs/GaAs). Après la croissance de quelques monocouches de matériau contraint, à une épaisseur dite critique, le mode de croissance d'abord bidimensionnel (ou planaire) devient tridimensionnel (type Stranski-Krastanow). Ainsi, il se forme de petits îlots dispersés sur la très fine couche 2D obtenue au début et appelée couche de mouillage. La formation d'îlots permet de minimiser les énergies de contraintes et de surface. Lorsqu'ils sont recouverts d'un matériau de plus grande bande interdite, ces îlots constituent des boîtes quantiques contraintes cohérentes, sans défauts structuraux. Les dimensions de ces boîtes quantiques sont typiquement de 10 à 25 nm de diamètre et de 4 à 10 nm de hauteur (Figure 1.1). La forme et la taille de ces BQs peut varier selon les conditions de croissance.

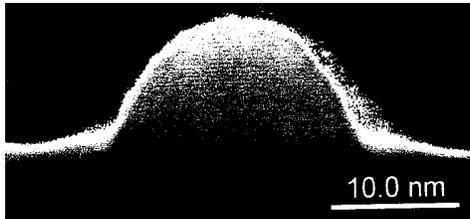


Figure 1.1: Image obtenue par TEM (microscope électronique en transmission) d'une BQ d'InAs/GaAs auto-assemblée fabriquée par MBE. Vue transversale d'une boîte en surface, non recouverte<sup>7</sup>.

Il est nécessaire de contrôler parfaitement les paramètres de fabrication pour optimiser les propriétés, la reproductibilité et l'homogénéité des échantillons. Des études effectuées notamment par Fafard *et al.* montrent que<sup>16</sup>:

- 1) La température du substrat joue un rôle important sur la taille des boîtes et l'énergie interniveaux;
- 2) La quantité de matériaux déposés permet de contrôler la densité de BQs et dans une certaine mesure l'homogénéité de la taille des boîtes.
- 3) L'interruption de la croissance, à une température donnée, permet aux boîtes d'atteindre leur forme d'équilibre. L'uniformité de la distribution des boîtes varie avec la durée de l'interruption.
- 4) Un traitement par "Indium-flush" pendant le processus de recouvrement des boîtes permet de changer la taille et la forme des BQs (troncature du sommet des BQs)

La croissance d'une couche préliminaire de BQs peut aussi permettre de contrôler la densité et la distribution de taille des BQs grâce aux champs de contraintes induits<sup>17</sup>.

La technique de croissance la plus courante est la méthode d'épitaxie par jets moléculaires (MBE). D'autres techniques ont aussi été utilisées avec succès comme l'épitaxie en phase vapeur (MOCVD). Pour cette technique, la morphologie de surface joue un grand rôle sur la taille et la densité des BQs. De plus, la croissance doit être effectuée à haute température pour briser les molécules. En principe, la croissance par MBE permettrait d'obtenir des BQs de plus petites tailles<sup>15</sup>.

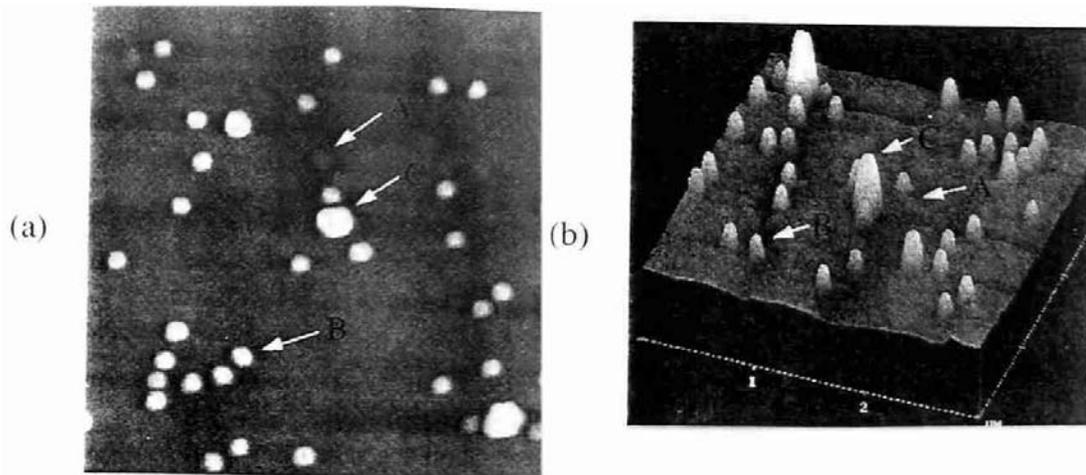


Figure 1.2: Image AFM de boîtes quantiques d'InP/InGaP fabriquées par MOCVD. (a) vue plane et (b) vue tri-dimensionnelle de la surface de l'échantillon<sup>15</sup>.

On peut varier la densité des BQs et le nombre de couches superposées de BQs afin d'étudier leurs propriétés optiques, électriques et structurales. Par exemple, l'étude des propriétés des BQs isolées est plus facilement réalisée pour une structure à couche unique présentant une faible densité de boîtes. En effet, l'excitation optique d'une boîte unique permet de s'affranchir de la variation des propriétés causée par la distribution de taille de l'ensemble des BQs. En revanche, une structure ayant une forte densité et un grand nombre de couches de BQs est privilégiée lorsqu'on cherche à augmenter la puissance de sortie d'une structure laser.

La longueur d'onde d'émission peut aussi être variée du proche infrarouge jusqu'à environ  $1.7 \mu\text{m}$ , en choisissant des matériaux et compositions appropriés pour les boîtes et barrières<sup>3,18</sup>.

Selon l'orientation du substrat et les conditions de fabrication, différentes formes de BQs peuvent être observées: forme de lentille, forme trapézoïdale, triangulaire ou pyramidale (Figure 1.3)<sup>5, 19-22</sup>. Ces différentes formes sont dues au fait que la forme d'équilibre thermodynamique des îlots évolue en fonction des paramètres de fabrication<sup>4, 22, 23</sup>. Certaines boîtes quantiques sont cohérentes, c'est-à-dire que l'énergie des contraintes associées à l'îlot est relaxée de façon élastique sans formation de dislocations, tandis que d'autres ne sont pas cohérentes. En effet, la présence de dislocations a été observée dans les plus grandes boîtes<sup>24</sup>.

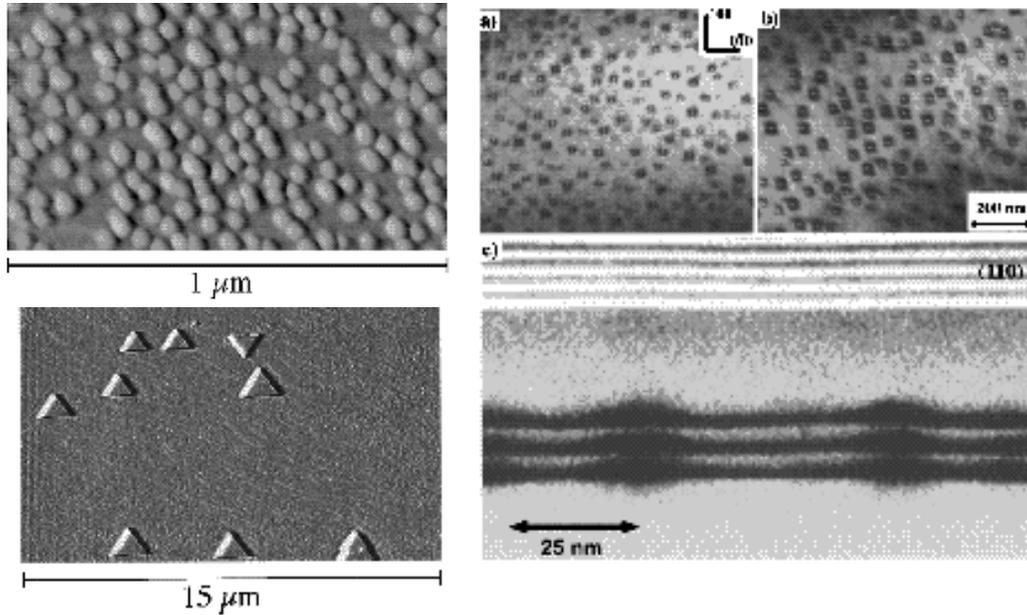


Figure 1.3: Observations par microscope électronique par transmission (TEM) de boîtes quantiques de différentes formes et tailles, et empilement de trois couches de BQs couplées<sup>24, 25</sup>.

Après la croissance, il est encore possible de modifier les propriétés des BQs par le processus d'interdiffusion qui consiste à mélanger les atomes de deux couches adjacentes par diffusion activée thermiquement<sup>13, 26-28</sup>. Le moyen le plus simple et le plus efficace de réaliser ceci est le recuit thermique rapide (RTA). Cette technique, que nous avons utilisée avec succès, est détaillée plus loin. L'interdiffusion permet notamment de modifier le potentiel de confinement (forme, composition et profondeur, voir Figure 1.4) et par conséquent les niveaux électroniques des BQs. Il a été montré clairement que les BQs gardent leur caractère 0D même après avoir été interdiffusées à haute température.

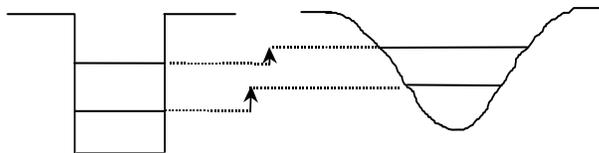


Figure 1.4: Schémas montrant la variation probable d'un potentiel de confinement typique de BQ, avant (à gauche) et après (à droite) interdiffusion.

Pour augmenter le signal émis par un échantillon de boîtes quantiques, la croissance de structures multicouches présente un grand intérêt. Des études montrent qu'une auto-organisation

verticale des îlots peut être observée, selon l'épaisseur de la couche située entre deux plans successifs de BQs. Les îlots enterrés contribuent au champ de contrainte de surface et favorisent la formation de BQs au dessus de la couche précédente<sup>5, 6, 29</sup>. Récemment, il a été montré que l'auto-organisation verticale peut même améliorer l'uniformité de taille et aussi de forme des BQs des couches supérieures<sup>30</sup>.

La technique de fabrication par formation spontanée d'îlots présente de nombreux avantages, ce qui explique sa popularité. Les intérêts principaux résident dans le contrôle précis des propriétés électroniques qu'elle permet, et dans l'absence de défauts profonds (centres de recombinaison non radiatifs). Les inconvénients majeurs concernent le manque d'homogénéité de l'ensemble des boîtes et leur répartition encore mal maîtrisée.

### ***1.2.2 Autres techniques de fabrication***

Une méthode intéressante pour créer un confinement tri-dimensionnel est la modulation latérale d'un puits quantique par des contraintes locales. Il suffit de déposer de petits îlots d'un matériau contraint sur la surface d'un échantillon contenant un puits quantique peu profond<sup>31</sup>. Les contraintes induisent une modulation des bandes de conduction et de valence du puits quantique, ce qui se traduit par l'apparition d'un confinement latéral bi-dimensionnel presque parabolique. La modulation de la bande interdite par les îlots de contrainte résulte donc en un confinement tri-dimensionnel des porteurs: des BQs se forment sous les îlots (Figure 1.5). Expérimentalement, on observe que le pic d'émission est décalé vers le rouge par environ 30 meV, ce qui correspond à la hauteur de la barrière de confinement induite par les contraintes. Cette faible valeur indique que les porteurs sont relativement peu confinés dans les boîtes. En revanche, la largeur du pic de photoluminescence est toujours étroite (d'environ 10 meV) et semblable au puits quantique original<sup>31</sup>.

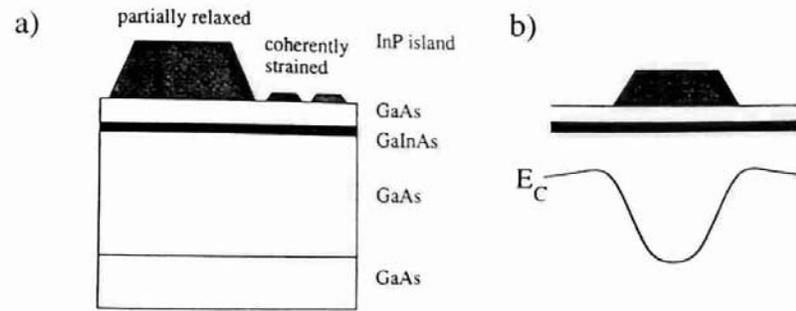


Figure 1.5: (a) Schéma d'une structure à BQ après croissance d'îlots d'InP à la surface qui créent des contraintes dans le puits de GaInAs. (b) Bande de conduction du puits de GaInAs modulé par les contraintes de l'îlot d'InP<sup>31</sup>.

Les principaux avantages de cette technique sont: 1) l'absence de défauts introduits dans les BQs pendant la fabrication, 2) la possibilité de varier la taille et l'arrangement des BQs, et 3) l'obtention d'une très bonne homogénéité de taille des BQs. Par contre, la taille réelle des BQs n'est pas connue de sorte qu'il est difficile de déterminer avec précision la forme du potentiel de confinement. De plus, des difficultés peuvent apparaître lorsqu'on cherche à réduire fortement les dimensions des boîtes. La limitation principale de cette technique demeure la difficulté de trouver des matériaux et des configurations qui permettent d'augmenter les barrières de confinement.

Des boîtes quantiques ont aussi été fabriquées à l'aide des techniques de gravure sèche. Les masques utilisés pour fabriquer les BQs de différentes tailles (20-200 nm) sont définis par lithographie par faisceau d'électrons à la surface d'un échantillon contenant un puits quantique étroit, enterré à quelques centaines de nanomètres sous la surface. Un masque métallique résistant à la gravure est formé sur la surface. Puis, dans les régions non masquées, la gravure est effectuée à l'aide d'un plasma d'ions réactifs (Figure 1.6). Alternativement, les échantillons peuvent être gravés chimiquement. Lorsque la taille des structures devient inférieure à environ 100 nm, un faible décalage vers le bleu de la transition attribué au confinement est observé<sup>32</sup>.

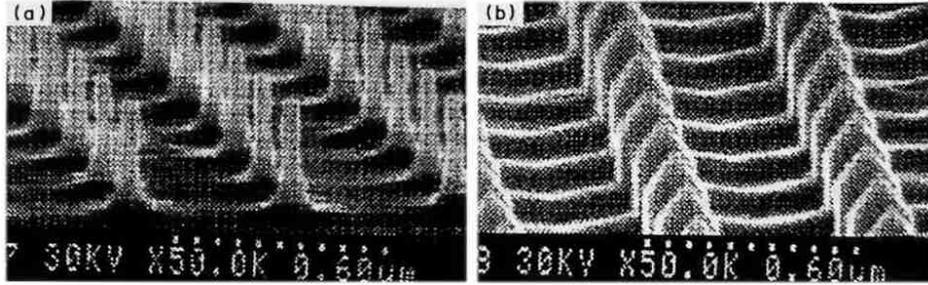


Figure 1.6: Micrographie TEM de boîtes quantiques de GaAs/GaAlAs fabriquées par gravure sèche d'un puits quantique, avant (a) et après (b) recouvrement par une couche de GaAlAs<sup>33</sup>.

Les avantages de cette méthode reposent sur le contrôle de la taille, de la forme et de la disposition (arrangement) des BQs. L'homogénéité de taille des BQs est aussi très satisfaisante. Par contre, il est difficile de réduire fortement les dimensions des BQs sans l'introduction de défauts de surface qui vont affecter les propriétés optiques. En effet, l'efficacité radiative est fortement réduite dans les BQs de plus petites tailles<sup>33</sup>. De plus, l'énergie de confinement des porteurs est encore très faible.

La méthode par précipitation a montré des résultats extraordinaires pour la formation d'un super-réseau de boîtes quantiques. Des nanocristaux colloïdaux de CdSe passivés avec des surfactants organiques se précipitent spontanément en un réseau tri-dimensionnel de BQs. La force du couplage électronique entre les BQs peut être ajusté en variant la molécule organique de passivation. Ce matériau est ordonné sur deux échelles de longueur: à l'intérieur des cristallites et entre les cristallites<sup>34</sup>. Pourtant, des problèmes de recombinaison de surface peuvent compliquer les propriétés optiques.

La technique d'interdiffusion par laser a aussi été utilisée. Elle peut permettre de fabriquer une boîte quantique unique avec un potentiel de confinement satisfaisant, mais l'efficacité radiative est très faible<sup>35</sup>.

La formation de BQs a aussi été observée dans des structures en T. Cette technique consiste à cliver un échantillon contenant un puits quantique étroit de quelques nanomètres et de faire croître un nouveau puits similaire sur la tranche de l'échantillon. À l'intersection des deux puits peuvent se former des fils quantiques et localement des BQs. Cette technique permet de localiser les BQs et de varier leur taille mais l'énergie de confinement est très faible<sup>36, 37</sup>.

Il est donc maintenant possible de réaliser des BQs de bonne qualité et dont la morphologie est modifiable. L'étape suivante consiste alors à caractériser ces structures pour étudier leurs propriétés spécifiques.

### 1.2.3 Modélisation de la structure de bande

En toute rigueur, on ne devrait pas parler de structure de bandes puisque la densité d'états est discrète dans les structures à confinement tridimensionnel. On parle plutôt de niveaux d'énergie discrets.

- *Développement d'un modèle*

Pour accroître notre compréhension des phénomènes physiques susceptibles de se produire dans les boîtes quantiques, il faut connaître leur structure interne. Il est donc indispensable d'élaborer des modèles qui soient aussi proches que possible de la réalité, pour déterminer les transitions optiques observables et identifier les raies ou pics observés expérimentalement.

Pour modéliser des BQs auto-assemblées, un modèle doit tenir compte de trois régions aux propriétés distinctes: 1) le substrat volumique dans lequel se trouvent enfouies les BQs (souvent du GaAs), 2) la couche de mouillage (mince puits quantiques bidimensionnel) sur laquelle reposent les BQs et 3) les BQs elles-mêmes, de dimensionalité zéro car le confinement des porteurs est tridimensionnel (Figure 1.7).

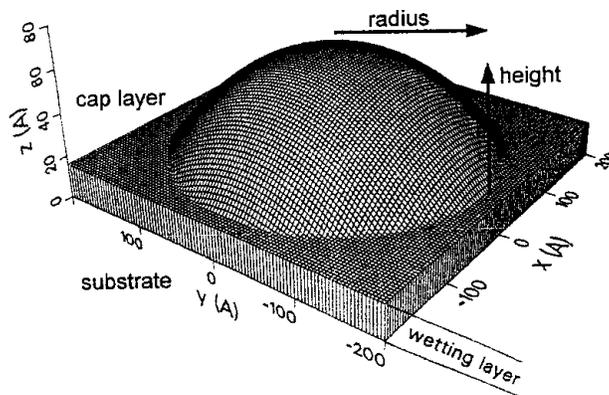


Figure 1.7: Modélisation du potentiel d'une boîte quantique: structure semi-hémisphérique d'InAs posée sur une couche de mouillage d'InAs, le tout étant entouré de GaAs<sup>7</sup>.

Les calculs théoriques présentent des résultats différents, car de nombreuses controverses persistent en ce qui concerne la forme exacte du potentiel de confinement. De plus, les paramètres structuraux, les contraintes et les valeurs des masses effectives sont encore mal connus.

Pour des raisons de simplicité, les premiers calculs ont pris en compte une forme cylindrique, conique ou parallélépipédique. Actuellement, les principaux modèles considèrent soit une forme pyramidale<sup>20, 38</sup>, soit une forme semi-hémisphérique (Figure 1.7)<sup>39</sup>.

Il est aussi difficile de connaître avec précision certaines valeurs de paramètres du modèle (discontinuité de bande, potentiels de déformation...). Un modèle approprié doit tenir compte des effets des contraintes, des effets piézoélectriques, du mélange trous légers/trous lourds de la bande de valence et des interactions bande de valence/bande de conduction. Le potentiel piézoélectrique correspond à une répartition différente des charges à l'intérieur des BQs. Certains considèrent qu'il dépend de la taille des BQs<sup>38</sup>.

La forme du potentiel de confinement doit être la plus proche possible de la géométrie réelle des BQs. Généralement, un modèle 2D est considéré, basé sur la dissymétrie du potentiel des boîtes quantiques. L'approche considérant le potentiel en  $z$  séparable du potentiel dans le plan  $xy$  est justifiée du point de vue des états à particule unique. Mais Rontani *et al.* ont montré que pour reproduire les résultats expérimentaux, il est nécessaire d'utiliser un modèle prenant en compte un potentiel de confinement tridimensionnel<sup>40</sup>. Le calcul des niveaux électroniques dépend non seulement de la taille et de la forme des structures, mais aussi des approximations considérées<sup>41</sup>. De plus, des calculs montrent que les interactions de Coulomb jouent aussi un grand rôle sur le spectre électronique<sup>39</sup>.

Selon l'approche, les paramètres et les approximations utilisées, des résultats théoriques différents ont été obtenus, permettant d'expliquer différentes séries de données expérimentales. Mais les modèles sont difficilement comparables, car ils s'appliquent à différents systèmes et sont basés sur des hypothèses différentes, par exemple concernant la répartition des contraintes dans le système.

- *Les contraintes*

Les contraintes du système (couche de mouillage, boîte quantique, couche de recouvrement) jouent un rôle très important car elles peuvent modifier le potentiel de confinement et par conséquent la structure électronique et les propriétés des BQs<sup>42</sup>. Des chercheurs considèrent que la distribution des contraintes dans le système varie linéairement avec le désaccord de maille du réseau. Les contraintes biaxiales pousseraient fortement les états de trous légers loin du maximum de la bande de valence, si bien que seuls les trous lourds joueraient un rôle dans les transitions optiques à basses énergies<sup>22</sup>.

La répartition réelle des contraintes dans le système de BQs est encore mal connue. Celles-ci semblent pourtant jouer un rôle significatif lors de la formation des boîtes, notamment lorsque des réseaux ordonnés de BQs sont observés<sup>22, 23</sup>. Par ailleurs, il a aussi été montré que la stabilité des BQs (forme, taille, homogénéité) dépend des énergies de surface et élastiques, ainsi que des interactions de longue portée pour le système<sup>43</sup>. Mais d'autres chercheurs ont montré que la distribution de taille des BQs ne semblait pas due aux contraintes, pour le système de BQs auto-assemblées d'InAs/GaAs<sup>10</sup>. Les contraintes des îlots optiquement actifs sont généralement considérées comme cohérentes<sup>44</sup>.

- *Structure des niveaux électroniques*

Étant donné l'asymétrie prononcée des BQs en forme de lentille (hauteur très inférieure à la longueur) et la faible hauteur des boîtes, le confinement en  $z$  (axe de croissance) doit être beaucoup plus fort que celui en  $xy$ . On suppose donc que l'on peut découpler les composantes  $x, y$  d'une part et  $z$  d'autre part.

On considère qu'il n'y a qu'un seul état d'électron et de trou lourd autorisé par le confinement en  $z$ . Le potentiel du trou léger étant rabaissé dans la bande de valence à cause des contraintes, il y a donc un seul état confiné dû au confinement en  $z$ . Les autres états ont donc comme origine le confinement latéral<sup>45</sup>.

On considère souvent que les porteurs sont confinés dans les boîtes quantiques par un potentiel effectif parabolique. Comme pour le potentiel de l'oscillateur harmonique, on obtient une couche  $s$  dégénérée deux fois, la couche  $p$  dégénérée quatre fois, la couche  $d$  dégénérée six fois... telle que la dégénérescence est  $g = 2(l + 1)$ , où 2 correspond à la dégénérescence de spin ( $l = 0, 1,$

2...). Pour un potentiel harmonique, la séparation énergétique des niveaux est à peu près constante, en accord avec les observations expérimentales. De façon similaire aux atomes véritables, les orbitales peuvent être classées en différentes couches  $s, p, d, f, g...$  selon le nombre quantique  $l = m + k$ , où  $m$  et  $k$  sont respectivement les nombres quantique angulaire et radial. Dans l'analyse des résultats expérimentaux, les différents niveaux d'énergie seront décrits par le nombre  $n = l + 1$ .

- *Énergie de liaison des excitons*

Le confinement affecte aussi les interactions entre porteurs de charge dans les BQs. Ainsi, l'énergie de liaison de l'exciton à l'état fondamental est beaucoup plus grande que dans un puits quantique (2D). Cette valeur dépend du potentiel de confinement et donc de la taille des BQs. Des calculs montrent que l'énergie de liaison de l'exciton varie avec le rayon des BQs et présente un maximum pour une dimension finie<sup>46</sup>. L'énergie de liaison est typiquement d'environ 26 meV pour des BQs pyramidales de 10 nm à la base, et de 11 meV pour des BQs de 20 nm, comparativement à environ 4 meV pour l'exciton non confiné<sup>20,38</sup>.

Lorsque plusieurs électrons et/ou trous sont confinés dans une même boîte (par le dopage de la structure ou par excitation optique), la formation d'excitons neutres ou chargés (deux électrons et un trou, ou l'inverse), de bi-excitons ou de complexes multi-excitoniques peut affecter l'énergie des différentes transitions optiques excitoniques. La probabilité de présence d'excitons chargés est plus grande en 0D qu'à plus haute dimensionalité<sup>46</sup>.

Ainsi, l'énergie de liaison des excitons dépend des caractéristiques structurales des boîtes. L'importance relative des interactions électron-trou est fonction des énergies de confinement des porteurs par rapport à leur énergie de liaison.

## 1.2.4 Nature des transitions optiques

- *États discrets*

Lorsqu'on étudie par photoluminescence une BQ unique ou même un faible nombre de boîtes (typiquement inférieur à 500), on peut clairement observer un spectre de fines raies (Figure 1.8). Ce spectre est caractéristique d'une densité d'états discrète semblable au spectre de fonctions delta prédit par la théorie<sup>47</sup>. Cette observation est très importante car elle permet de confirmer la présence d'un confinement tridimensionnel des porteurs, ce qui met ainsi en évidence l'existence de propriétés zéro-dimensionnelles dans les boîtes quantiques.

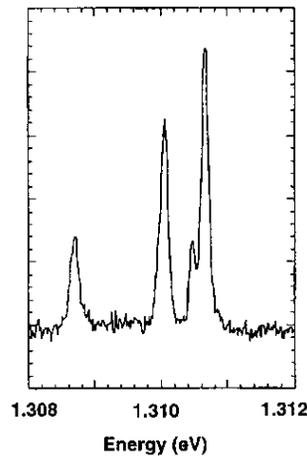


Figure 1.8: Spectre de photoluminescence à haute résolution d'une boîte quantique unique d'InAs/GaAs<sup>9</sup>.

Par exemple, pour des BQs d'InAs/GaAs, un spectre de raie ultra-fines (largeur à mi-hauteur des raies inférieure à 0.15 meV) a été mis en évidence, ainsi que l'absence d'élargissement inhomogène et d'élargissement thermique (jusqu'à 50 K)<sup>48</sup>. Lorsque la densité de porteurs augmente, le phénomène de remplissage et l'apparition de transitions optiques associées à des états excités peuvent être clairement identifiées, à cause du principe d'exclusion de Pauli qui limite la population de chaque niveau d'énergie. On a aussi mis en évidence des énergies inter-niveaux importantes (supérieures à 20 meV) associées au fort confinement latéral des BQs<sup>45, 47</sup>. Le spectre de raies discrètes a été observé pour plusieurs types de boîtes fabriquées par différentes méthodes<sup>2, 33, 49, 50</sup>. Ces raies ne semblent donc pas liées à des défauts introduits lors de la fabrication. Le fait que la largeur des raies dans les BQs soit indépendante de la température est caractéristique d'une densité d'états de type 0D (fonction  $\delta(E)$ ) car dans les puits quantiques

ou semi-conducteurs volumiques, on observe un élargissement thermique des raies dû au continuum d'états en 2D ou 3D.

- *Origine des transitions optiques*

D'abord, la nature excitonique des particules dans les BQs n'est pas très claire. L'absence de décalage en énergie des pics de PL, quand on augmente la densité de porteurs, est bien décrite par un gaz d'excitons. En revanche, le remplissage des états selon le principe de Pauli indique des statistiques de Fermi. On peut donc considérer que les porteurs se comportent comme un gaz d'excitons de Fermi, car la structure interne des excitons devient importante en 0D<sup>51</sup>.

Théoriquement, le spectre optique de structures 0D consiste en une série de transitions discrètes entre les différents états d'énergie 0D. Les règles de sélection des transitions optiques sont dues à la forme et la symétrie des BQs<sup>52</sup>. À cause des incertitudes sur les paramètres des modèles théoriques et de la qualité des échantillons, des résultats contradictoires existent sur l'identification des raies observées en PL.

Ainsi, selon la forme et la taille des BQs, selon la méthode et les valeurs des paramètres employées, le nombre d'états électroniques confinés varie. Concernant les transitions optiques interbandes, les calculs prédisent que les transitions les plus probables seraient entre états dont le nombre quantique est le même pour les électrons et les trous<sup>39, 53, 54</sup>, bien que des transitions dominantes entre états d'électrons et de trous de nombres quantiques différents aient aussi été prédites<sup>20, 22, 30, 55-57</sup>. Malgré la diversité des résultats des modèles, la plupart des chercheurs sont maintenant d'accord sur le fait qu'il y a plusieurs états électroniques confinés dans les BQs de taille supérieure à 10 nm, et que ceux-ci doivent intervenir dans les états excités.

Expérimentalement, des mesures de photoluminescence ont été effectuées en régime de forte excitation, en présence d'une pression d'Hélium croissante, ce qui augmente l'énergie de la bande interdite et provoque la disparition séquentielle des transitions quand les bandes  $\Gamma$  et X se croisent<sup>58</sup>. Ces résultats mettent en évidence le fait que, à forte densité d'excitation, les transitions observées sont dues à différents niveaux de trous et d'électrons, dont le nombre quantique est probablement le même. Ainsi, il existerait des règles de sélection fortes pour la recombinaison électron-trou dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs étudiées<sup>58</sup>.

Mais l'interprétation des spectres optiques à partir des calculs de niveaux électroniques n'est pas triviale pour plusieurs raisons<sup>38</sup>:

- La population de porteurs varie d'une BQ à une autre.
- Les interactions entre particules (interactions coulombiennes) peuvent altérer la structure de bande de manière significative.
- Les propriétés optiques sont fortement influencées par l'effet piézoélectrique, contrairement aux puits quantiques<sup>38</sup>.

Ainsi, selon la méthode de caractérisation utilisée et le système étudié, les raies observées pour une BQ unique ou un faible nombre de BQs ont été attribuées à des résonances multiphononiques<sup>59, 60</sup>, des états excités<sup>1, 50</sup>, des BQs de taille différente<sup>2, 48</sup>, ou à des complexes excitoniques<sup>2, 9</sup>. Lorsqu'on sonde un grand ensemble de BQs, les raies ont été attribuées à des états excités<sup>5, 45</sup>, différents groupes de BQs de taille différente<sup>53</sup>, ou à des émissions multiphononiques<sup>61, 62</sup>. L'interprétation de certaines raies peut différer d'un auteur à l'autre. Mais les études s'appliquent à des systèmes de BQs, des techniques de caractérisation et des conditions expérimentales plus ou moins différents et donc difficilement comparables.

Il est généralement possible de déterminer la nature des transitions en faisant varier certains paramètres expérimentaux (température, densité d'excitation, position sur l'échantillon). Par exemple, les états excités sont observés seulement à forte densité d'excitation. Il faut noter que les processus associés aux transitions optiques sont dépendants de la nature et de la structure des boîtes, ainsi que de la qualité de la fabrication. De plus, il est particulièrement délicat d'étudier un échantillon contenant un grand nombre de BQs s'il y a de grandes variations de la taille, forme... entre les différentes boîtes, car leurs propriétés peuvent varier de façon significative. D'autre part, des calculs corroborent la présence d'états à multi-particules qui ont clairement été mis en évidence dans le spectre de BQs uniques<sup>2, 9</sup>. Il faut donc étudier de manière approfondie les transitions observées pour en déterminer la nature sans ambiguïté possible.

- *Élargissement homogène des raies*

Le spectre de raies discrètes obtenu en sondant un faible nombre de BQs ne correspond pas à des fonctions delta parfaites car les raies présentent une certaine largeur finie. D'abord, on différencie l'élargissement homogène des raies d'absorption ou d'émission, qui est observé lorsqu'on étudie une boîte quantique unique, de l'élargissement inhomogène qui est observé lorsqu'on sonde un très grand nombre de BQs. La largeur de raie homogène est typiquement de l'ordre de 0.1 meV, dépendamment des matériaux utilisés.

Dans les BQs, du fait de la complète quantification des états et des lois de conservation de l'énergie, les mécanismes de diffusion excitoniques devraient être négligeables, de même que l'émission ou l'absorption de phonons à basse température<sup>63</sup>. Par conséquent, l'origine de la largeur de raie proviendrait de l'élargissement radiatif. Pour une boîte unique de GaAs, on observe que la largeur de la raie de l'état fondamental est de 23  $\mu\text{eV}$  à 6 K<sup>63</sup>. En accord avec les prédictions théoriques, la largeur de raie radiative dans les BQs est plus faible que celle dans un puits quantique (par un facteur 4) et beaucoup plus faible que celle d'un matériau volumique (par un facteur 8).

Quand la température augmente, la largeur de raie radiative augmente, car l'exciton peut absorber des phonons acoustiques et diffuser vers des états à plus haute énergie<sup>63</sup>. Une augmentation systématique de la largeur de ligne est observée pour les états excités. En effet, en plus de la recombinaison radiative, les états excités peuvent relaxer par l'émission de phonons, même à basse température. Ainsi l'augmentation de la largeur de raie homogène des états excités est attribuée en grande partie à l'augmentation du taux d'émission de phonons<sup>63</sup>.

- *Élargissement inhomogène des pics*

Si on étudie un large ensemble de BQs, typiquement une centaine de milliers de BQs (macro-PL) alors, au lieu d'un spectre de raies discrètes, on observe des pics élargis ayant la forme de gaussiennes (Figure 1.9). L'élargissement inhomogène est généralement caractérisé par la largeur à mi-hauteur de la gaussienne (*FWHM*) et il est typiquement de  $30 \text{ meV} < \text{FWHM} < 70 \text{ meV}$ , selon la qualité des BQs. Cette très importante augmentation de la largeur de la raie est due à des inhomogénéités de taille, forme, composition, et/ou contraintes dans l'ensemble des boîtes. La caractérisation structurale des BQs en surface (non recouvertes) indique que les dimensions des BQs peuvent varier typiquement de  $\pm 10 \%$  sur l'ensemble de l'échantillon<sup>19</sup>.

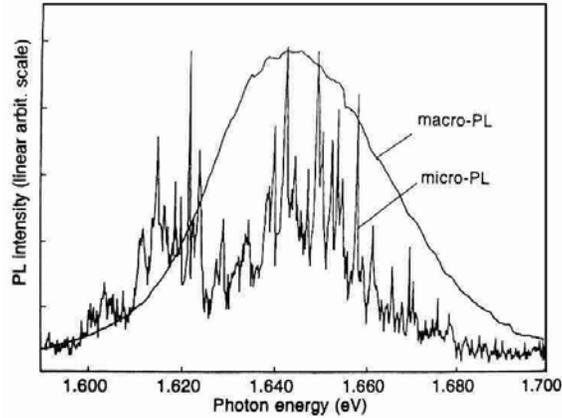


Figure 1.9: Spectres de photoluminescence de BQs d'InGaAs obtenus en excitant soit environ une centaine de BQs (micro-PL) soit environ  $10^6$  BQs (macro-PL)<sup>50</sup>

Les différents niveaux confinés des boîtes ne présentent pas nécessairement la même largeur de raie. Des chercheurs ont effectivement observé un élargissement des raies plus important pour les niveaux de plus haute énergie (niveaux excités)<sup>22</sup>. En théorie, la séparation entre les niveaux devrait augmenter avec l'énergie du niveau fondamental des BQs<sup>52</sup>. Autrement dit, quand la taille des boîtes diminue, l'énergie de transition augmente, et l'énergie interniveaux augmente d'autant plus que l'énergie de transition est élevée. Donc, si on considère un ensemble de boîtes de tailles différentes, l'écart énergétique entre les transitions devrait être plus important pour les niveaux à haute énergie que pour les niveaux de basse énergie. Par conséquent, la variation d'énergie du niveau fondamental devrait être plus faible que celle d'un niveau d'énergie supérieur. Nous montrerons plus loin par une étude systématique de l'influence de chaque paramètre, ainsi que par d'autres résultats expérimentaux, que ce phénomène n'est pas caractéristique de toutes les BQs et que l'effet contraire peut même être observé et interprété<sup>13</sup>.

Des auteurs montrent que différentes techniques, comme la croissance de plusieurs couches de BQs couplées<sup>6</sup> ou l'interdiffusion peuvent améliorer l'homogénéité de l'ensemble de BQs<sup>13, 64</sup>.

- *États excités*

Selon les conditions de croissance, il est possible par spectroscopie de remplissage (photoluminescence en forte excitation optique), d'observer tous les niveaux confinés dans les BQs, ainsi que la recombinaison des porteurs dans les barrières (couche de mouillage et GaAs). En fait, on peut observer un signal distinct provenant de la couche de mouillage (wetting layer) lorsque la densité de BQs est faible, c'est-à-dire lorsque la distance entre les boîtes est supérieure à la longueur de diffusion des porteurs.

Si l'élargissement inhomogène est suffisamment faible, il est possible d'observer de nouvelles raies inhomogènes qui apparaissent distinctement à plus haute énergie, quand la densité d'excitation augmente (Figure 1.10). Ces raies sont associées à des états excités des boîtes quantiques<sup>28</sup>. L'observation des différents niveaux confinés des boîtes quantiques présente un grand intérêt pour l'étude des propriétés électroniques et des mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs dans ces systèmes quasi 0D.

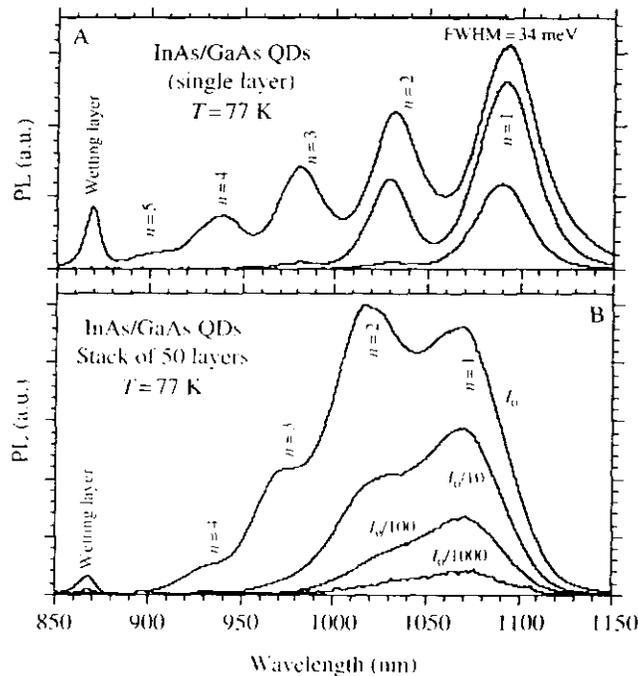


Figure 1.10: Spectres de photoluminescence de BQs d'InAs/GaAs à forte densité d'excitation (A) et pour différentes densités d'excitation (B), pour une seule couche de BQs (A) et pour un empilement de 50 couches de BQs (B)<sup>28</sup>.

De manière similaire, dans un système d'InP/GaInP, la présence d'états excités a aussi été mise en évidence par photoluminescence<sup>49</sup>. Quand on augmente la densité d'excitation, des pics apparaissent à plus haute énergie à cause du remplissage des états de basse énergie. Des calculs théoriques suggèrent que les principaux pics sont dus à des électrons dans différents états de la bande de conduction.

À très forte densité d'excitation et sous excitation uniforme, l'intensité de PL est plus importante pour les niveaux de plus haute énergie que pour les niveaux de plus basse énergie. L'intensité relative des différentes raies dépend de la dégénérescence des états (2, 4, 6, 8, ... pour les états à une particule s, p, d, f, ...) et de l'efficacité des mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs. Nous allons voir que les interactions multi-particules viennent compliquer cette analyse.

- *États 0D à multi-particules*

Le modèle de niveaux à particule unique simplifie la description de la structure électronique mais les interactions entre particules deviennent importantes quand on augmente le nombre de particules dans les BQs. La formation d'états à multi-particules (ou complexes excitoniques) peut modifier sensiblement l'énergie et la probabilité des transitions optiques permises.

Pour identifier la nature des transitions optiques d'un ensemble de boîtes d'InGaAs/GaAs, une méthode intéressante consiste à réaliser des mesures en champ magnétique, ce qui permet de lever la dégénérescence des différents états 0D<sup>65, 66</sup>. En appliquant un champ magnétique, on observe effectivement des modifications du spectre attribuées à la séparation et au décalage énergétique des transitions associées aux états excités. Raymond *et al.* montrent que lorsqu'on varie la population de porteurs dans les BQs, le spectre d'émission reflète la densité d'états non pas simplement d'électrons et de trous, ni d'un exciton unique, mais plutôt d'états à multi-particules<sup>65, 66</sup>.

Le remplissage de boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs/GaAs a aussi été étudié en champ électrique par d'autres chercheurs<sup>67</sup>. En appliquant une tension électrique normale au plan des couches, il est possible de remplir les boîtes avec des électrons. Sous excitation lumineuse, les transitions optiques interbandes apparaissent selon l'occupation des boîtes. De plus, les pics

de photoluminescence peuvent se décaler en énergie, à mesure que des trous sont ajoutés, selon l'énergie de liaison des complexes excitoniques chargés ainsi formés (Figure 1.11).

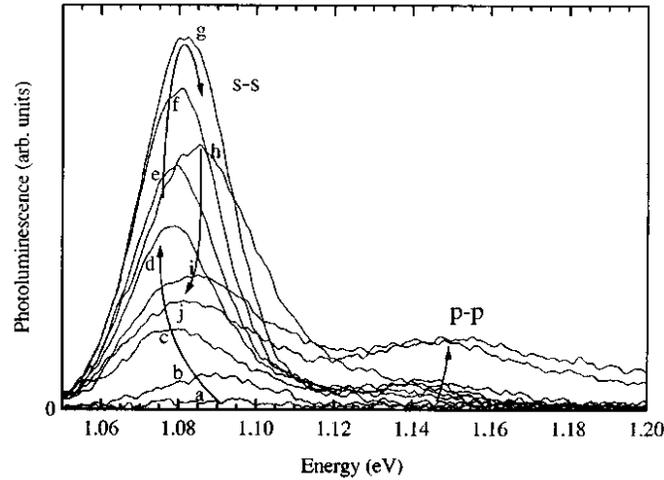


Figure 1.11: Spectres de photoluminescence à différents taux d'occupation d'un ensemble de BQs auto-assemblées d'InAs/GaAs<sup>67</sup>.

Expérimentalement, un ensemble de BQs auto-assemblées d'InGaAs/AlGaAs a été étudié en champ proche pour déterminer les propriétés d'une boîte unique, et de nouvelles transitions ont été observées proches des pics excitoniques originaux, quand la densité d'excitation augmente<sup>68</sup>. Les auteurs attribuent ces transitions à la formation d'un état à deux paires, quand deux électrons et deux trous occupent une boîte, grâce au couplage de Coulomb de deux excitons de spin opposé. Les raies excitoniques et biexcitoniques sont caractérisées par une dépendance linéaire et supralinéaire, respectivement, en fonction de la densité d'excitation<sup>68</sup>. Ces raies ont aussi été clairement observées dans des boîtes de CdSe/ZnSe, à des énergies très différentes<sup>2</sup>.

La présence d'états à multi-particules a été mise en évidence pour une BQ unique d' $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{GaAs}$  par l'étude détaillée du spectre de PL obtenu en variant la densité d'excitation<sup>69</sup>. On peut clairement observer que plusieurs états, à des énergies différentes, sont associés au niveau  $s$  (et au niveau excité  $p$ ). L'énergie des transitions dépend du nombre de particules présentes dans la boîte (Figure 1.12). Les observations expérimentales sont en excellent accord avec les calculs effectués en tenant compte des états multiexcitoniques<sup>69</sup>.

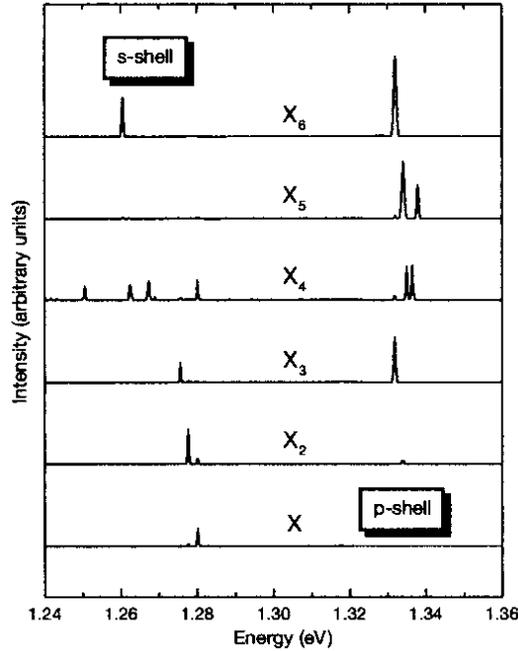


Figure 1.12 Spectres de photoluminescence obtenus pour une BQ unique d'InGaAs à différentes puissance d'excitation (de bas en haut: 200nW, 800nW, 2.9 $\mu$ W, 17 $\mu$ W, 310 $\mu$ W, 4.3mW)<sup>69</sup>.

On peut noter que les états multi-particules présentent le même caractère que les états à une particule. En effet, les mêmes caractéristiques spectrales (couches  $s$ ,  $p$ ,  $d$ ,  $f$ ...) sont obtenues des états multi-excitoniques cohérents<sup>7</sup>, même si un élargissement de la bande  $s$ , en particulier, est observé.

Des articles théoriques montrent que lorsque les électrons et les trous remplissent partiellement des états à une particule, les nouveaux états et énergies sont complètement déterminés par les interactions entre ces porteurs<sup>70</sup>. Ainsi, les états propres multi-particules peuvent être formés à partir d'un mélange des états excitoniques à une particule (dans ce cas, l'exciton).

En fait, selon le nombre d'excitons présents dans une BQ, des transitions entre différents états multi-excitoniques sont rendues possibles par les interactions de Coulomb<sup>71, 72</sup>. Des calculs faisant intervenir des états à multi-particules sont en bon accord avec les spectres obtenus à différentes densités d'excitation pour une BQ unique d'InAs/AlGaAs. Plus l'excitation est importante, plus les niveaux (d'électron ou de trou unique) participant aux états multiexcitoniques fondamentaux ont une énergie élevée. Les transitions optiques entre ces

niveaux excités et des états ayant un exciton de moins sont alors possibles, ce qui conduit à une diminution de l'énergie de ces transitions. Cet écart est directement lié aux interactions de Coulomb (énergie d'échange) entre les deux états considérés. L'écart est constant tant qu'il s'agit d'états confinés à une particule. Mais à forte excitation, quand les états électroniques du continuum commencent à être peuplés, l'écart diminue et de larges bandes spectrales apparaissent à basse énergie<sup>71,72</sup>.

Les calculs prenant en compte des états à multi-particules sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux. L'énergie des transitions optiques dépend clairement du nombre d'excitons présents dans la boîte, ce qui confirme la présence de complexes excitoniques dans les boîtes quantiques.

- *Interactions entre états 0D et états 2D*

Lorsqu'on observe le spectre d'émission d'une boîte quantique unique, on peut parfois observer une large bande d'émission de faible intensité sur laquelle se superpose des raies discrètes. L'émission spectrale très large bande qui peut survenir à fort remplissage a été attribuée à l'interaction des états de la couche de mouillage avec les états de la BQ<sup>9</sup>.

Motohisa *et al.* ont aussi attribué la disparition de certaines raies, lorsque la densité d'excitation augmente, à l'interaction avec des états électroniques dans la proche couche de mouillage (Figure 1.13)<sup>73</sup>. Comme les porteurs des états de la CM deviennent moins localisés (par les fluctuations de potentiel), quand la densité de porteurs augmente, ceux-ci pourraient être moins efficacement diffusés dans les états de basse énergie par les phonons. Ces résultats suggèrent que les interactions entre les états occupés dans la BQ et de la CM pourraient être particulièrement importantes<sup>73</sup>.

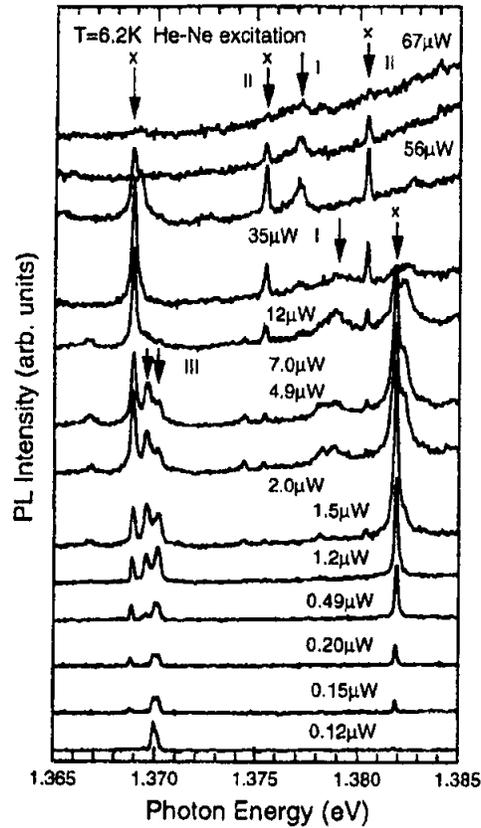


Figure 1.13: Spectres de micro-PL de BQs d'InAs obtenus à différentes intensités d'excitation<sup>73</sup>.

### 1.2.5 Énergie des transitions

- *Effet de la taille des BQs*

Lorsqu'on réduit la taille des structures, on observe un décalage de l'énergie des transitions vers les plus hautes énergies (décalage vers le bleu) à cause de la variation de l'énergie de confinement<sup>33, 56, 74-76</sup>. Les modifications de l'énergie associée au niveau fondamental ont été attribuées à un changement de la forme ou de la composition des boîtes<sup>74</sup>.

Cet effet a aussi été clairement observé pour des nanocristaux sphériques d'InAs de très petite taille (10 à 35 Å). Les résultats obtenus en étudiant une boîte quantique unique par spectroscopie optique et par effet tunnel concordent bien<sup>56</sup>. La séparation entre les groupes de raies d'émission, ainsi que l'énergie entre les pics augmentent quand le diamètre des BQs diminue. L'augmentation de l'énergie interniveaux lorsque la dimension des boîtes est réduite est

attribuée à l'augmentation du confinement liée à la taille des boîtes. Ainsi, les observations confirment l'effet du confinement quantique attendu pour ces structures 0D.

Pour les BQs fabriquées par îlots de contrainte, la variation du rayon des structures et de l'épaisseur de la couche de recouvrement permet de modifier la taille des BQs, et donc leurs propriétés électroniques et optiques<sup>77</sup>. Pour des BQs d'InGaAs/GaAs induites par contraintes, la partie du puits contrainte émet des photons à plus basse énergie que la zone non contrainte<sup>78</sup>. Des mesures de PL montrent effectivement que l'énergie de la transition diminue à mesure que l'on réduit l'épaisseur de la couche entre les îlots et le puits.

- *Effet des paramètres de fabrication*

Dans le cas de boîtes auto-assemblées fabriquées par épitaxie, il est possible de modifier les énergies de transition et l'énergie interniveaux en ajustant les paramètres de croissance (température du substrat, quantité de matériau déposé, durée de l'interruption de croissance etc), ce qui modifie la forme, composition, ... des boîtes<sup>16, 79</sup>. Une étude montre que la quantité de matériau déposée est particulièrement critique et peut induire un fort décalage de l'énergie de transition optique<sup>80</sup>. Ainsi, en comparant l'énergie du signal de PL ( $E_p$ ) émis par des dizaines d'échantillons différents de BQs d'InAs fabriquées par MBE sous différentes conditions, en fonction de l'épaisseur d'InAs déposée ( $L$ ), trois régimes distincts sont observés: pour  $L \delta 1.5$  monocouches (ML) l'énergie du pic  $E_p$  dépend linéairement de  $L$ , puis pour  $1.5 \text{ ML} \delta L \delta 2 \text{ ML}$ , proche de l'épaisseur critique  $E_p$  varie très fortement avec  $L$ , et pour  $L \tau 2 \text{ ML}$  une faible dépendance linéaire est observée semblable au cas où  $L \delta 1.5 \text{ ML}$ <sup>80</sup>. Ces différents régimes peuvent être caractérisés par la forme des boîtes. En régime 1, des îlots en forme de lentille commencent à se développer. Au régime 2, ils tendent à prendre une forme pyramidale dont l'orientation des faces dépend des conditions de croissance. Puis dans le dernier régime, des boîtes quantiques à l'équilibre, pleinement formées, dominent l'ensemble de BQs<sup>80</sup>.

- *Effet du couplage entre les boîtes*

Le couplage vertical ou latéral des BQs produit aussi un décalage de la raie d'émission. Augmenter le nombre de couches de BQs et diminuer la largeur de barrière (entre les plans de BQs) conduisent au même résultat: le pic de PL se décale vers les plus basses énergies, à cause du couplage électronique croissant entre les couches de BQs<sup>3</sup>.

Quand la densité de BQs sur un même plan devient vraiment grande, des associations latérales de BQ (composées de plusieurs BQs arrangées soit en chaînes, soit en réseaux rectangulaires) apparaissent et on observe un net décalage vers le rouge de la raie d'émission<sup>81</sup>. En effet, un transfert de porteurs parmi les BQs couplées est possible, les porteurs photoexcités peuvent ainsi être capturés par des BQs plus larges ayant des niveaux de plus basse énergie, ce qui peut expliquer le décalage observé du pic de PL vers les plus basses énergies<sup>82</sup>. D'autre part, un décalage vers le bleu a aussi été observé lorsque la densité de BQs augmente (et que la distance entre les BQs diminue)<sup>83</sup>. Il a été attribué à des déformations progressives des contraintes des potentiels de confinement et à l'effet de plus en plus significatif des interactions inter-boîtes. Les propriétés optiques sont donc largement influencées par les interactions entre BQs.

- *Effet de la température*

La température du réseau est aussi un facteur pouvant jouer sur le spectre d'émission des boîtes. On observe un décalage vers le rouge de la raie d'émission qui suit essentiellement le comportement en température de la bande interdite<sup>84</sup>.

Il est possible d'observer, dans certains cas, une corrélation entre le décalage vers le rouge (pour  $T < 100$  K) de la raie d'émission et une réduction de la largeur de raie inhomogène<sup>85</sup>. Ces observations traduisent un transfert des charges vers les boîtes de plus grande taille (ayant des niveaux de plus basse énergie). À plus haute température, le décalage de la raie devient plus prononcé et la largeur de la raie augmente car la diffusion porteurs-phonons et la distribution thermique des porteurs deviennent importantes<sup>86</sup>

- *Effet de l'interdiffusion*

Comme décrit précédemment, il existe une façon simple de "manipuler" les propriétés des boîtes quantiques auto-assemblées après leur croissance: l'interdiffusion par recuit thermique permet de modifier efficacement l'énergie des transitions des boîtes (Figure 1.14). En fait, trois effets sont principalement observés après recuit: la longueur d'onde d'émission est décalée vers le bleu, l'énergie interniveaux est réduite et les raies deviennent plus étroites<sup>13, 28</sup>, ce qui correspond à une meilleure homogénéité de la distribution des BQs. L'amplitude ou l'efficacité de ces effets varient selon la durée et la température du recuit.

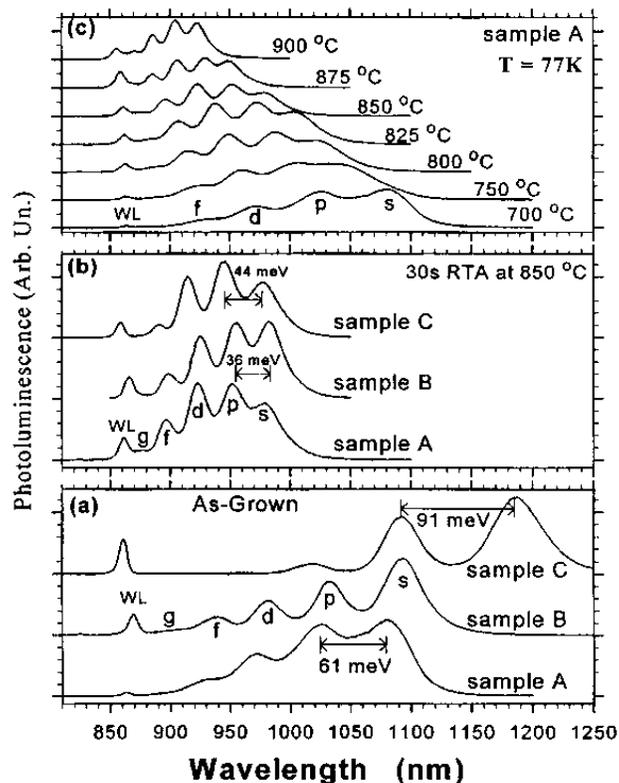


Figure 1.14: Interdiffusion thermique de BQs ayant différents espaces interniveaux. (a) Spectres de PL montrant le remplissage des niveaux. (b) Différents échantillons interdiffusés dans les mêmes conditions. (c) BQs interdiffusées à différentes températures<sup>64</sup>.

De nombreux effets peuvent donc être responsables de la variation de l'énergie des transitions optiques, selon le mode de fabrication des boîtes. Autrement dit, plusieurs techniques permettent de modifier les propriétés optiques des BQs, de façon relativement bien contrôlée.

## *1.3 Dynamique des porteurs*

### *1.3.1 Mécanismes de relaxation*

- *Principes généraux*

Le plus simple moyen d'étudier la dynamique des porteurs dans les boîtes quantiques consiste à générer un grand nombre de porteurs dans l'échantillon puis à observer leur distribution énergétique ainsi que leur évolution dans le temps. Pour cela, on peut créer un grand nombre d'électrons et/ou de trous ayant un excédent d'énergie, par excitation optique (laser) ou électrique (tension continue). Après un temps de thermalisation des porteurs entre eux extrêmement rapide (quelques centaines de femtosecondes), les porteurs vont se répartir dans les différents niveaux d'énergie disponibles du système, selon l'importance relative des divers mécanismes de relaxation (Figure 1.15).

Les propriétés optiques varient selon les matériaux utilisés et la taille des structures. Les mécanismes de relaxation de l'énergie considérés sont généralement régis par le principe de minimisation de l'énergie du système en tenant compte du principe d'exclusion de Pauli et des interactions entre particules ou quasi-particules. La relaxation de l'énergie des porteurs dans des structures à boîtes quantiques peut s'effectuer de façon séquentielle en passant par les étapes suivantes<sup>4</sup>:

- 1) la capture des porteurs depuis les barrières (GaAs et couche de mouillage) vers les états des BQs;
- 2) la relaxation interniveaux à l'intérieur des BQs, des états excités vers des états de moindre énergie;
- 3) la recombinaison électron-trou ou excitonique. Elle peut impliquer des porteurs dans différents états quantiques du système, lorsque les règles de sélection sont respectées.

À noter que le schéma de relaxation peut être beaucoup plus complexe que ce scénario; les résultats présentés dans cette thèse visent à éclaircir le schéma réel de relaxation en fonction des conditions expérimentales.

Ces processus peuvent être radiatifs (émission d'un photon), ou non-radiatifs (transfert de l'énergie en excès à un autre porteur, à des vibrations de réseau ou à un défaut du cristal).

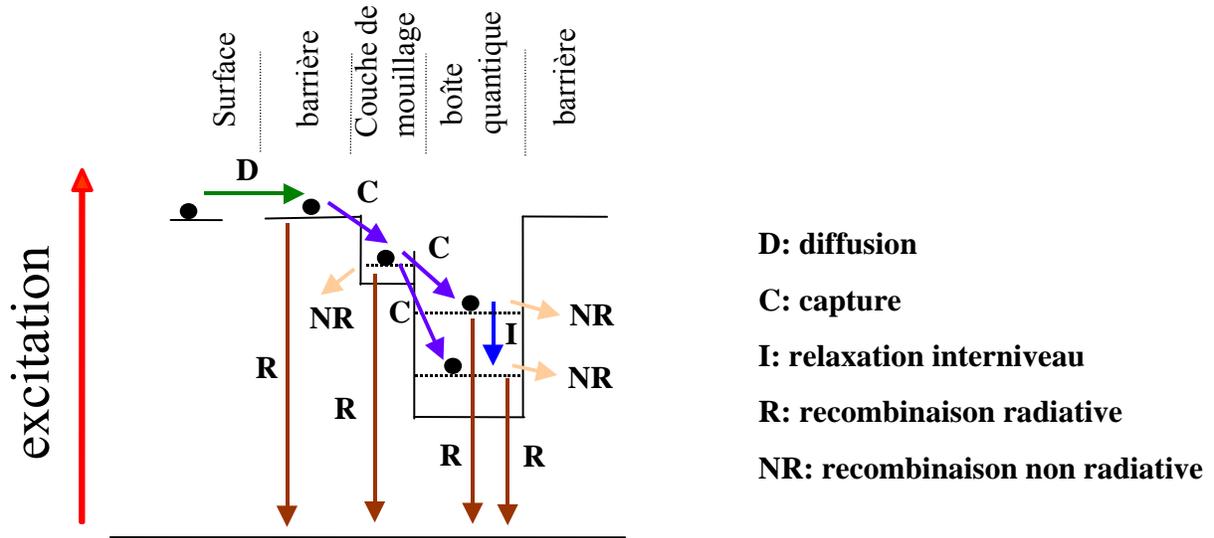


Figure 1.15: Principaux processus de relaxation de l'énergie des porteurs dans un système de boîtes quantiques

En particulier, dans des boîtes quantiques d'InAs/GaAs, la relaxation des porteurs a été observée et peut être décrite par le processus en cascade suivant<sup>30</sup>. Les porteurs générés par une impulsion brève du laser sont rapidement capturés dans les boîtes où ils vont relaxer leur énergie. La densité de porteurs des différents niveaux des boîtes varie en fonction des taux de relaxation et de recombinaison. Heitz *et al.* observent que l'intensité de PL d'un niveau, qui est proportionnelle à la population de porteurs, reste constante tant que des états supérieurs sont peuplés et continuent à fournir des porteurs aux états inférieurs. Puis l'intensité de la PL des états excités décroît avec une constante de temps correspondant à la somme du taux de recombinaison radiatif et du taux de relaxation à l'intérieur des BQs. Ainsi, à forte excitation, les auteurs observent une saturation du niveau fondamental pendant près d'une nanoseconde après l'impulsion, alors que les niveaux excités restent saturés pendant seulement quelques centaines de picosecondes. En revanche, sous faible excitation, seuls les états de plus basse énergie sont remplis car les temps de relaxation interniveaux sont plus courts que les temps de recombinaison. Selon Heitz *et al.*, la recombinaison radiative est dominante pour les états excités, c'est-à-dire que les canaux de recombinaison non-radiative en compétition sont peu nombreux, contrairement aux

observations antécédentes de relaxation très rapide indiquant l'importance de canaux de recombinaison non-radiatifs<sup>30</sup>.

Les mesures optiques résolues en temps dans les boîtes quantiques peuvent donner de nombreuses informations très intéressantes à la fois d'un point de vue fondamental (dynamique des processus de diffusion porteurs-porteurs et porteurs-phonons) et d'un point de vue technologique (performances des dispositifs électroniques et opto-électroniques ultrarapides).

- *Capture et relaxation interniveaux*

Ces mécanismes sont intéressants à étudier car ils peuvent être fortement affectés par le confinement 3D des porteurs. On considère que le remplissage des BQs se fait par le processus suivant: après avoir été capturés dans les boîtes quantiques, les porteurs relaxent vers les états de plus basse énergie. Ainsi, la population de l'état de plus haute énergie décroît en fonction du remplissage des états de plus basse énergie (Figure 1.16).

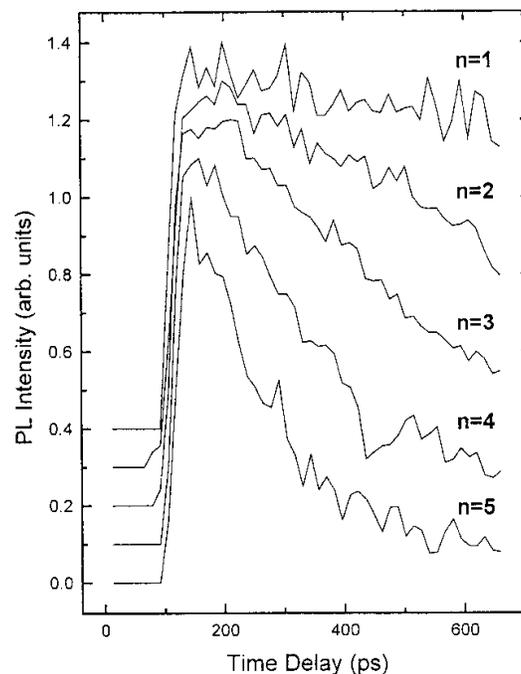


Figure 1.16: Temps de décroissance du signal de PL résolu en temps pour chaque niveau d'énergie de BQs autoassemblées d'InGaAs/GaAs, à 4 K<sup>87</sup>.

Si on néglige les processus de recombinaison non-radiatifs, les porteurs peuvent relaxer soit par recombinaison radiative, soit par relaxation interniveaux, à l'exception des porteurs de l'état fondamental qui peuvent seulement se recombinaison. Quand une recombinaison se produit, elle crée un état vide. Cet état sera rempli par un porteur d'un niveau d'énergie supérieur qui laisse à son tour un état vide au niveau supérieur. Ce processus de relaxation en cascade s'arrête quand le niveau de plus haute énergie perd un porteur qui n'est pas remplacé. La population des états de plus basse énergie reste donc constante tant que les états supérieurs sont remplis. C'est l'effet de remplissage des niveaux.

Expérimentalement, d'après les spectres de photoluminescence en continu, on observe seulement les états de plus faible énergie, à basse densité d'excitation. Ceci indique que les processus de capture et de relaxation interniveaux sont très rapides et efficaces, en tout cas plus rapides que la recombinaison interbande des porteurs<sup>4, 13, 30</sup>.

Pour évaluer les processus de remplissage et de dépeuplement d'un niveau donné, on considère que l'on peut modéliser les cinétiques par la somme d'une exponentielle croissante et d'une exponentielle décroissante. Les temps caractéristiques de montée et de décroissance de la PL sont ainsi décrits par l'équation d'évolution des populations d'un système à trois niveaux (par exemple, niveau de barrière, niveau excité et niveau fondamental)<sup>30, 88</sup>. Le blocage de Pauli est négligé à basse densité d'excitation. La constante de temps la plus courte est attribuée au temps de montée et la plus longue au temps de décroissance<sup>30</sup>.

$$I(t) \propto \frac{1}{\tau_1 - \tau_2} \left( \exp^{-t/\tau_1} - \exp^{-t/\tau_2} \right) \quad (1.2)$$

Cette équation, largement utilisée à cause de sa simplicité, permet d'évaluer de façon assez approximative les temps de montée et de décroissance. Nous verrons dans un autre chapitre comment modéliser plus précisément les processus de relaxation.

La décroissance du signal de PL des différents états confinés dans les boîtes ne correspond pas nécessairement à la décroissance d'une exponentielle unique en partie à cause du remplissage des états et parce que d'autres mécanismes peuvent intervenir. La décroissance des

états excités correspond une combinaison de composantes de relaxation et de recombinaison. La décroissance des signaux observés expérimentalement est d'abord rapide, puis plus lente à plus long temps<sup>4, 89, 90</sup> en contradiction avec les courbes calculées selon différents modèles<sup>91-93</sup>.

Pour une excitation non résonante (excitation à haute énergie, dans les barrières), le temps de montée du signal de la PL est dû à la combinaison de plusieurs mécanismes: le transport des porteurs dans les barrières, la capture par les boîtes, et la relaxation intra-boîtes, jusqu'au niveau considéré. Selon certains auteurs, pour un grand ensemble de BQs d'InAs/GaAs auto-assemblées, le temps de montée observé est indépendant de l'énergie d'excitation (dans les barrières ou en dessous) et aussi indépendant de la taille des BQs<sup>4</sup>. Le temps de montée des niveaux excités est nettement plus rapide ( $< 10$  ps) que celui de l'état fondamental (28 ps). Il serait donc seulement limité par les processus de relaxation à l'intérieur des BQs<sup>4</sup>. D'autres études de photoluminescence résolue en temps de boîtes d'InGaAs/GaAs ont montré que le taux de capture et de relaxation est grand, de l'ordre de  $2 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$  (soit 50 ps), même dans le régime où il y a moins d'une paire électron-trou par boîte et en excitant à une énergie inférieure à celle des barrières<sup>94</sup>.

La relaxation des porteurs dans les BQs est plus longue que dans les systèmes de plus haute dimensionalité par deux ordres de grandeur, mais elle est toujours plus courte que la recombinaison radiative par un ordre de grandeur<sup>30</sup>. D'autres résultats montrent que le temps de montée du signal de PL est semblable dans les BQs et dans un puits quantique de référence, ce qui suggère qu'il existe des mécanismes de relaxation efficaces dans les boîtes<sup>94</sup>.

Par ailleurs, une étude de photoluminescence en champ proche suggère l'existence d'un continuum d'états d'énergie dans les BQs<sup>60</sup>. En effet, les auteurs affirment que la densité d'états pourrait augmenter d'une région 0D sans absorption jusqu'à la région d'absorption de la couche de mouillage. Par conséquent, lorsque l'énergie d'excitation est supérieure à celle des barrières, la rapide relaxation des porteurs dans les BQs pourrait être expliquée par la relaxation des porteurs excités dans les états du continuum, puis par l'émission de phonons. La relaxation par les états du continuum serait plus importante que la relaxation dans les états confinés (basse énergie) des BQs.

Il est intéressant de tenter de dissocier les processus de capture et de relaxation intra-boîtes pour mieux comprendre l'importance de chaque étape. Le temps de capture des barrières

vers les BQs, peut être déterminé expérimentalement en comparant le temps de décroissance du signal de la barrière en présence et en l'absence des BQs, il est estimé à environ 31 ps à 25 K<sup>94</sup>.

La capture peut être caractérisée par une section efficace temporelle proportionnelle au rapport des intensités de la PL des BQs et de la couche de mouillage<sup>11</sup>. Ainsi, les résultats montrent que les collisions entre porteurs jouent un rôle dominant lors de la capture des porteurs de la couche de mouillage vers les états 0D, même à basse densité d'excitation.

L'efficacité des processus de capture est probablement due au fait que la transition se fait d'états continus (dans les barrières) à des états discrets (dans les BQs) et les lois de conservation de l'énergie peuvent être assez facilement satisfaites, par exemple par des processus multiphononiques, contrairement à la relaxation interniveaux qui a lieu entre niveaux discrets.

Les résultats expérimentaux montrent que la capture et la relaxation de porteurs observées dans les BQs sont très rapides, mais les raisons de ce comportement n'ont pas été clairement établies. Selon les échantillons et les conditions expérimentales, différents mécanismes ont été proposés pour expliquer la rapidité de la capture/relaxation: les processus multiphononiques, les collisions entre porteurs, ainsi que des mécanismes faisant intervenir des défauts. Ces mécanismes sont décrits au Chapitre 3.

- *Recombinaison radiative*

Lorsque les mécanismes de capture et de relaxation sont rapides, l'efficacité radiative des boîtes est déterminée par les temps de recombinaison radiatifs des niveaux 0D. Il faut noter que l'efficacité radiative dépend de la température du réseau (Figure 1.17). Elle décroît de façon significative à partir d'environ 130 K (soit  $k_B T = 11$  meV), ce qui peut être expliqué par la dissociation des excitons en porteurs libres et leur activation thermique au-dessus des barrières<sup>95</sup>.

Cependant, des calculs<sup>96</sup> montrent que la dépendance en température (entre 0 K et 100 K) du temps de recombinaison excitonique présente deux régimes: un régime de type 0D (densité d'états discrète) à basse température où le temps de vie des porteurs est constant, et un régime de type 2D (densité d'états "en escalier") à plus haute température où le temps de vie augmente proportionnellement avec la température. De plus, les calculs montrent que l'effet de localisation

dû à la présence de défauts structuraux ne modifie pas la dépendance en température du temps de recombinaison des excitons<sup>96</sup>.

Le temps de vie des porteurs semble plus long dans les BQs d'InGaAs/GaAs auto-assemblées que dans un puits quantique de référence<sup>94, 95</sup>. Ce résultat est en accord avec la prédiction de l'augmentation du temps de vie de l'exciton dans les structures à dimensionnalité réduite, qui est attribuée à un effet de cohérence spatiale fini (variation de la force d'oscillateur de la transition excitonique)<sup>97, 98</sup>. Mais contrairement aux prédictions, Ohnesorge *et al.* observent expérimentalement un temps de vie constant à basse température ( $T < 60$  K) et presque indépendant de la densité d'excitation<sup>94</sup>.

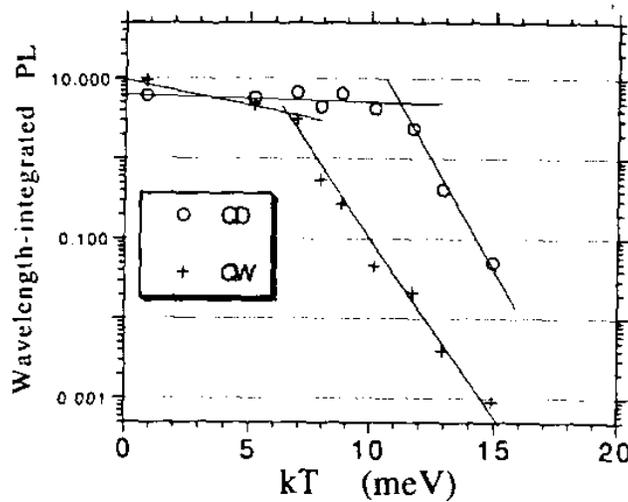


Figure 1.17: Intensité de la photoluminescence en fonction de la température, pour des boîtes quantiques (QD) d'InGaAs/GaAs auto-assemblées comparée à un puits quantique (QW) de référence<sup>95</sup>.

Dans des échantillons ayant une forte densité de boîtes quantiques et présentant une inhomogénéité relativement importante de la taille des boîtes, le temps de recombinaison des porteurs à l'état fondamental est d'environ  $1 \text{ ns}$ <sup>4, 82</sup>. Mais, pour les BQs de plus petite taille parmi l'ensemble inhomogène (énergie de transition plus élevée), le temps de décroissance diminue jusqu'à  $350 \text{ ps}$ <sup>82</sup>. Les auteurs expliquent cette observation par l'existence d'un effet tunnel latéral, des BQs les plus petites vers les plus grosses. Autrement dit, il y aurait un processus de relaxation de l'énergie en cascade parmi les BQs de différentes tailles. Ce processus serait plus rapide que le temps de recombinaison radiative.

En comparant des échantillons ayant un nombre différent de couches de BQs couplées verticalement, d'autres auteurs montrent que le temps de vie radiatif des porteurs augmente avec le nombre de couches, à basse température<sup>99</sup>. De plus, la dépendance en température du temps de vie radiatif est beaucoup plus marquée pour les échantillons multicouches. Les auteurs attribuent ces effets au couplage électronique des électrons et des trous induits par l'alignement vertical des BQs. En effet, le couplage électronique lève la dégénérescence des niveaux et conduit à la formation d'états d'énergie proches<sup>97</sup>. Le temps de vie augmente car la pseudo-délocalisation des fonctions d'onde des électrons et des trous entraîne une diminution de la superposition de leur fonction d'onde. Ces résultats montrent que le temps de vie radiatif des BQs peut être modifié en contrôlant le couplage électronique des électrons et des trous, c'est-à-dire en choisissant adéquatement le nombre de couches et l'épaisseur entre les couches<sup>99</sup>.

Très récemment, des études de BQs d'InAs/GaAs et d'InAs/AlGaAs en champ proche évaluent le temps de vie radiatif d'un exciton à plusieurs nanosecondes en comparant les temps de montée observés et calculés, en fonction de la densité d'excitation<sup>72, 100</sup>. Des canaux non-radiatifs efficaces (dus à la présence d'atomes d'Aluminium) pourraient jouer un rôle important à basse densité d'excitation.

Le long temps de recombinaison des porteurs observé dans les BQs est en accord avec l'augmentation du temps de vie attendue quand les porteurs sont confinés dans les trois dimensions. Le temps de vie est fortement dépendant du couplage entre les boîtes.

### ***1.3.2 Processus multi-phononiques***

- ***Prédictions théoriques***

Dans les structures semi-conductrices de plus haute dimensionalité ayant une densité d'états continue, le mécanisme de relaxation le plus efficace est l'émission de phonons LO. En effet, l'énergie en excès des porteurs peut être transformée en vibrations du réseau par l'émission de phonons de grande énergie (36 meV dans le GaAs).

Plusieurs études suggèrent que puisque la densité d'états est discrète en 0D, et non plus continue comme en 3D, la relaxation des porteurs devrait être fortement ralentie, car les porteurs doivent avoir exactement l'énergie du phonon pour relaxer leur énergie<sup>101, 102</sup>. Ainsi, les électrons des barrières sont capturés dans les états de plus haute énergie des BQs mais ne peuvent relaxer vers des niveaux de plus basse énergie. C'est ce qu'on appelle l'effet du "phonon bottleneck".

Des études théoriques sur la relaxation des porteurs par diffusion de phonons montrent qu'effectivement, les temps de relaxation pourraient être très longs (supérieurs à la nanoseconde), à moins que la loi de conservation de l'énergie puisse être parfaitement satisfaite<sup>102</sup>. Ce long temps de relaxation, de l'ordre du temps de recombinaison radiatif ou non-radiatif, réduirait fortement l'efficacité lumineuse des structures<sup>101-104</sup> car les porteurs des états excités pourraient se recombiner non-radiativement ou retourner dans les états de barrières avant de relaxer vers les états de plus faible énergie. Mais, comme les résultats expérimentaux ont démontré que la relaxation pouvait être très rapide dans les boîtes, d'autres mécanismes plus efficaces ont été envisagés.

Des calculs montrent que la relaxation des porteurs par des processus multiphononiques (notamment ceux faisant intervenir un phonon LO et un phonon LA) peut être significative et rapide ( $< 1$  ns), mais dans une fenêtre d'énergie restreinte de quelques meV (3 meV à 300 K), proche de l'énergie du phonon LO<sup>105</sup>. On peut considérer un processus faisant intervenir davantage de phonons, par exemple deux phonons LO et un phonon LA, mais le taux de diffusion serait plus faible. Ce processus est donc peu efficace<sup>106</sup>. Le mécanisme d'émission multiphononique assisté par des défauts serait plus efficace, mais si ce mécanisme est dominant, la nature de ces défauts reste encore à être déterminée dans des BQs auto-assemblées.

D'autres calculs montrent que le taux de diffusion exciton-phonon LA diminue fortement quand la séparation interniveaux augmente et donc la relaxation par émission de phonon LA devient de moins en moins efficace (Figure 1.18)<sup>104</sup>.

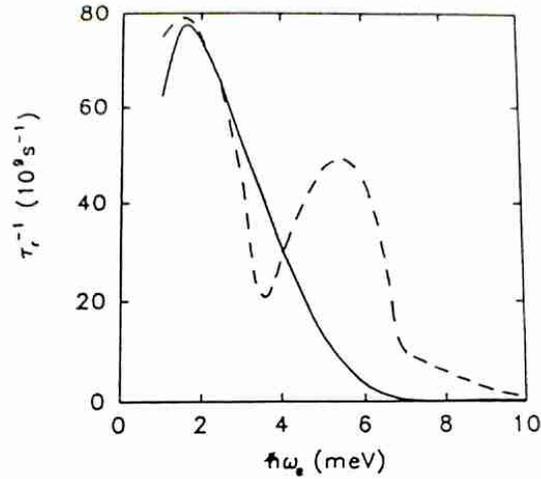


Figure 1.18: Réduction du taux de relaxation du premier (ligne continue) et du deuxième (ligne pointillée) niveau excité calculé pour des BQs de GaAs/GaAlAs<sup>104</sup>.

De nouveaux calculs basés sur le couplage électron-phonons, montrent finalement que le taux de relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques peut être important dans une large fenêtre d'énergie de plusieurs dizaines de meV autour de l'énergie du phonon LO, à la température ambiante (Figure 1.19)<sup>107</sup>. Effectivement, en tenant compte de la décroissance des phonons optiques en phonons acoustiques volumiques, des calculs montrent que le taux de relaxation est supérieur à  $10^{10} \text{ s}^{-1}$  (soit un temps inférieur à 100 ps)<sup>107, 108</sup>. Donc ce mécanisme de relaxation multiphononique pourrait bien expliquer l'efficacité de la relaxation dans les BQs.

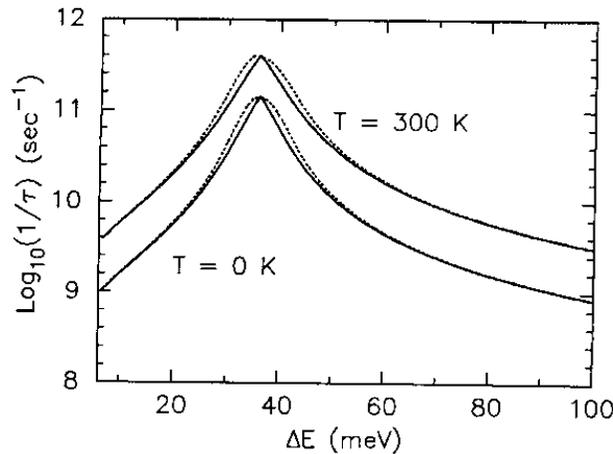


Figure 1.19: Taux de relaxation électronique entre le premier état excité et le niveau fondamental, en fonction de l'énergie interniveaux<sup>107</sup>.

En effet, un mode électron-phonon durable (appelé polaron) peut se former en régime de fort couplage. Selon de récentes études, celui-ci peut être faiblement perturbé par des interactions avec le continuum des autres modes de phonons<sup>109</sup>. Ainsi, le processus de relaxation dépend non seulement du couplage électron-phonon LO, mais aussi des interactions phonon-phonon. Les calculs montrent que, grâce à ces perturbations, un électron dans un état excité d'une BQ peut relaxer vers l'état fondamental, même si l'énergie interniveaux est assez différente de l'énergie du phonon optique (de 28 à 44 meV pour un phonon LO de 36.4 meV).

- *Ralentissement de la relaxation ou "phonon bottleneck"*

Certains chercheurs affirment avoir effectivement observé un ralentissement de la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques.

Expérimentalement, Gfroerer *et al.* observent un ralentissement de la relaxation interniveaux, lorsque l'énergie entre deux niveaux est faible, pour des BQs induites par contraintes<sup>110</sup>. En revanche, le taux de relaxation augmente fortement quand l'énergie interniveaux excède environ 20 meV. De même, pour différents systèmes de boîtes auto-assemblées, des expériences de photoluminescence résolue en temps ont aussi montré une lente relaxation des porteurs de plusieurs centaines de picosecondes<sup>54, 90, 93</sup>.

D'autre part, Mukai *et al.* interprètent l'apparition des niveaux excités avant la saturation des niveaux de basse énergie comme une évidence pour la relaxation retardée des porteurs dans des BQs d'InGaAs/GaAs<sup>54</sup>. D'autres chercheurs observent une augmentation du temps de montée de la PL quand l'excitation est résonante, ce qu'ils attribuent à la présence du "phonon bottleneck" dans les BQs<sup>93</sup>.

Un ralentissement de la relaxation intrinsèque aux BQs ou "phonon bottleneck" pourrait donc exister dans le sens où la relaxation est beaucoup plus faible dans les BQs que dans les puits quantiques où le temps de relaxation intersousbande est inférieur à 1 ps<sup>111</sup>. Mais la forte émission radiative des boîtes en photoluminescence et les mesures de PL résolue en temps montrent que la relaxation des porteurs (par diffusion multiphononique ou autre) peut être rapide et efficace<sup>60, 53, 62, 66, 72, 73, 86, 95</sup>.

- *Résonances phononiques*

Plusieurs articles rapportent des observations expérimentales de résonances phononiques clairement identifiées dans des boîtes quantiques. Ainsi, des auteurs observent une augmentation de l'amplitude du signal de PL à certaines énergies, quand la condition de relaxation par l'énergie d'un phonon particulier est remplie<sup>22</sup>. La participation de différents types de phonons LO et LA pourrait alors permettre la relaxation efficace des porteurs d'un niveau (Figure 1.20)<sup>22</sup>.

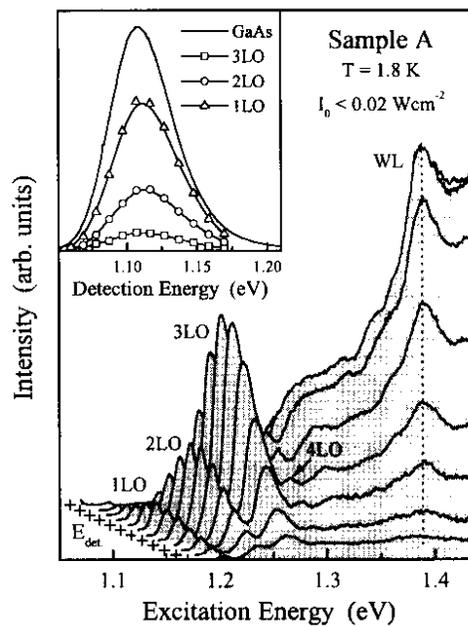


Figure 1.20: Spectres d'excitation de la photoluminescence obtenus à différentes énergies de détection (marquées par des croix). À l'intérieur, spectres de PL pour des excitations au maximum des résonances 1LO, 2LO et 3LO et au dessus du gap du GaAs<sup>4</sup>.

Des transitions multiphononiques ont aussi été observées dans des spectres de PL sous excitation presque résonante<sup>53, 112, 113</sup>. Pour des BQs d'InAs/GaAs, jusqu'à quatre répliques de phonons LO ont été résolues. De plus, les modes de phonons LO peuvent être associés aux différentes régions de la structure: BQs, couche de mouillage et GaAs (Figure 1.21)<sup>61</sup>.

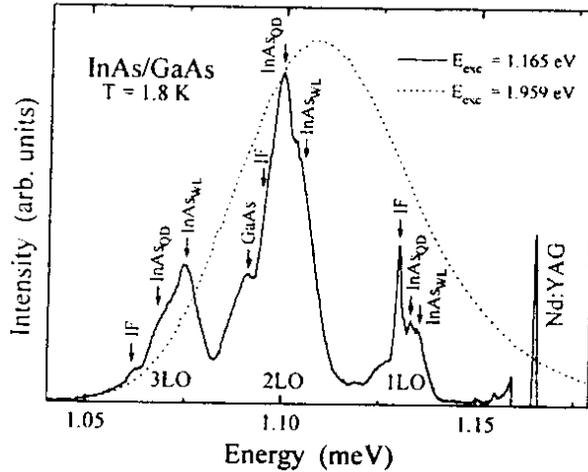


Figure 1.21: Spectre de photoluminescence de BQs d'InAs excitées au dessus de la barrière de GaAs (1.959 eV) et au dessous (1.165 eV)<sup>114</sup>.

D'autres résultats expérimentaux obtenus pour des BQs d'InAs/GaAs par magnéto spectroscopie dans l'infra-rouge lointain ont montré que les électrons et les phonons LO sont toujours fortement couplés<sup>115</sup>.

Lors de l'étude d'une BQ unique d'InP/GaInP, l'interaction avec les phonons a été mise en évidence en photoluminescence (PL et PLE) par l'observation de raies séparées par environ 40 meV, présentes même à très basse densité d'excitation<sup>49</sup>. La largeur de raie est relativement large (2 meV) et est indépendante de l'énergie et de la densité d'excitation. Le temps de vie de la transition est d'environ 0.7 ns ce qui correspond à un élargissement de 1  $\mu$ eV. Selon les auteurs, le couplage avec des phonons peut être la cause de l'élargissement de la transition, si l'énergie des porteurs à relaxer est légèrement différente de l'énergie du phonon présent.

Une autre étude concernant des mesures en champ proche de boîtes d'InGaAs/GaAs rapportent des résultats semblables<sup>60</sup>. Des transitions faisant intervenir soit un, soit deux phonons ont été clairement identifiées (à respectivement 36 meV et 65 meV), par photoluminescence d'excitation (PLE). Mais l'observation de ces résonances signifie-t-elle que la relaxation est plus efficace quand l'énergie interne correspond à un multiple de l'énergie d'un phonon?

- *Efficacité des processus phononiques*

Le ralentissement de la relaxation des porteurs dans les BQs, ou effet du "phonon bottleneck", est toujours controversé car tous les résultats expérimentaux ne concordent pas. Les temps de relaxation relativement rapides observés par certains groupes vont à l'encontre du ralentissement prédit et observé par d'autres.

Ainsi, dans de petites BQs (base de 14 nm) ayant un espace interniveaux beaucoup plus grand que l'énergie du phonon LO, le temps de relaxation observé est très court (environ 5 ps pour l'électron et 0.6 ps pour le trou) même à basse densité d'excitation où seule l'émission phononique serait efficace<sup>116</sup>. Pour des BQs plus large (diamètre de 43 nm), le temps de relaxation est inférieur à 20 ps<sup>117</sup>.

D'autre part, des chercheurs ont comparé les cinétiques obtenues à la même énergie de détection mais à différentes énergies d'excitation correspondant soit à des résonances de phonons LO, soit hors résonance (au dessus de la raie d'émission considérée), pour un ensemble de BQs auto-assemblées d'AlInAs/AlGaAs<sup>113</sup>. Ils observent clairement une diminution du temps de décroissance lorsque l'émission des BQs correspond à une résonance phononique ou multiphononique, ce qu'ils attribuent à l'efficacité de ces processus. Selon les auteurs, ces résultats montrent l'importance des résonances phononiques pour accélérer la relaxation dans certaines conditions d'excitation<sup>113</sup>.

En étudiant le temps de montée de la PL en fonction de la température et de la densité d'excitation, Ohnesorge et al. montrent l'importance de la relaxation via les phonons LA, à basse densité d'excitation (Figure 1.22)<sup>94</sup>. En effet, les résultats montrent que le temps de montée du signal de PL est sensiblement dépendant de la température à basse excitation. Cette dépendance peut être reproduite, à l'aide de la règle d'Or de Fermi, en considérant dans le calcul que les phonons LA ayant un taux de relaxation maximal dominant la dépendance en température du taux d'émission total, par la distribution de Bose des phonons LA en considérant une énergie caractéristique de 2.7 meV. Cette énergie est comparable à la valeur limite calculée ( $\hbar\omega_k^{\max} = 2.8$  meV) en considérant le taux d'émission maximum de phonons LA dans la direction de plus fort confinement des boîtes. Donc le processus de relaxation observé semble lié à une taille de boîtes spécifique et permet des taux d'émission maximum. Les résultats expérimentaux suggèrent que le processus de relaxation faisant intervenir des phonons LA est particulièrement efficace à basse densité d'excitation.

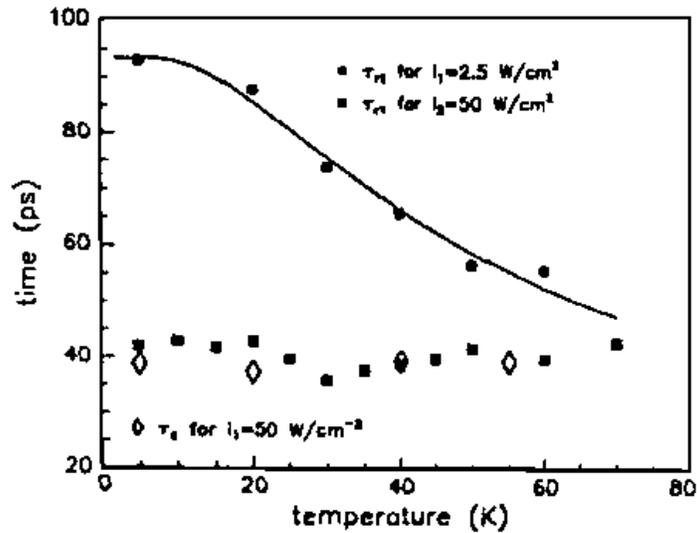


Figure 1.22: Dépendance en température des temps de montée de la PL à basse et forte excitation pour des BQs auto-assemblées d'InGaAs/GaAs<sup>94</sup>.

Une grande controverse persiste sur l'importance de la relaxation via des processus phononiques. Contrairement aux premiers calculs qui prédisaient un faible taux de diffusion à cause de la densité d'états discrète dans les BQs<sup>102, 105</sup>, un mode de fort couplage électron-phonons a aussi été suggéré<sup>109</sup>. Les résultats expérimentaux sont contradictoires, certains chercheurs ayant clairement observé des résonances avec des phonons, d'autres n'ayant pu les distinguer. Cela est probablement dû au fait que l'importance du couplage électron-phonon dépend à la fois du système de boîtes quantiques (propriétés structurales) et des conditions expérimentales (énergie et densité d'excitation, température).

### 1.3.3 Collisions entre porteurs, mécanismes Auger

Du fait de l'importance du confinement tridimensionnel, on peut s'attendre à ce que les interactions entre porteurs ou mécanismes de type Auger deviennent plus importantes dans les BQs que dans les systèmes de plus haute dimensionalité (puits quantiques 2D, matériaux volumiques 3D), et en particulier lorsqu'on réduit les dimensions des nanostructures<sup>118</sup>. Ces mécanismes ont aussi été proposés pour expliquer la rapidité de la relaxation rapportée par certains chercheurs.

Les mécanismes de diffusion entre porteurs peuvent, en effet, causer une redistribution en énergie des porteurs dans tout le système électronique. Cette redistribution peut permettre à un grand nombre de porteurs d'accéder à certains canaux de relaxation particulièrement efficaces. Des résultats expérimentaux montrent que ces mécanismes de diffusion jouent un rôle majeur dans les BQs uniques de GaAs/GaAlAs même à de très faibles densités d'excitation<sup>119</sup>.

Le rôle des mécanismes Auger a aussi été clairement mis en évidence lors de l'étude d'un ensemble de BQs d'InGaAs/GaAs<sup>94</sup>. En fait, lorsqu'ils observent le temps de montée de la PL en fonction de la densité d'excitation (à basse température), Ohnesorge *et al.* distinguent clairement deux régimes (Figure 1.23): à basse densité d'excitation, le temps de montée est constant, puis il commence à décroître radicalement à partir d'une certaine densité d'excitation. La dépendance du temps de montée en fonction du nombre de porteurs dans les BQs est caractéristique des processus Auger dus aux collisions entre porteurs. Ces processus ne semblent pas dépendre de la température (Figure 1.22). Selon les auteurs, ces mécanismes dominent les processus multiphononiques à forte densité d'excitation, si bien que capture et relaxation interniveaux sont alors régis par les collisions entre porteurs<sup>94</sup>.

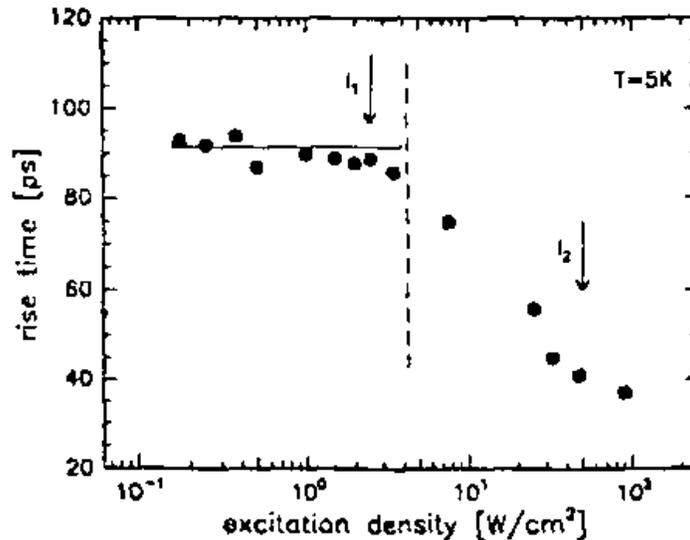


Figure 1.23: Temps de montée de la PL de BQs auto-assemblées d'InGaAs/GaAs en fonction de la densité d'excitation, à basse température<sup>94</sup>.

D'autres études théoriques et expérimentales montrent que, dans un régime de forte excitation, des processus Auger permettraient une rapide capture et relaxation des porteurs avec un temps typique de quelques dizaines ou quelques centaines de picosecondes<sup>94, 118, 120</sup>.

D'autre part, selon les calculs de Bockelmann et Egeler, les taux de collisions entre porteurs confinés dans une BQ et le plasma non-confiné dans les barrières augmente beaucoup avec la température. Puisque le plasma peut efficacement échanger de l'énergie avec le bain de phonons, on peut s'attendre à ce que la capture et la relaxation interniveaux soient particulièrement rapides à haute température, lorsque des mécanismes Auger faisant intervenir des porteurs de la couche de mouillage sont efficaces. De plus, quand l'énergie thermique devient supérieure à l'énergie interniveaux, les taux de diffusion augmentent fortement.<sup>120</sup>

De nombreux types de collisions porteur-porteur peuvent se produire, faisant intervenir des collisions entre porteurs de différentes régions (BQs et/ou barrières), et entre porteurs de charge identique ou différente<sup>121</sup>. Comme ces mécanismes permettent non seulement la relaxation intra-boîte, mais aussi la capture des porteurs de la couche de mouillage<sup>120</sup>, nous allons différencier les mécanismes affectant la relaxation interniveaux et les mécanismes affectant la capture des porteurs.

- *Mécanismes affectant la relaxation interniveaux*

Des auteurs suggèrent que la diffusion électron-trou peut jouer un rôle important sur l'efficacité de la relaxation de l'énergie des porteurs dans les boîtes<sup>106, 122</sup>. Lorsque la relaxation des trous est plus efficace que celle des électrons (énergie interniveaux réduite dans la bande de valence), les trous peuvent relaxer très rapidement<sup>106</sup>. Dans ce cas, les électrons chauds des états excités peuvent transférer une partie de leur énergie en excès aux trous et ainsi relaxer vers des états de plus basse énergie. Si le temps de vie du trou est d'environ 1 ps, alors la relaxation interniveaux électronique sera d'environ 100 ps<sup>106</sup>.

Expérimentalement, des interactions électron-trou ont été mises en évidence dans des nanocristaux semiconducteurs de CdSe<sup>122</sup>. En étudiant la relaxation du niveau 1P au niveau 1S, les auteurs observent clairement que la relaxation interniveaux ralentit quand ils introduisent des

états de surface de trous (pièges à trous). Ces résultats montrent clairement l'importance du rôle joué par les trous et l'importance du couplage électron-trou lors de la relaxation des porteurs<sup>122</sup>. D'autre part, la diffusion électron-électron aussi est très probable et pourrait permettre à des électrons des états excités de relaxer en donnant leur énergie à des électrons chauds du continuum.

D'autres auteurs ont considéré la relaxation interniveaux de porteurs faisant intervenir la collision de deux porteurs initialement dans un état excité dont l'un relaxe vers un niveau inférieur et l'autre porteur est éjecté vers un état du continuum de la couche de mouillage. Leurs calculs montrent que ce type de relaxation Auger intra-boîte est extrêmement efficace (temps caractéristique d'environ 1 ps), dès que deux porteurs se trouvent dans les états excités des BQs<sup>123</sup>.

Si on considère la relaxation d'un porteur dans une BQ par l'interaction avec un porteur de la couche de mouillage, des calculs montrent que les taux de relaxation Auger sont proportionnels à la densité de porteurs 2D<sup>124</sup>. Le coefficient Auger augmente avec la température car l'effet d'écran (des porteurs 3D) devient alors plus faible, si bien que les porteurs dans la BQ peuvent interagir plus efficacement avec les porteurs 2D de la couche de mouillage. En considérant une densité de porteurs 2D de  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , le taux de relaxation Auger correspondant est de  $10^{11} \text{ s}^{-1}$ , soit un temps caractéristique très rapide de 10 ps<sup>124</sup>.

- *Mécanismes affectant la capture*

Deux types de processus peuvent être considérés pour la capture des porteurs par mécanismes Auger: 1) la collision entre deux porteurs de la CM, l'un est capturé dans la BQ et l'autre reste dans la CM, et 2) la capture d'un type de porteurs due à l'interaction avec l'autre type de porteurs déjà confiné dans la BQ, qui peut ainsi s'échapper dans la CM<sup>121</sup>.

Les coefficients de capture Auger peuvent être calculés à partir de la règle d'Or de Fermi, en déterminant les sections efficaces différentielles pour la diffusion coulombienne<sup>121</sup>. Les résultats montrent que la capture Auger due à la collision entre électrons serait plus efficace que celle entre trous, quand on considère deux porteurs initialement dans la couche de mouillage, l'un

étant ensuite capturé dans la BQ tandis que l'autre est excité dans la couche de mouillage. Un temps de capture de 1-100 ps a été calculé<sup>121</sup>.

Des résultats expérimentaux montrent que le taux de capture des porteurs de la couche de mouillage vers les états des BQs est dominé par les processus Auger, même à basse densité d'excitation. En effet, l'efficacité de la capture augmente linéairement avec la densité d'excitation dans la couche de mouillage grâce aux processus Auger, avant de diminuer quand les états des BQs deviennent saturés de porteurs<sup>11</sup>. À forte excitation et à température ambiante, des auteurs estiment le temps de capture à 0.72 ps pour des boîtes quantiques interdiffusées<sup>117</sup>.

De manière semblable, pour une excitation non-résonante (au dessus des barrières) des BQs, une diminution du temps de montée de la PL du niveau fondamental est observée lorsque la densité de porteurs augmente<sup>125</sup>. Cette dépendance est caractéristique des processus Auger. Mais cette dépendance disparaît lorsque les BQs sont excitées à une énergie inférieure à celle des barrières et les temps de montée restent élevés. Ces résultats mettent en évidence l'importance des interactions entre porteurs 0D et 2D pour augmenter l'efficacité des processus Auger et en particulier pour faciliter la capture des porteurs dans les boîtes.

Les interactions entre porteurs sont très importantes pour les performances des dispositifs à base de BQs. En particulier, deux types de mécanismes Auger peuvent jouer un rôle important: la capture et le transfert de porteurs entre boîtes quantiques<sup>126</sup>. La capture par effet Auger résulte de la collision entre deux porteurs de la couche de mouillage. Le transport correspond à l'interaction entre un porteur dans une BQ et un porteur dans la CM, celui qui était dans la BQ s'échappe dans la CM et celui qui était dans la CM est capturé par une BQ voisine. Uskov *et al.* ont démontré que la capture et le transfert de porteurs entre deux BQs (par effet Auger) peut fournir un pompage efficace et une modulation rapide aux structures laser<sup>126</sup>.

Du fait de l'importance des interactions entre porteurs 0D et 2D, les mécanismes de collisions entre porteurs (ou processus Auger) peuvent augmenter fortement l'efficacité de la capture et de la relaxation des porteurs dans les boîtes. Mais le seuil à partir duquel ces mécanismes deviennent importants n'a pas été clairement identifié.

### *1.3.4 Mécanismes assistés par les défauts*

Pour expliquer l'efficacité inattendue de la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques, des chercheurs ont aussi considéré le couplage des électrons des états excités d'une BQ à un défaut ponctuel proche de la barrière<sup>61</sup>. Ainsi, il pourrait exister un canal de recombinaison non radiatif (par l'intermédiaire des défauts) efficace, en compétition avec la relaxation à l'intérieur des BQs.

Certains auteurs ont observé que l'intensité du signal de PL des états excités décroît très rapidement (quelques dizaines de picosecondes) dans des conditions de saturation d'un système de BQs<sup>4</sup>. Ils expliquent cet effet par l'existence d'un canal de recombinaison non-radiatif efficace lié à la présence de défauts. Il est possible qu'il y ait un transfert d'énergie vers des défauts profonds situés dans le voisinage des BQs. En effet, la délocalisation grandissante des porteurs dans les états excités, et en particulier dans la couche de mouillage, peut augmenter la probabilité de capture et de recombinaison non-radiative des porteurs par ces centres profonds.

Des calculs montrent que le temps de transfert entre des BQs d'InGaAs et des défauts profonds dans la barrière de GaAs serait de quelques centaines de picosecondes pour une distance de séparation BQ-défaut inférieure à dix nanomètres<sup>127</sup>. Cela renforce la possibilité de recombinaison non-radiative. Il est possible que des défauts profonds se forment dans la couche de recouvrement de GaAs, dans la couche de mouillage d'InAs à cause des champs de contraintes dus à la formation des BQs, ou bien qu'ils soient dus à la croissance à basse température du GaAs.

La recombinaison non-radiative n'a pas été observée dans des BQs semblables mais de plus petite taille, avec une couche de mouillage plus fine<sup>3, 6</sup>. Donc, selon les auteurs, elle serait reliée au processus de fabrication. Compte tenu de la très faible concentration de défauts dans les structures de BQs auto-assemblées actuellement fabriquées, la recombinaison non-radiative est généralement considérée comme négligeable<sup>11</sup>.

Cependant, de récentes observations un peu surprenantes pourraient confirmer la présence de défauts dans les BQs. En effet, des chercheurs ont observé que certaines BQs n'émettent pas de façon continue mais plutôt de façon intermittente<sup>128</sup>. L'étude du signal émis a montré qu'il s'agit d'un "signal de télégraphe aléatoire" faisant intervenir deux niveaux discrets "on" et "off" (Figure 1.24), sur une échelle de temps de quelques secondes. L'intensité de l'état "on" varie

linéairement avec la densité d'excitation, par conséquent le nombre de porteurs capturés dans les BQs est proportionnel à la densité d'excitation. Par contre le taux de changement varie supralinéairement, ce qui peut être expliqué par le fait que le processus d'intermittence fait intervenir plusieurs particules. Les auteurs ont attribué cet effet à l'interaction des porteurs avec des défauts photoactivés, métastables, mobiles et non-radiatifs, présents dans l'échantillon. La dépendance en température de l'intermittence laisse présager une activation multiphononique.

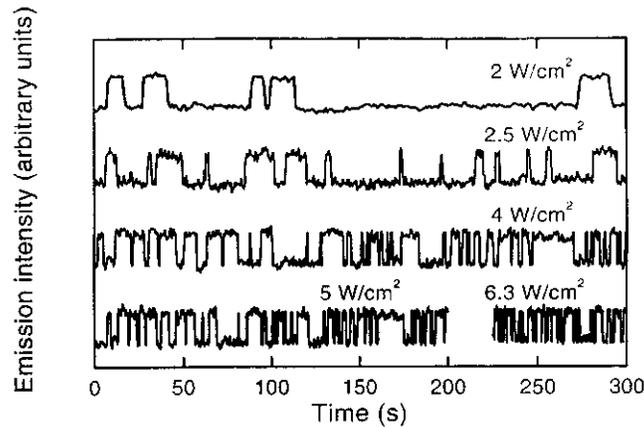


Figure 1.24: Intermittence du signal émis par des BQs d'InP/GaInP à différentes densités d'excitations<sup>128</sup>.

Plusieurs articles théoriques suggèrent que des centres d'impuretés situés près des BQs pourraient agir comme des mécanismes de relaxation particulièrement rapides. Un modèle montre qu'un processus de relaxation de l'énergie non-radiative assisté par des défauts semble être efficace pour de très petites BQs<sup>129</sup>. Une transition entre un état de défaut et l'état fondamental de la BQ pourrait s'effectuer en moins d'une picoseconde pour un écart en énergie de plusieurs dizaines de meV. Par conséquent, la relaxation d'un état excité d'une BQ vers l'état fondamental serait possible s'il existe un état de défaut proche, d'énergie intermédiaire entre celles de deux états 0D, car la capture de l'état excité vers l'état de défaut devrait être encore plus rapide.

D'autres auteurs montrent que la présence d'un état de piège profond couplé à une BQ peut permettre à un électron de relaxer rapidement<sup>127</sup>. Un processus de capture dans un piège, par effet tunnel assisté par des phonons, peut permettre la relaxation d'un électron vers le niveau fondamental de la BQ. La relaxation pourrait se produire par un processus non radiatif séquentiel: l'électron est capturé par un état du défaut qui relaxe à un niveau de plus faible énergie par

émission multiphononique et l'électron est alors recapturé par la BQ (par effet tunnel)<sup>4, 130</sup>. Autrement dit, le défaut sert d'"ascenseur" pour l'électron. Les résultats suggèrent que ce processus de couplage et de relaxation par les défauts est efficace même à basse température. Un taux supérieur à  $10^{10} \text{ s}^{-1}$  est effectivement obtenu à 4 K<sup>130</sup>. La persistance de ce mécanisme à basse température serait due à la capture et à l'émission par effet tunnel, à travers la barrière d'activation du défaut. Ce processus nécessite une distribution spatiale des défauts fortement corrélée à celle des BQs, par la formation d'états d'interface ou de défauts ponctuels dus à la fabrication<sup>130</sup>.

D'autres calculs ont confirmé l'efficacité de la relaxation de l'énergie dans les BQs par des états de défauts<sup>129</sup>. Les résultats indiquent que le taux de relaxation peut être supérieur à  $10^{12} \text{ s}^{-1}$  et que ce mécanisme serait efficace dans un domaine de quelques dizaines de meV. Il faut noter que ces modèles considèrent des BQs de très petites tailles (quelques nanomètres) bien inférieures aux BQs obtenues par la technique d'auto-assemblage.

Ainsi, le couplage des porteurs avec des défauts pourrait être très efficace. Cependant, le nombre de défauts, en particulier dans les BQs fabriquées par auto-assemblage, est à priori très faible. Ce sujet a été relativement peu étudié en détails, et il est donc difficile de juger de l'importance réelle de ce mécanisme. Mais il faut noter qu'une étude très récente sur l'effet de l'irradiation de BQs suggère que les défauts peuvent jouer un rôle important sur l'émission radiative des boîtes<sup>131</sup>.

### ***1.3.5 Émission thermique***

Lorsqu'on augmente la température des échantillons de BQs, on observe qu'à partir d'une certaine température (environ 100 K), les propriétés optiques se dégradent: l'intensité de la photoluminescence du signal émis par les boîtes diminue et le temps de décroissance de la PL devient beaucoup plus court. De plus, le pic associé à l'émission des BQs se décale vers les plus basses énergies (Figure 1.25).

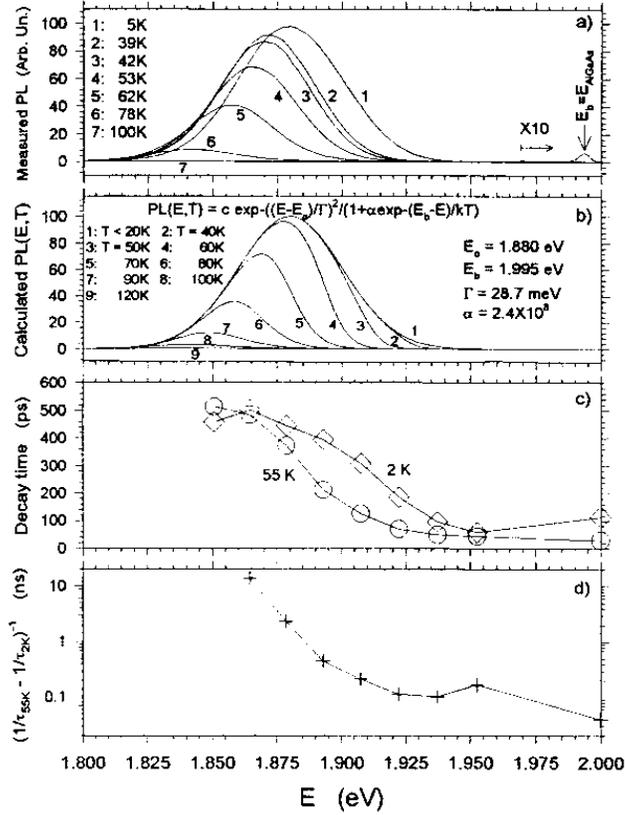


Figure 1.25: Effet de l'émission thermique de BQs d'AlInAs/AlGaAs auto-assemblées. (a) Spectres de PL mesurés. (b) Spectres de PL calculés (c) Temps de décroissance du signal de PL et (d) Taux d'émission thermique des BQs à différentes énergies<sup>132</sup>.

Ces observations sont attribuées à l'activation thermique des porteurs confinés dans les BQs. Les porteurs 0D peuvent donc s'échapper vers des niveaux excités, des niveaux de barrière ou des états de défauts. Cet effet est observé pour la plupart des échantillons de BQs mais l'importance de ce phénomène, la température-seuil et l'énergie d'activation peuvent varier<sup>30, 132</sup>.

Pour des échantillons présentant des fluctuations importantes de la taille des BQs, des chercheurs observent, à des températures intermédiaires, un transfert de porteurs des BQs de petites tailles (énergie de transition à plus haute énergie) vers les BQs de plus grandes tailles, par l'intermédiaire d'états de la couche de mouillage<sup>84, 85</sup>. Pour les échantillons étudiés, l'énergie d'activation pour ce transfert de porteurs est d'environ 10 meV<sup>84</sup>. L'observation de spectres discrets de BQs en fonction de la température, montre aussi que l'émission thermique de porteurs en dehors des BQs, vers la couche de mouillage est responsable de la décroissance de l'intensité

du signal de PL. En effet, l'énergie d'activation correspond approximativement à la différence en énergie entre la bande interdite de la barrière et le pic d'émission des boîtes<sup>132</sup>.

Une autre étude permet de déterminer l'influence de la température sur le temps de décroissance du signal de PL (Figure 1.26)<sup>133</sup>. Les auteurs observent que le temps de décroissance du signal de PL est constant à très basse température, puis qu'il commence à décroître à partir d'une température-seuil, et que cette valeur-seuil augmente quand l'énergie d'émission des BQs diminue (BQs plus grandes). Ces observations suggèrent que la dépendance en température du temps de décroissance est due à l'activation thermique de l'émission de porteurs ou d'excitons de BQs qui sont transportés dans la couche de mouillage puis re-capturés par d'autres BQs.

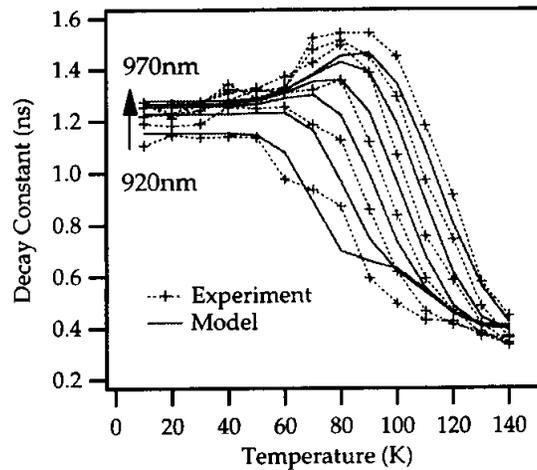


Figure 1.26: Temps de décroissance du signal de PL de BQs auto-assemblés d'InAs/GaAs en fonction de la température sous excitation dans la couche de mouillage. La longueur d'onde d'émission se décale vers le rouge avec la température comme l'énergie de la bande interdite<sup>133</sup>.

À partir de 60 K, le taux d'émission thermique devient de plus en plus important pour les transitions de plus hautes énergies (petites BQs), ce qui conduit à une diminution drastique du temps de décroissance (courbe à 920 nm). En même temps, les porteurs éjectés des petites boîtes peuvent être capturés par d'autres BQs plus grandes qui vont alors se remplir, ce qui augmente le

temps de décroissance de ces BQs à basses énergies. Cet effet peut expliquer l'augmentation du temps de décroissance observé entre 60 K et 90 K pour les plus grandes BQs (courbe à 970 nm).

Puis, à plus haute température, les porteurs des niveaux de basse énergie sont aussi activés thermiquement, ce qui cause la décroissance du signal de PL. Les chercheurs estiment que l'énergie d'activation du processus d'émission thermique est lié à la différence en énergie des bandes interdites des BQs et de la couche de mouillage<sup>133</sup>.

Selon Marcinkevicius et Leon, le temps de vie des porteurs est dominé par la recombinaison radiative à basse température, tandis qu'à partir d'environ 150 K, la ré-émission thermique des porteurs devient dominante<sup>117</sup>. Le fait de recuire les échantillons à 950°C diminue dramatiquement le temps de décroissance des porteurs (par un facteur quatre)<sup>117</sup>. Cet effet est probablement dû à la variation de taille et de composition des BQs, à la variation de l'énergie de liaison de l'exciton due au plus faible potentiel de confinement, et peut être au fait que la recombinaison non-radiative par des défauts d'interface activés pendant le recuit augmente.

La rapide diminution du temps de décroissance du signal de PL observée à haute température suggère que le taux de ré-émission thermique des porteurs doit être important. Cependant, la saturation du temps de décroissance observée à haute température est contradictoire avec la loi exponentielle d'activation thermique des porteurs. Cela peut être dû à la re-capture efficace des porteurs des barrières ou des états de défaut.

Lorsque la température de l'échantillon est suffisamment élevée, les porteurs confinés dans les boîtes peuvent s'échapper dans les barrières par ré-émission thermique. Ce phénomène, qui peut se produire à partir d'une température plus ou moins élevée selon l'échantillon considéré, réduit fortement l'intensité lumineuse des boîtes à haute température et peut ainsi nuire aux applications à température ambiante.

## ***1.4 Conclusions***

Depuis qu'il est possible de fabriquer des BQs de bonne qualité, de nombreuses études tant au niveau théorique qu'expérimental, ont été réalisées. Avec l'optimisation des techniques de fabrication, les propriétés optiques se sont beaucoup améliorées et il est devenu possible de clairement mettre en évidence la nature 0D des BQs et d'étudier leurs propriétés spécifiques.

Ainsi, l'observation d'un spectre de raies discrètes est une claire signature de la densité d'états discrète due au confinement 0D des porteurs. Le principal intérêt de ces structures repose sur la possibilité d'en modifier les propriétés à volonté, sans nuire aux propriétés optiques. Plusieurs phénomènes très intéressants liés à la relaxation de l'énergie des porteurs, tant au niveau des interactions entre particules que de la dynamique des porteurs, ont été observés.

Cependant, de nombreuses controverses existent encore, en particulier concernant le rôle des phonons lors de la relaxation des porteurs. Des résultats contradictoires ont été obtenus qui empêchent une bonne compréhension des phénomènes qui se produisent dans les BQs. De plus de nombreux points sont encore obscurs, notamment: l'importance relative des différents mécanismes de relaxation, l'importance des interactions entre les porteurs confinés dans les BQs et les porteurs des barrières, ainsi que l'importance des propriétés structurelles (géométrie des boîtes, défauts d'interface, etc.) sur les propriétés optiques.

D'autres expériences de spectroscopie optique et une meilleure modélisation des cinétiques sont nécessaires afin de tenter d'éclaircir les point mentionnés, et d'obtenir une image plus précise de l'importance relative des différents mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs dans les boîtes quantiques.

# Chapitre 2

## Analyse expérimentale

### *2.1 Objectifs*

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, de nombreuses controverses existent encore concernant les processus de relaxation mis en jeu lors de la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques. Afin de clarifier le rôle des principaux mécanismes de relaxation dans les boîtes quantiques étudiées, une étude détaillée a été réalisée par photoluminescence résolue dans le temps. L'influence de différents paramètres structuraux et expérimentaux a été examinée pour les différents niveaux d'énergie du système, par une étude systématique des temps de relaxation en fonction de la température de l'échantillon et de la densité d'excitation, pour des échantillons ayant différentes énergies interniveaux. En particulier, le rôle des mécanismes Auger, des processus multiphononiques ont été étudiés, ainsi que d'autres mécanismes pouvant influencer sur la relaxation, comme la ré-émission thermique, la diffusion et la localisation des porteurs dans les couches supérieures. L'importance relative et le domaine d'efficacité de chacun de ces processus ont aussi été déterminés. De plus, on discutera de l'efficacité du ralentissement de la relaxation phononique des porteurs ("phonon bottleneck"), phénomène intrinsèque aux boîtes quantiques prédit par la théorie, mais encore très largement controversé.

Dans un premier temps, on présentera une description des échantillons, de la technique de recuit et des techniques de caractérisations optiques. Puis, des observations corrélées aux

principales propriétés optiques liées à la nature des boîtes seront détaillées. Finalement, les résultats obtenus concernant la dynamique des porteurs dans les boîtes seront analysés en tenant compte des différents mécanismes de relaxation susceptibles d'intervenir, selon les conditions expérimentales.

## *2.2 Procédure expérimentale*

### *2.2.1 Les échantillons*

Des résultats différents, parfois contradictoires, sont décrits dans la littérature par des groupes ayant étudié des systèmes de boîtes quantiques différents. Il est donc particulièrement intéressant d'étudier et de comparer les résultats obtenus pour des échantillons fabriqués par des techniques différentes. Nous avons étudiés plusieurs échantillons provenant de deux laboratoires différents:

- 1) Département de Génie des Matériaux Électroniques, Université Nationale Australienne, Canberra (collaboratrices: Rosa Leon\* et Charlene Lobo)
- 2) Institut des Sciences des Microstructures, Conseil National de Recherche du Canada, Ottawa (collaborateur: Simon Fafard)

Dans les deux cas, les échantillons ont été fabriqués par le mode de croissance Stranski-Krastanow qui permet la formation d'îlots auto-assemblés contraints de manière cohérente. Lorsqu'on dépose une faible épaisseur d'un matériau de paramètre de maille différent de celui du substrat, il se forme d'abord une couche homogène fortement contrainte, puis à partir d'une certaine épaisseur correspondant à quelques monocouches, cette couche se transforme en une multitude d'îlots d'aspect semblable et de taille nanométrique avec une distribution spatiale quasi-aléatoire, afin de minimiser les contraintes. Ces îlots sont appelés points ou boîtes

---

\* Actuellement au Jet Propulsion Laboratory, NASA, Pasadena, USA

quantiques. Ils reposent sur une très faible couche de matériau contraint appelée couche de mouillage. Dans le premier laboratoire, la croissance a été réalisée par MOCVD (metalorganic chemical vapor deposition, ) et dans le second par MBE (épitaxie par jets moléculaires). Ces techniques permettent la fabrication de BQ contenant très peu de défauts.

Selon leurs propriétés optiques, on peut ainsi distinguer deux types de boîtes quantiques, pas nécessairement liées à la technique de fabrication mais plutôt aux paramètres de croissance. Le premier est caractérisé par une raie d'émission très large correspondant aux différentes transitions optiques des boîtes et qui est observée à plus basse énergie que la raie de la couche de mouillage. Lorsqu'on augmente la densité d'excitation, la raie s'élargit toujours davantage. De telles observations ont été reportées pour les échantillons fournis par le premier laboratoire. Le deuxième type de BQ est caractérisé par une raie d'émission beaucoup plus étroite. L'augmentation de la densité d'excitation a pour effet de faire apparaître d'autres raies distinctes, à plus haute énergie. On verra plus loin que ces échantillons permettent d'étudier la structure électronique des boîtes. Ces observations ont pu être réalisées pour les échantillons fournis par le second laboratoire.

a) Première série d'échantillons de boîtes d'InGaAs sur substrat de GaAs (100)

Ces échantillons ont été fabriqués par MOCVD par le premier laboratoire. Ils consistent en quatre couches de BQs superposées de composition  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}$  (orientation de surface selon (100)) séparées par des couches de GaAs de 50 nm d'épaisseur. L'analyse des images obtenues par AFM (microscope à force atomique) a permis d'évaluer le diamètre moyen ainsi que la densité moyenne des BQs qui sont respectivement 29.5 nm et  $3.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  (Figure 2.1). Les couches intermédiaires de 50 nm sont considérées comme suffisamment épaisses pour qu'il n'y ait pas d'interactions entre les champs de contrainte de deux couches successives de BQs. Par conséquent, la taille et la densité des BQs devraient être semblables d'une couche à une autre (sans corrélations inter-plans de boîtes quantiques).

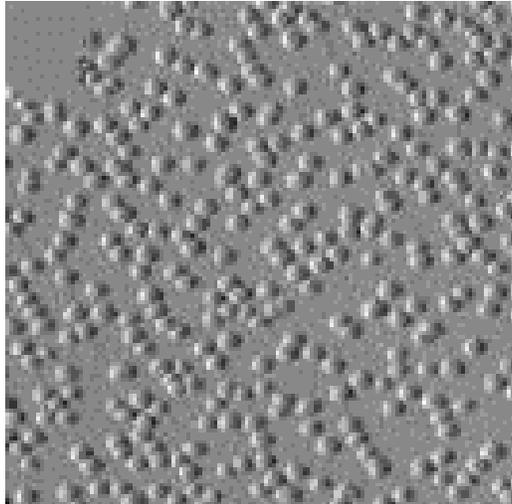


Figure 2.1: Image obtenue par AFM pour une couche de BQs d'InGaAs (100) de surface réalisée dans les mêmes conditions que les couches enterrées<sup>18</sup>.

b) Deuxième série d'échantillons de boîtes d'InGaAs sur substrat de GaAs (311)B

Ces échantillons ont aussi été fabriqués par MOCVD par le premier laboratoire. Ils contiennent des BQs de composition  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}$  formées sur un substrat de GaAs selon l'orientation de surface (311)B. La couche de boîtes quantiques est recouverte de 100 nm de GaAs. Des observations par TEM (microscopie électronique par transmission) ont montré que le diamètre moyen des BQs est de  $(25 \pm 5)$  nm et la densité moyenne d'environ  $2.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  (Figure 2.2).

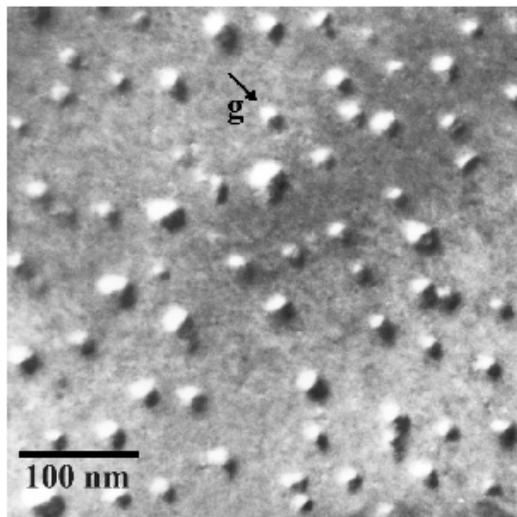


Figure 2.2: Image de BQs d'InGaAs (311)B obtenue par microscopie électronique à transmission en champ sombre<sup>85</sup>.

c) Troisième série d'échantillons de boîtes d'InAs sur substrat de GaAs (100)

Ces échantillons ont été fabriqués par MBE par le second laboratoire. Deux échantillons ayant des paramètres de croissance différents ont été étudiés. L'un des échantillons consiste en une seule couche de BQs, tandis que l'autre comporte 25 couches non-corrélées de BQs séparées par des barrières de 30 nm de GaAs. L'épaisseur de la couche de GaAs de surface est d'environ 100 nm. Les deux échantillons sont formés de BQs d'InAs déposées sur un substrat de GaAs. La technique de l' "Indium flush" a été utilisée dans les deux cas pour tronquer la partie supérieure des BQs<sup>16</sup>. Celles-ci ont la forme de lentilles tronquées, de diamètre moyen environ 20 nm et de hauteur moyenne environ 2.9 nm. La densité moyenne des BQs est relativement faible, de l'ordre de  $5 \times 10^9$  boîtes/cm<sup>2</sup> (Figure 2.3).

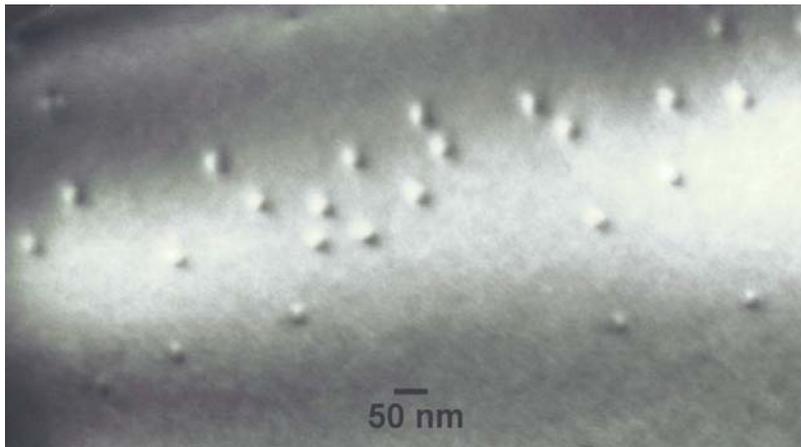


Figure 2.3: Observation par TEM de BQs d'InAs fabriquées par MBE.

### ***2.2.2 Technique de recuit***

Le fait de recuire un échantillon à très haute température permet de changer ses propriétés optiques. En effet, le phénomène d'interdiffusion des atomes à une interface, entre deux matériaux différents, peut modifier non seulement la composition, mais aussi les champs de contraintes et les dimensions des nanostructures. Ces modifications engendrent des changements du potentiel de confinement dans les boîtes. Le mécanisme d'interdiffusion est activé thermiquement et peut être décrit par la loi de Fick de diffusion des atomes.

Expérimentalement, les échantillons sont placés dans un "four", sur une plaque de silicium dans laquelle on fait circuler un courant électrique intense pour une courte durée. Le recuit se fait dans une atmosphère continuellement renouvelée d'un mélange adéquat d'azote et d'hydrogène pour éviter toute oxydation de l'échantillon. On place aussi un échantillon de GaAs dont la surface est "propre" contre la face active de l'échantillon à recuire pour éviter l'évaporation massive d'atomes d'Arsenic.

De plus, on peut aussi faire un dépôt d'un matériau diélectrique sur la surface de l'échantillon. Nous avons comparé les résultats obtenus avec une couche de  $\text{SiO}_2$  et une couche de  $\text{SrF}_2$ . Le dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) est connu pour promouvoir l'interdiffusion, tandis que le fluorure de strontium ( $\text{SrF}_2$ ) provoque l'effet inverse et réduit son efficacité<sup>26, 134</sup>. En effet, lorsqu'on dépose une couche de  $\text{SiO}_2$ , une multitude de lacunes sont créées à l'interface avec le GaAs. Pendant le recuit, ces lacunes vont diffuser vers l'intérieur de l'échantillon tandis que les atomes de Ga se déplacent vers la surface, ce qui augmente fortement l'importance de l'interdiffusion. En revanche, le  $\text{SrF}_2$  a un paramètre de maille semblable à celui du GaAs et peu de lacunes sont créées à l'interface. De plus, ce matériau empêche l'évaporation des atomes vers l'extérieur. Ainsi le  $\text{SrF}_2$  ralentit plutôt l'interdiffusion. Selon le choix du matériau déposé à la surface de l'échantillon, on peut ainsi soit favoriser l'interdiffusion par l'intervention d'un flux de défauts (lacunes), soit au contraire la réduire en limitant le nombre de défauts. Il faut noter qu'on n'introduit, par ce procédé, aucune impureté (atomes étrangers) qui pourrait détériorer les propriétés optiques du matériau.

### ***2.2.3 Techniques de caractérisation***

La méthode de caractérisation optique la plus largement utilisée est la spectroscopie de photoluminescence. Elle consiste à exciter des porteurs dans un échantillon grâce à un faisceau laser intense, à une énergie supérieure à celle de la bande interdite. Les porteurs (électrons, trous) se recombinent rapidement dans les différentes structures de l'échantillon et le signal émis (photons) est recueilli et focalisé pour être ensuite analysé par un monochromateur et un photodétecteur (Figure 2.4). Selon les besoins, il est possible d'utiliser comme source

d'excitation soit un laser d'ions Argon ( $\lambda=514.5$  nm), soit un laser Titane-saphir ( $\lambda=820$  nm), leur puissance maximale disponible étant respectivement d'environ 20 mW et 300 mW. Le dispositif optique utilisé dans chaque cas permet de focaliser le faisceau laser sur des surfaces d'environ 200  $\mu\text{m}$  et 400  $\mu\text{m}$  de diamètre respectivement.

Pour la détection du signal, on utilise soit un tube photomultiplicateur (PM) de GaAs (gamme de détection dans le spectre visible-proche infrarouge), soit un détecteur au germanium (Ge) refroidi à l'azote liquide (sensible à de plus hautes longueurs d'onde, dans le proche infrarouge, voir Annexes A et B). Ainsi, il est plus approprié d'utiliser le détecteur PM pour les échantillons recuits et le détecteur au Ge pour les échantillons non-recuits. Les spectres de photoluminescence ont été corrigés afin de tenir compte de la réponse spectrale des détecteurs. Un filtre passe-haut est placé à l'entrée du monochromateur pour absorber la longueur d'onde du laser et ainsi éviter de saturer le détecteur.

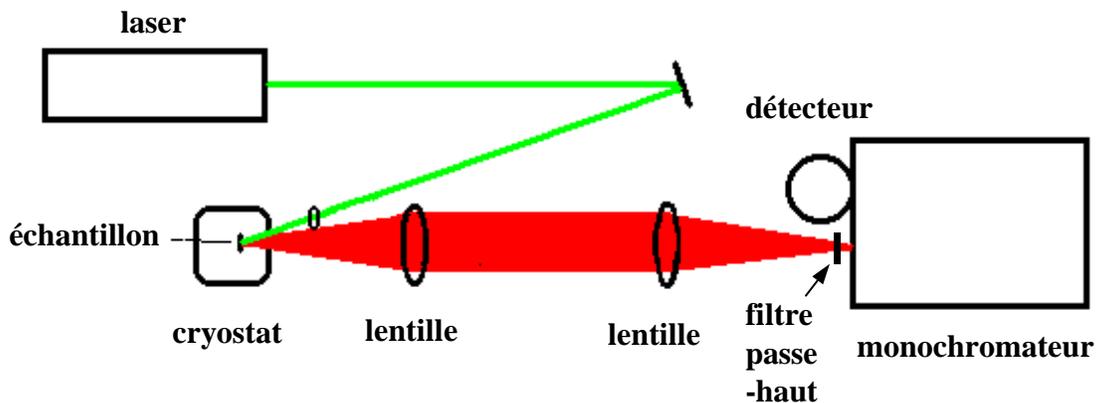


Figure 2.4: Schéma du montage pour la caractérisation par photoluminescence par excitation continue.

Quant à la technique de photoluminescence résolue dans le temps, le principe de base est le même, mais dans ce cas l'excitation est pulsée. La source d'excitation est un laser Titane-saphir émettant des impulsions ultracourtes d'environ 80 fs (une femtoseconde égale  $10^{-15}$  s) à un fort taux de répétition (environ 82 MHz). L'énergie par impulsion est d'environ 12 nJ, ce qui correspond à une puissance instantanée de 150 kW. Selon le jeu de miroirs utilisés, la longueur d'onde peut être ajustée de 720 à 850 nm ou 850 à 950 nm. Ce laser est lui-même excité par un laser à ions Argon (laser "pompe"). Pour une puissance de pompage de 7 W du laser Argon, la

puissance nominale moyenne de sortie du signal pulsé est d'environ 1 W (à 740 nm). Le schéma du montage est présenté à la Figure 2.5.

Lorsqu'il est focalisé, le diamètre du faisceau laser incident sur l'échantillon est d'environ 50  $\mu\text{m}$ . Cependant, lorsqu'on veut sonder un échantillon de boîtes quantiques, il est utile de défocaliser le faisceau (jusqu'à environ 300  $\mu\text{m}$  de diamètre) afin d'exciter un plus grand nombre de BQs (typiquement supérieur à  $10^6$ ) et ainsi réduire le nombre de porteurs par boîte. Dans certains cas, le signal détecté peut être plus important, car le nombre de boîtes sondées est plus grand.

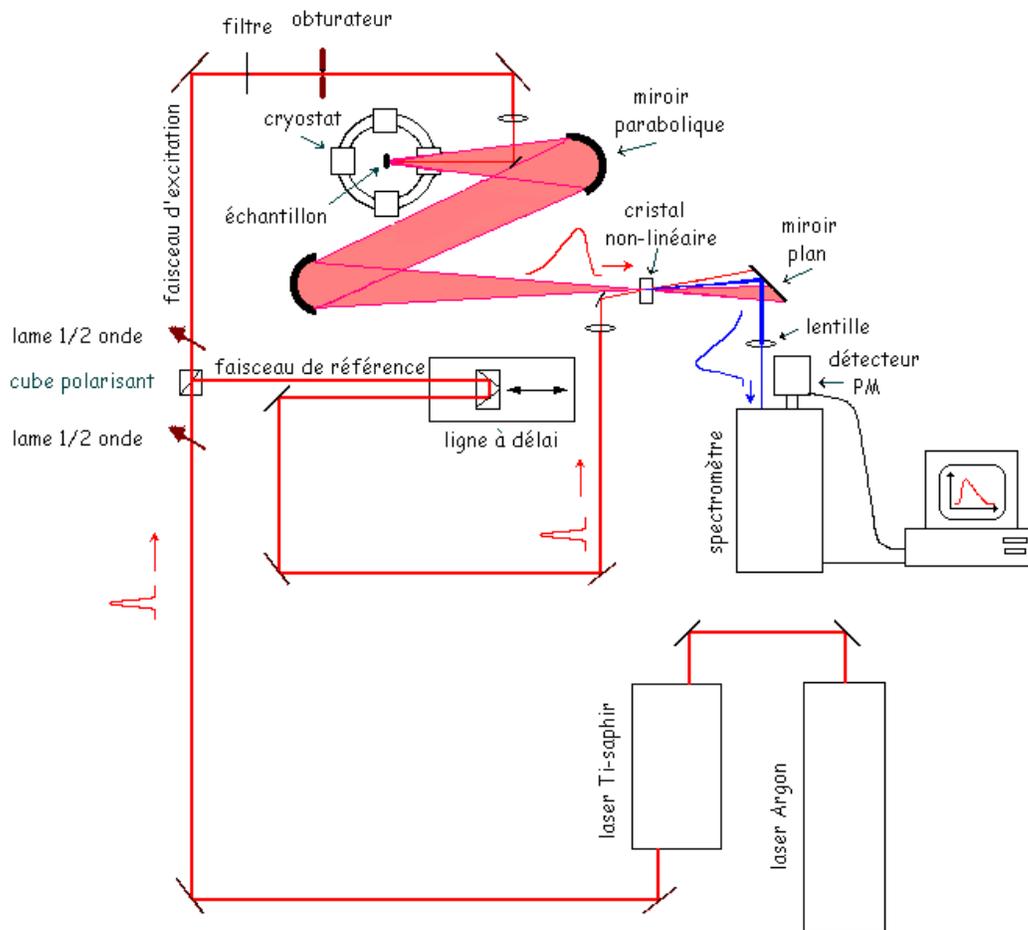


Figure 2.5: Schéma du montage de photoluminescence résolue dans le temps

Une technique de détection par addition de fréquences dans un cristal non-linéaire (NL) est utilisée pour la détection des signaux de PL résolus en temps. Dans ce montage, le faisceau laser est séparé en deux, l'un servant de référence et l'autre étant utilisé comme source d'excitation. Ce dernier est focalisé sur l'échantillon placé dans un cryostat. La température de l'échantillon peut être fixée entre 15 K et 300 K. La puissance d'excitation peut être modifiée par rotation de la lame demi-onde placée devant le cube ou par addition de filtres neutres plus ou moins absorbants. La lame demi-onde placée après le cube permet de polariser le faisceau de manière identique au faisceau de référence pour optimiser le rendement de conversion vers le haut des fréquences (pour l'alignement). L'utilisation d'un obturateur permet de s'affranchir du bruit parasite non-linéaire généré par le faisceau de référence dans le cristal non-linéaire lors de l'acquisition: ainsi le signal sans excitation (obturateur fermé) peut être soustrait du signal obtenu en présence des deux faisceaux. Les durées d'acquisition sont typiquement d'une seconde par point de mesure (pour une longueur d'onde et un délai donné).

L'intensité du signal de photoluminescence correspond au nombre de photons émis par l'échantillon. L'acquisition des données en fonction de la longueur d'onde (spectre) ou du délai (cinétique) est entièrement contrôlée par ordinateur. Certains paramètres ou dispositifs comme l'obturateur, l'angle du cristal NL, la position de la lentille devant le spectromètre, la position de la ligne à délai et la longueur d'onde du spectromètre sont ajustés automatiquement pour optimiser l'intensité du signal.

Comme les détecteurs sont généralement plus sensibles dans le visible, on utilise une technique de conversion des fréquences vers le haut pour détecter le signal de photoluminescence infrarouge émis par nos échantillons. La technique de détection par conversion vers le haut est basée sur les propriétés de non-linéarité d'un cristal (par exemple,  $\text{LiIO}_3$ ). Des harmoniques sont générées à des fréquences correspondant à la somme des fréquences des faisceaux incidents (Figure 2.6). Il est important que les faisceaux soient en accord de phase, c'est-à-dire qu'ils se propagent à la même vitesse dans le cristal non-linéaire pour interférer de manière constructive.

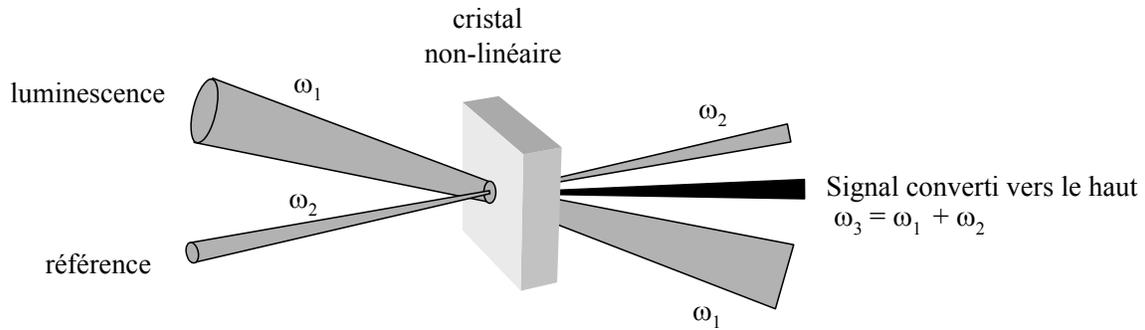


Figure 2.6: Principe de "conversion des fréquences vers le haut" et de convolution de deux signaux

Sur le cristal non-linéaire, la surface du faisceau de luminescence est beaucoup plus grande que celle du faisceau de référence. Or le centre du faisceau de luminescence provient à priori de régions de boîtes directement excitées par le laser. Donc le signal convertit vers le haut correspond à une région de l'échantillon excitée à peu près uniformément (en tenant compte de la diffusion possible des porteurs), et ne tient pas compte des "effets de bord", à la limite de la zone d'excitation.

En introduisant un délai entre le signal d'excitation et le signal de référence, il est possible d'observer les variations d'intensité du signal de luminescence en fonction du temps. Le pas du mouvement micrométrique de la ligne à délai permet de mesurer le signal de PL à très court temps après l'impulsion. La longueur de la ligne à retard est telle qu'on peut extraire des temps de relaxation inférieurs à 2 ns. La résolution temporelle est limitée par la longueur de l'impulsion et son élargissement dans les milieux dispersifs; elle est estimée à environ 200 fs (largeur à mi-hauteur de la trace d'autocorrélation).

Le spectromètre permet d'étudier le signal de photoluminescence en fonction de la longueur d'onde (ou énergie de la transition). La résolution du spectromètre est d'environ 0.2 nm. Le signal est ensuite détecté et amplifié par l'utilisation d'un photomultiplicateur. Pour observer le signal à différentes longueurs d'onde, il faut tourner le cristal non-linéaire en conséquence, ce qui rend nécessaire l'utilisation d'une courbe de calibration.

Ainsi, on peut obtenir soit des spectres de photoluminescence à un délai donné, soit des cinétiques correspondant à l'évolution temporelle de la luminescence à une longueur d'onde

déterminée. Ces deux types de données fournissent des informations sur l'évolution de la distribution en énergie des porteurs en fonction du temps.

Les deux techniques de photoluminescence continue et résolue dans le temps sont complémentaires, car la première permet l'étude des propriétés optiques des boîtes en régime stationnaire et la seconde en régime transitoire.

## *2.3 Propriétés optiques des boîtes quantiques*

### *2.3.1 Nature du matériau*

Les propriétés optiques dépendent directement des propriétés structurelles des BQs. En effet, l'énergie des transitions dépend en particulier de la géométrie et de la composition des boîtes, tandis que la résolution des raies d'émission associées aux différents états discrets dépend de l'homogénéité de l'échantillon<sup>13</sup>, ainsi que de la densité de BQs<sup>117</sup>.

Les spectres de photoluminescence sont donc liés à la nature des échantillons, comme cela a été observé auparavant par différents groupes. Dans cette étude, ce sont les échantillons d'InAs/GaAs (troisième série d'échantillons) qui ont été le plus étudiés, car ils sont de grande qualité et présentent des raies d'émission distinctes. Cependant des données sont aussi présentés pour d'autres échantillons fabriqués de manière différente, afin d'avoir une meilleure idée sur la validité de nos résultats: sont-ils caractéristiques des boîtes étudiées seulement, sont-ils liés au processus de fabrication, ou bien seraient-ils applicables à d'autres systèmes? En effet, des résultats semblables, malgré les différences de fabrication, indiquent des propriétés communes probablement spécifiques aux boîtes quantiques, ce qui rend celles-ci particulièrement intéressantes.

Dans les échantillons d'InGaAs/GaAs (première et deuxième séries d'échantillons), on observe seulement une raie de PL très large, qui est attribuée aux transitions optiques des différents états des boîtes quantiques (Figure 2.7). Les transitions associées aux différents états du système ne peuvent être distinguées dans le pic très large observé à cause de l'importance de

l'élargissement inhomogène des raies correspondantes, et aussi du faible confinement des porteurs dans ces boîtes. Ce pic s'élargit et se décale vers le bleu à mesure que les états à haute énergie se remplissent. Ensuite, environ 100 ps après l'impulsion, ces états vont graduellement se dépeupler via des canaux de relaxation et de recombinaison, ce qui se traduit par un décalage de la bande d'émission vers les plus basses énergies. Les mêmes observations ont été rapportées à plus basse densité d'excitation<sup>85</sup>.

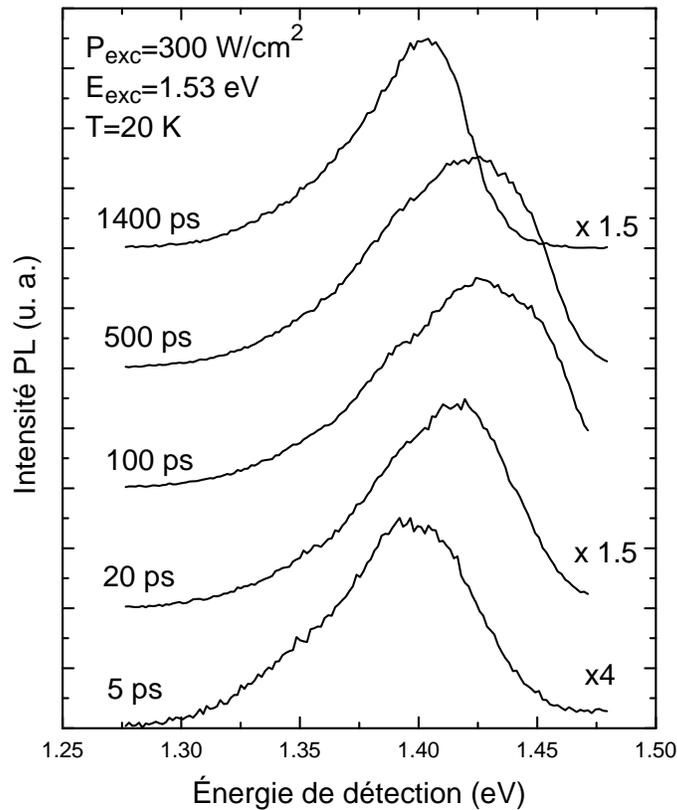


Figure 2.7: Spectres de photoluminescence résolue dans le temps pour des échantillons d'InGaAs/GaAs (311)B.

En revanche, les spectres de photoluminescence présentent des caractéristiques différentes dans le système de boîtes quantiques InAs/GaAs fait par MBE (Figure 2.8, Figure 2.9). Plusieurs pics de PL distincts sont observés à basse énergie qui sont attribués à des transitions entre porteurs des différents états des boîtes. L'énergie de ces pics varie sensiblement selon l'échantillon étudié. À plus haute énergie, on observe un pic, noté CM, associé à la

recombinaison des porteurs dans la couche de mouillage, puis un autre pic, noté GaAs, attribué à la recombinaison des porteurs dans le GaAs.

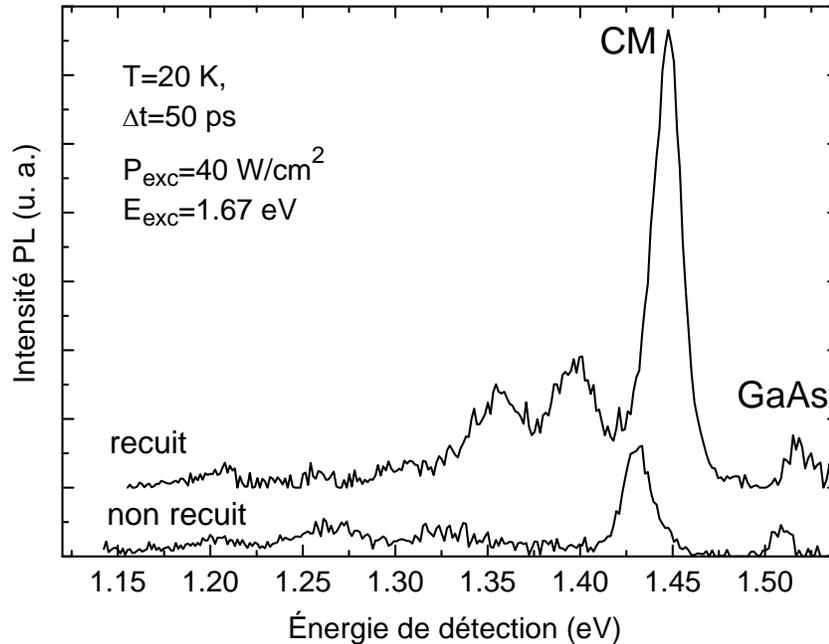


Figure 2.8: Spectres de photoluminescence résolue dans le temps obtenus pour un échantillon à une seule couche de boîtes quantiques d'InAs/GaAs recuit (15s à 900°C) ou non.

Sur la Figure 2.9, on peut remarquer que le nombre de pics de PL observé à basse énergie varie selon la densité d'excitation et le délai. Le nombre de pics à haute énergie ( $E < 1.4$  eV) diminue avec le délai, et augmente avec la densité d'excitation (à court temps), ce qui suggère des transitions associées aux états excités des boîtes. Le pic CM attribué à la recombinaison des porteurs situés dans la couche de mouillage d'InAs, est clairement observé à environ 1.43 eV, à forte excitation. Cette transition n'était pas observée dans les échantillons d'InGaAs (Figure 2.7) probablement à cause de la très grande densité de boîtes dans ces échantillons<sup>135</sup>.

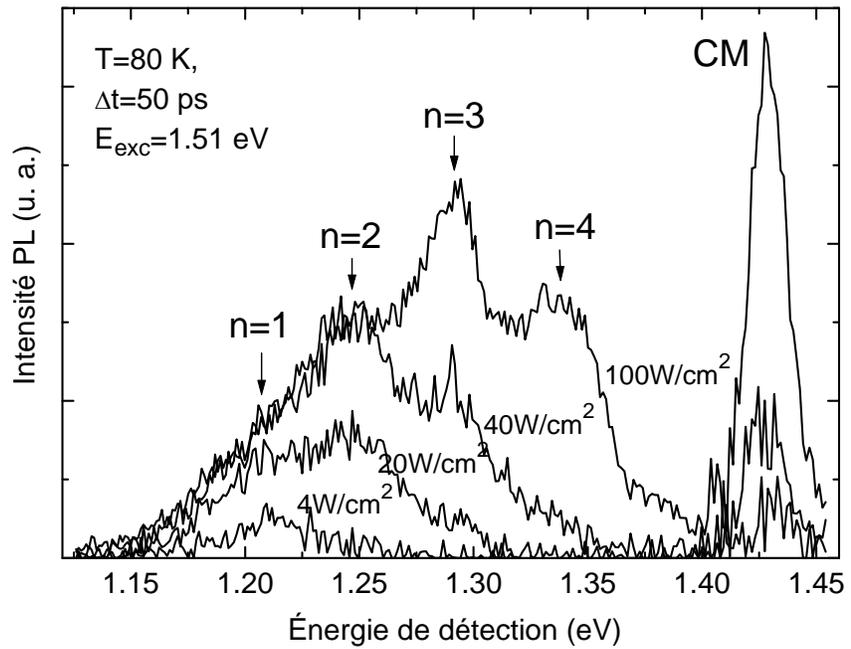
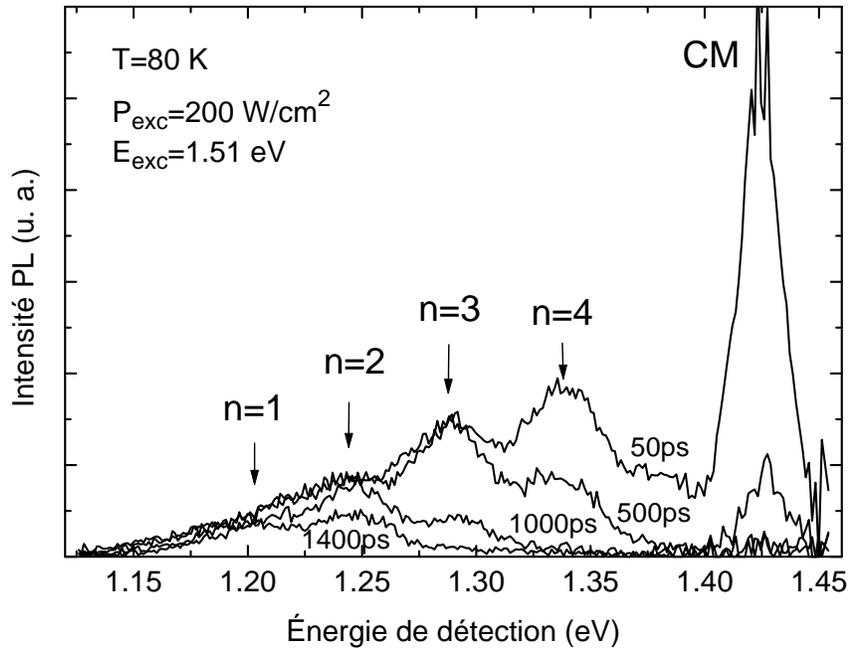


Figure 2.9: Spectres de photoluminescence résolue dans le temps pour l'échantillon de BQs d'InAs/GaAs multicouches non recuit, obtenus à différents délais après l'excitation (a) et à différentes densités d'excitation (b).

Pour l'échantillon contenant des boîtes d'InAs, il est donc possible de résoudre les pics correspondant aux principales transitions optiques permises du système 0D, ce qui permet d'étudier la structure électronique des boîtes. À forte densité d'excitation, on distingue quatre niveaux confinés dans les boîtes. Lorsqu'on augmente le délai après l'excitation, on observe le dépeuplement rapide des niveaux de plus haute énergie ( $n=3$ ,  $n=4$  et CM), tandis que le niveau fondamental ( $n=1$ ) et le premier niveau excité ( $n=2$ ) sont encore peuplés. À noter que les transitions sont parfois notées s, p, d, f,... en analogie avec les couches atomiques. Cette notation sera utilisée plus tard pour plus de commodité.

Dans un autre système de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs (100) (première série d'échantillons), on peut observer différentes transitions dans le large pic d'émission de l'échantillon non-recuit (Figure 2.10).

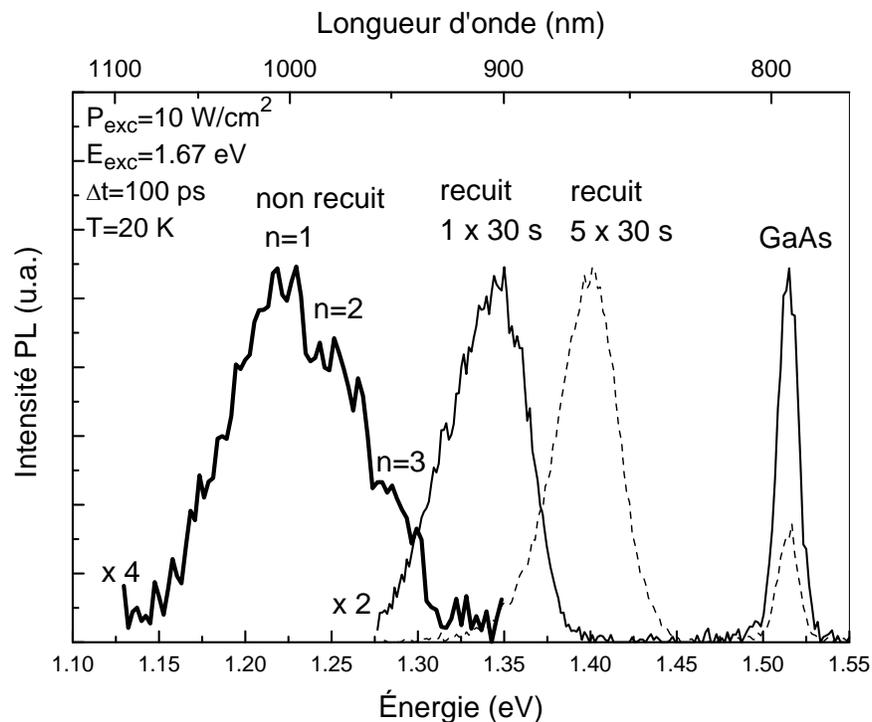


Figure 2.10: Spectres de photoluminescence pour des boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs (100) après différentes durées de recuit à 900°C.

Dans ce cas, le potentiel de confinement est plus important que celui des boîtes d'InGaAs/GaAs déposées sur la surface (311)B. Cependant, ces transitions sont encore mal résolues et disparaissent lorsqu'on recuit l'échantillon à haute température, à cause de la forte

réduction de l'espace interniveaux qui accompagne le décalage des pics et la diminution de la largeur des transitions<sup>136</sup>. Ces mêmes effets ont été observés avec l'échantillon d'InAs/GaAs, bien que les pics restent beaucoup mieux résolus<sup>13</sup>.

Ainsi, certaines caractéristiques des spectres de PL sont communes à tous les échantillons: pic étroit à haute énergie dû à la recombinaison des porteurs dans les barrières (couche de mouillage 2D ou GaAs), et large bande, à plus basse énergie, due à la recombinaison des porteurs des boîtes quantiques. D'autres caractéristiques apparaissent liées à la nature des boîtes et au processus de fabrication: énergies des transitions, résolution des niveaux excités, confinement des porteurs (différence entre l'énergie du niveau fondamental et l'énergie de la couche de mouillage).

### ***2.3.2 Variation du potentiel de confinement***

Le grand avantage des structures à boîtes quantiques est qu'il est possible de modifier leurs propriétés, notamment par interdiffusion (expérimentalement réalisée par recuit thermique rapide, comme décrit plus haut). Nos résultats montrent que cette technique est très efficace et n'engendre pas de détérioration significative des propriétés optiques (Figure 2.11). La présence de pics bien résolus, associés aux différents états d'énergie, dans les spectres des échantillons les plus fortement recuits, suggère que malgré une réduction significative du potentiel de confinement, les transitions des BQs conservent leur nature discrète. De façon semblable, des chercheurs ont observé jusqu'à quatre niveaux d'énergie distincts dans un échantillon recuit à 900°C<sup>16, 28, 64</sup>. De plus, nous montrons qu'un échantillon contenant 25 couches superposées de boîtes peut être recuit de manière aussi homogène qu'un échantillon contenant une seule couche de boîtes (Figure 2.11).

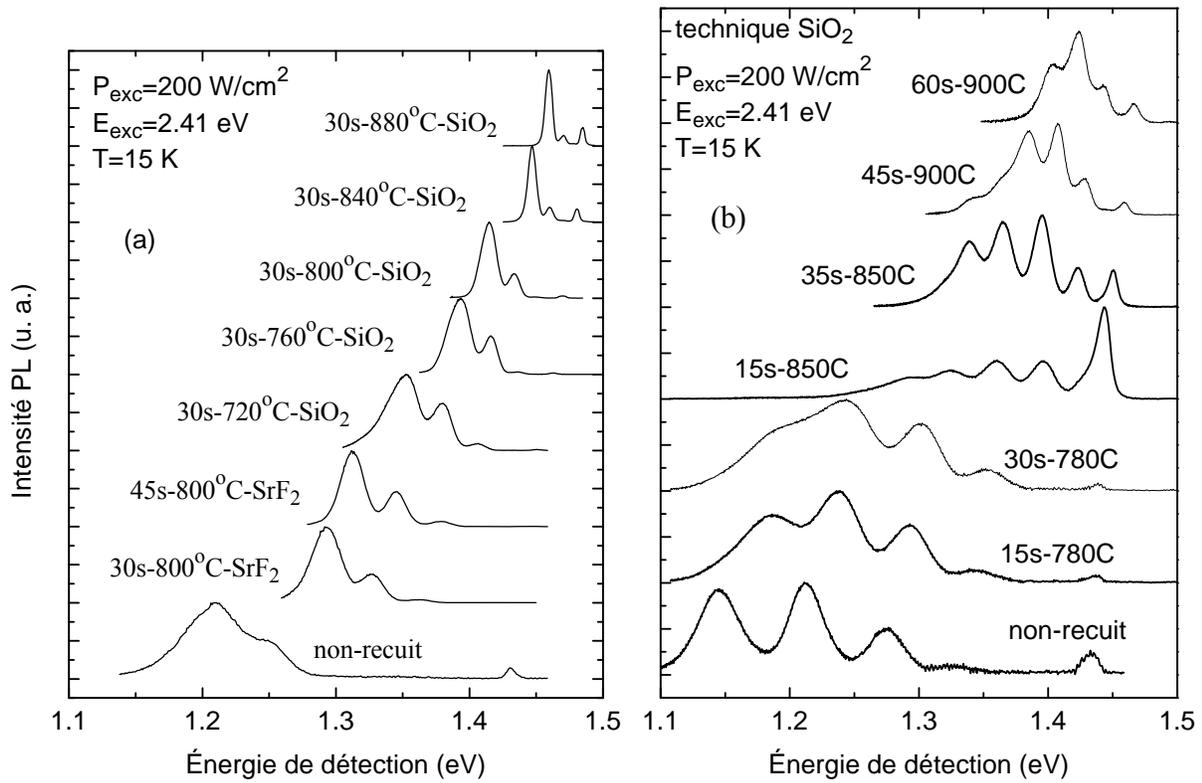


Figure 2.11: Spectres de photoluminescence continue pour des échantillons contenant 25 couches superposées (a) et une seule couche (b) de boîtes quantiques d'InAs/GaAs. Les conditions de recuit (température et durée) sont indiquées pour chaque spectre.

Comme cela a été observé précédemment, l'interdiffusion provoque un décalage des transitions vers les plus hautes énergies (jusqu'à 260 meV de décalage) et une réduction de l'énergie interniveaux très significative. Les résultats sont synthétisés sur la Figure 2.12.

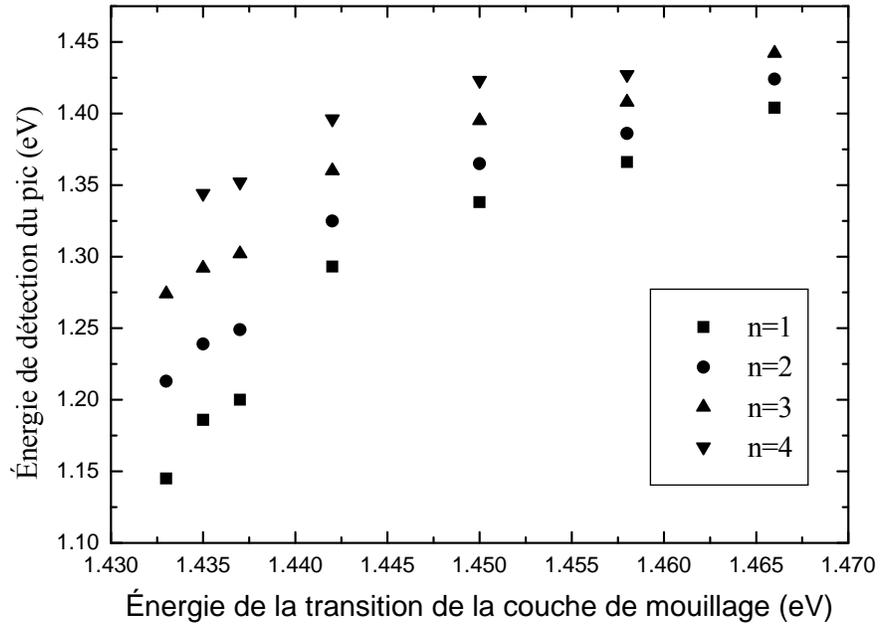
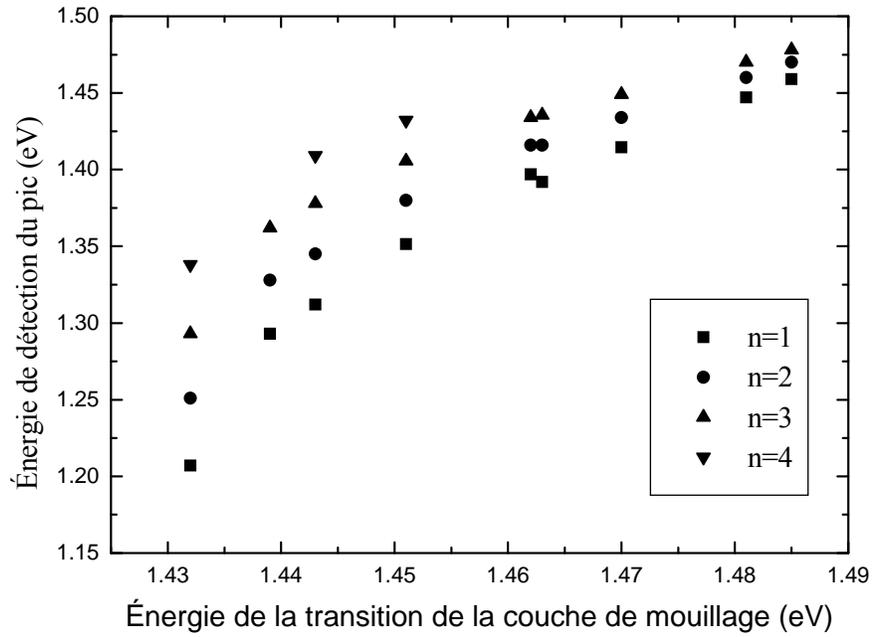


Figure 2.12: Position énergétique des principales transitions optiques observées en PL sur la figure précédente en fonction des conditions de recuit, pour l'échantillon de 25 couches (a) et l'échantillon à une seule couche de boîtes d'InAs/GaAs (b).

Ces effets sont dus à des modifications du potentiel de confinement des BQs (Figure 2.13), à cause des variations de la taille, de la forme et de la composition des boîtes et/ou des contraintes dans le système.

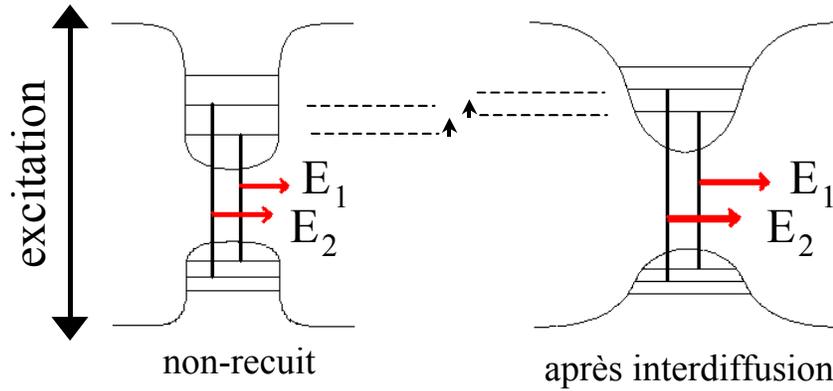


Figure 2.13: Schémas représentant deux transitions optiques possibles  $E_1$  et  $E_2$  dans un potentiel de confinement quantique avant et après interdiffusion.

Pour quantifier l'amplitude ou le degré de l'interdiffusion, on peut déterminer la longueur de diffusion à partir du décalage du pic de la couche de mouillage, en considérant un modèle de diffusion typique dans un puits quantique. En extrapolant les données obtenues pour un système très similaire<sup>64</sup>, les longueurs de diffusion sont estimées à 1.7 nm et 2.7 nm, pour les échantillons les plus recuits à couche unique et à multicouches, respectivement. La différence entre ces deux valeurs provient probablement du recuit in situ se produisant pendant l'application du procédé de l'"Indium flush", qui nécessite l'augmentation de la température de croissance un grand nombre de fois pour l'échantillon de 25 couches de boîtes quantiques<sup>137</sup>.

De plus, sur la Figure 2.11, on remarque clairement une réduction de la largeur de tous les pics, lorsque le recuit devient important. Pour déterminer et comparer quantitativement la largeur des raies, on reproduit chaque courbe de cette figure par une somme de fonctions gaussiennes, chaque fonction correspondant à un pic résolu. La largeur à mi-hauteur des différentes raies devient très faible, jusqu'à une largeur de 5.3 meV pour le niveau fondamental de l'échantillon de

25 couches recuit 30 s à 880°C. Cette valeur est plus faible que toutes celles rapportées dans la littérature jusqu'à présent, à notre connaissance<sup>13</sup>.

Si on examine la variation de la largeur de ces pics en fonction de l'énergie moyenne de la transition considérée, on observe une remarquable dépendance linéaire, identique quel que soit l'échantillon, celui contenant une seule couche et celui contenant 25 couches de boîtes quantiques (Figure 2.14). Il est étonnant de noter que les résultats obtenus pour l'échantillon de 25 couches présentent une plus faible dispersion des données que ceux obtenus pour l'échantillon contenant une seule couche de boîtes. En fait, la dispersion est surtout observée à faible recuit car l'homogénéité de l'interdiffusion est probablement plus faible.

D'autre part, la dépendance linéaire identique pour les deux types d'échantillons confirme la très bonne homogénéité de l'interdiffusion à travers toutes les couches (soit près de 850 nm). En effet, en comparant les spectres des échantillons recuits à une seule couche et à 25 couches de BQs, on remarque clairement que lorsque le niveau fondamental a la même énergie, la largeur des transitions de même énergie est comparable. Cet effet est toujours observé après une forte interdiffusion (recuit à haute température). De plus, comme le processus de fabrication de ces échantillons n'est pas le même, cela indique que cette dépendance linéaire pourrait se produire de manière semblable dans d'autres systèmes de boîtes quantiques.

Cet effet est d'autant plus remarquable qu'il s'applique à des échantillons recuits par une technique différente ( $\text{SiO}_2$  et  $\text{SrF}_2$ ), et surtout au fait qu'il s'applique à toutes les transitions de tous les échantillons (même la couche de mouillage). À priori, on ne s'attendait pas à observer le même effet lorsqu'on étudie la largeur d'une même transition après différents recuits ou lorsqu'on compare la largeur des pics des différents niveaux d'un même échantillon.

Il faut noter aussi que, pour les échantillons de 25 couches peu recuits, la largeur des pics à haute énergie est inférieure à celle des niveaux de basse énergie, de manière semblable aux échantillons fortement recuits. Il est possible que cet effet soit dû à la technique de "l'Indium flush" utilisée lors de la fabrication, qui produirait un léger recuit "in situ" de l'échantillon<sup>137</sup>.

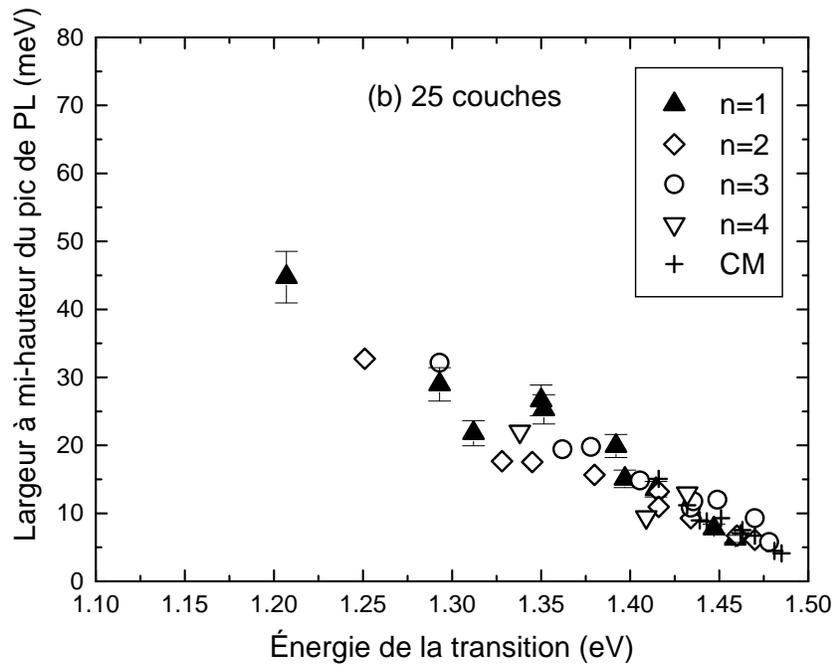
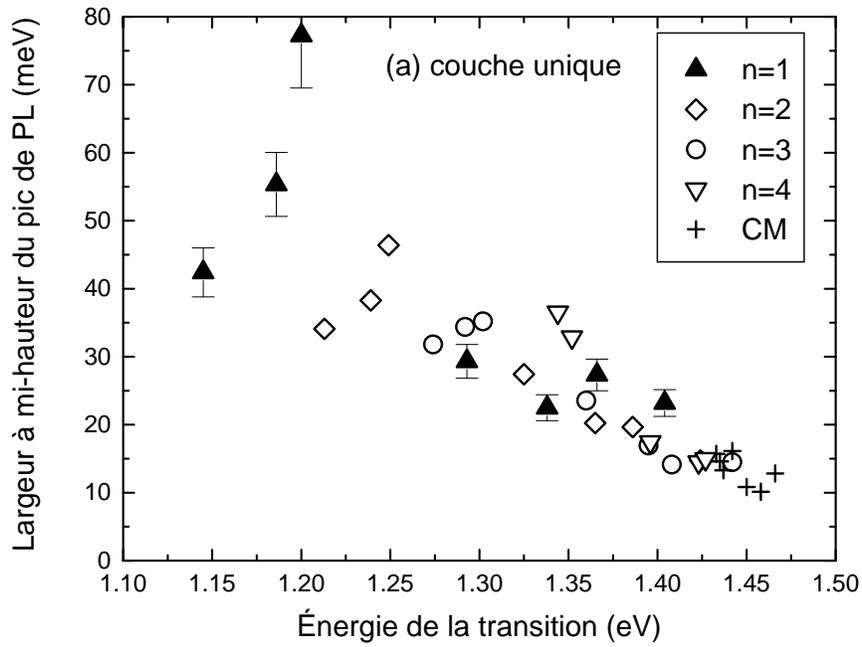


Figure 2.14: Largeur à mi-hauteur des pics de PL observés sur la Figure 2.11 en fonction de l'énergie moyenne de la transition correspondante pour l'échantillon à une seule couche (a) et celui à 25 couches (b) de boîtes quantiques. Tous les pics résolus ( $n=1$ ,  $n=2$ ,  $n=3$ ,  $n=4$  et CM) de tous les spectres sont pris en compte.

Il faut noter d'autre part, que l'échantillon à multicouches ne présente pas des largeurs de pics supérieures à celles de l'échantillon à couche unique (comme on pourrait s'attendre d'un plus grand ensemble de boîtes sur plusieurs couches), ni inférieures (comme cela est observé quand les couches de boîtes sont corrélées). Donc les principales inhomogénéités de l'ensemble des BQs sont présentes dans le plan de croissance et n'augmentent pas avec le nombre de couches.

De plus, on observe que des échantillons recuits dans des conditions différentes (de durée, de température et de couche de recouvrement), mais ayant la même énergie de transition pour l'état fondamental, présentent des caractéristiques relativement semblables quant à la largeur des pics et à leur intensité relative (Figure 2.15). Donc, les défauts introduits par la technique d'interdiffusion (lacunes et autres complexes associés) ne jouent pas de rôle significatif en regard des changements du potentiel de confinement induits par la diffusion atomique.

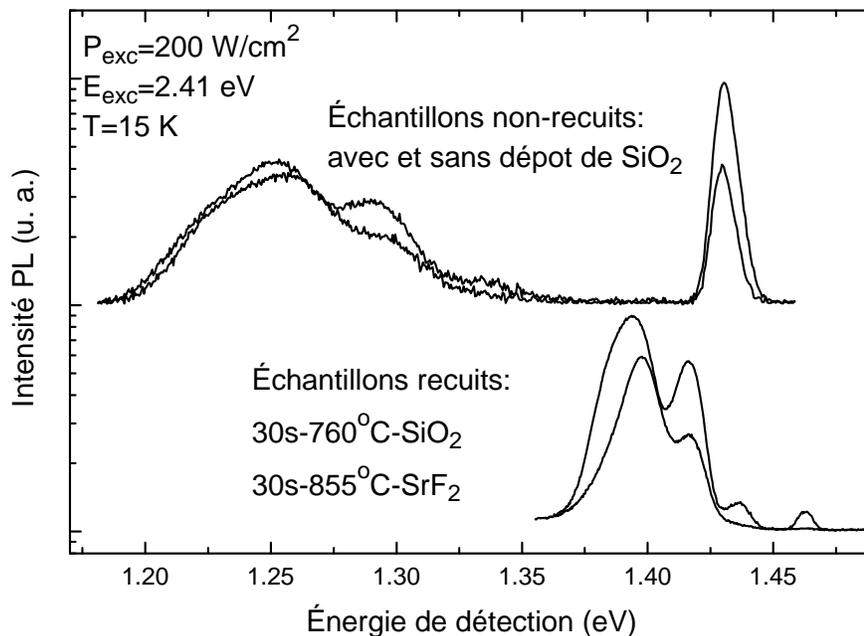


Figure 2.15: Influence des défauts introduits lors des recuits: spectres obtenus avant recuit, avec et sans dépôt de  $\text{SiO}_2$  (partie supérieure) et spectres dont l'énergie des transitions est assez semblable ayant été obtenus par différentes conditions de recuits pour les échantillons multicouches.

À part les variations du potentiel de confinement, d'autres effets peuvent modifier la largeur des transitions. Ainsi, une réduction de la largeur des raies de PL a été observée à basse température ( $T < 100$  K) pour des boîtes d'InGaAs/GaAs, par ré-émission thermique de porteurs

hors des boîtes les plus petites et leur re-capture par des boîtes plus larges ayant un potentiel de confinement plus grand<sup>85</sup>. Nous avons donc aussi étudié le comportement des pics en fonction de la température (Figure 2.16).

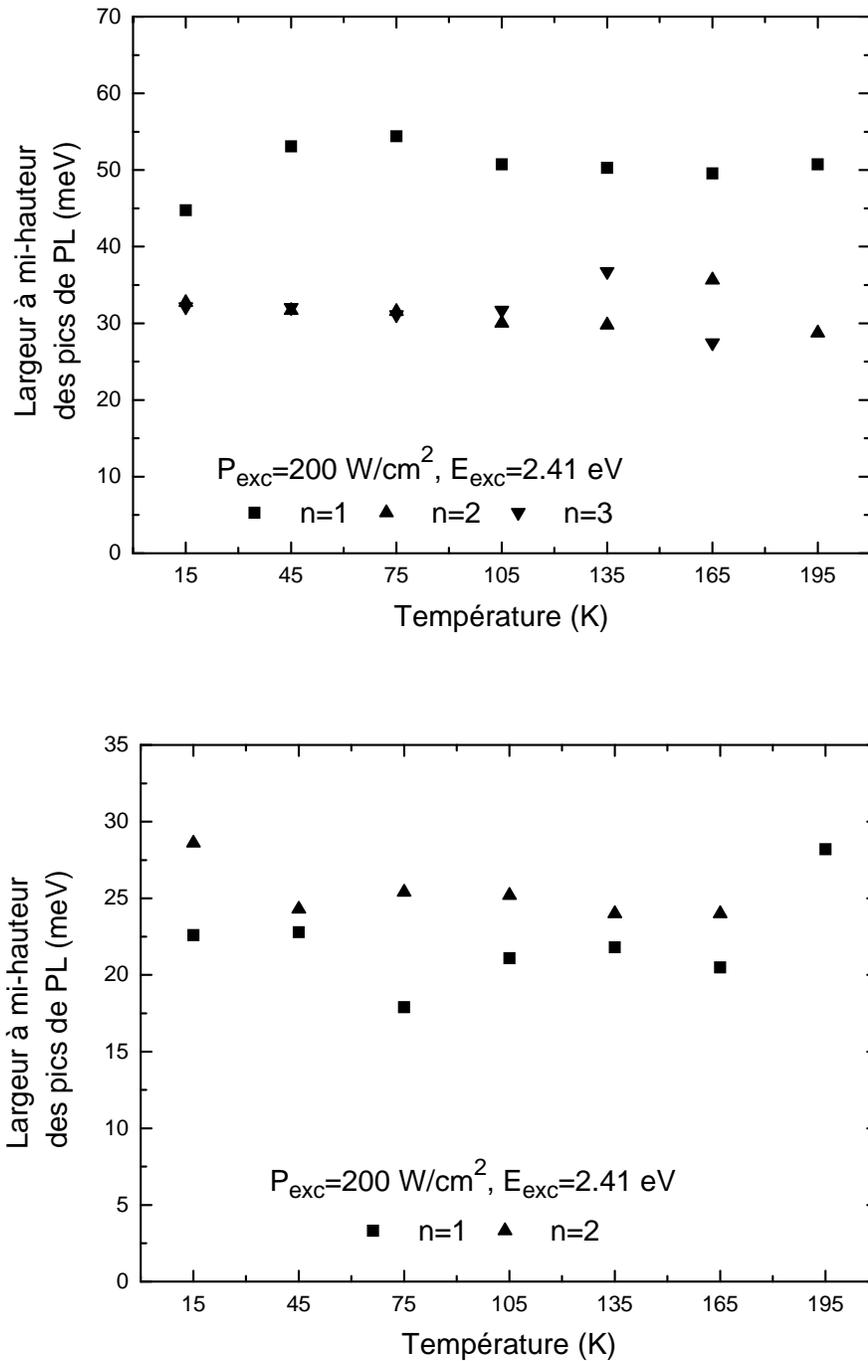


Figure 2.16: Largeur des pics de PL des niveaux de plus basse énergie pour l'échantillon multicouches non recuit (a) et recuit 30s à 840°C, SrF<sub>2</sub> (b), en fonction de la température de l'échantillon.

Dans notre cas, on n'observe pas de variation significative de la largeur à mi-hauteur des pics en fonction de la température, que l'échantillon soit recuit ou non, dans le domaine de température étudié. Donc la ré-émission thermique ne semble pas jouer de rôle important sur la largeur des raies de PL.

Des effets à N-corps pourraient aussi jouer un rôle important sur la largeur des pics de PL. En effet, le nombre de porteurs par boîte et la formation de complexes multi-excitoniques peuvent changer les énergies de transition optique d'une boîte d'InGaAs/GaAs<sup>138</sup>. Lorsqu'on considère un large ensemble de boîtes, ces effets pourraient contribuer à la largeur des pics. Pourtant, expérimentalement, on n'observe ni élargissement, ni décalage en énergie des pics, quand on augmente la densité d'excitation (Figure 2.17). Seul, le remplissage des niveaux excités est observé, dans le domaine étudié.

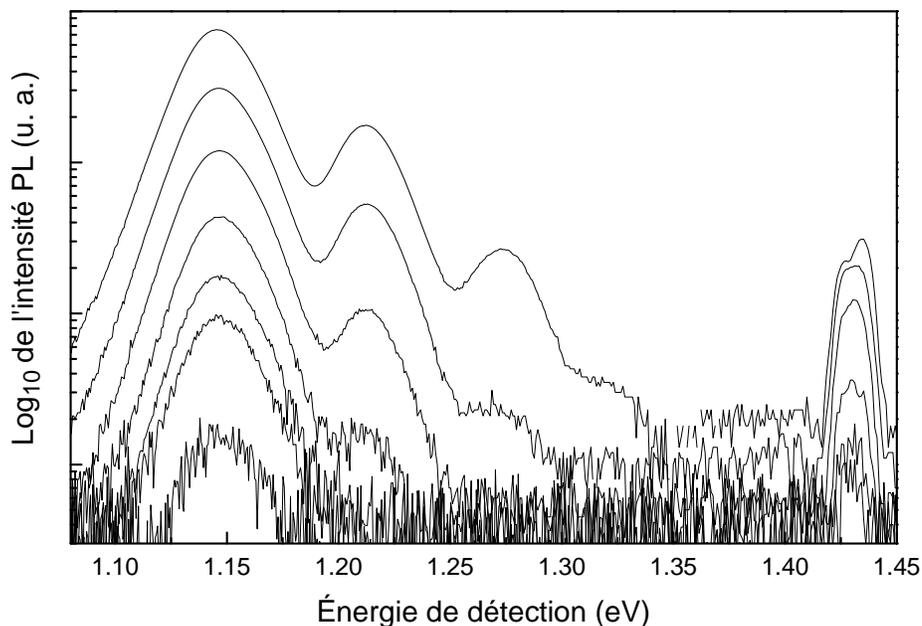


Figure 2.17: Spectres de photoluminescence obtenus pour l'échantillon non-recuit à couche unique pour différentes densités d'excitation: 0.18, 0.9, 1.8, 6, 18, 60 et 180 W/cm<sup>2</sup> de bas en haut, à T=15 K, E<sub>exc</sub>=2.41 eV.

La largeur des raies ne dépend donc ni de la température, ni de la densité d'excitation. Par conséquent, la dépendance linéaire de la largeur des pics en fonction de l'énergie de transition doit provenir des modifications du potentiel de confinement. La largeur inhomogène des pics de

PL est généralement attribuée aux variations de taille, de forme, de composition et/ou de contraintes des boîtes quantiques, ces inhomogénéités étant dues au processus de fabrication<sup>10, 17, 74, 139, 140</sup>. Tous ces paramètres sont susceptibles de changer le potentiel de confinement, si bien que la dépendance linéaire observée (Figure 2.14) provient très probablement de l'influence de la variation du potentiel de confinement sur la variation en énergie relative des différents niveaux quantiques.

Pour mieux comprendre les causes de la réduction de la largeur des raies d'émission, des calculs ont été effectués, en collaboration avec Dr. Simon Fafard, Dr. René Côté\* et Loïc Franchomme-Fossé\*, dans le but d'identifier les paramètres-clé qui contrôlent la largeur inhomogène des pics du signal de PL. Pour cela, on a déterminé l'effet de faibles variations des valeurs des paramètres structuraux sur le spectre d'énergie.

Les boîtes quantiques sont modélisées par le sommet d'une sphère reposant sur un puits quantique très mince. Le modèle utilisé a été développé par Wojs et Hawrylak<sup>39</sup>. L'équation de Schrödinger tridimensionnelle est résolue dans l'approximation adiabatique, c'est-à-dire que les fonctions d'onde dans le plan des couches sont considérées comme séparables des fonctions d'onde normales au plan. On considère que la fonction d'onde électronique est fortement confinée dans la plus basse sous-bande de la couche de mouillage. On calcule donc le potentiel latéral effectif pour les électrons confinés, en considérant une hauteur donnée des boîtes.

À cause de la forme très allongée des boîtes (diamètre très supérieur à la hauteur), on considère que c'est l'interdiffusion selon l'axe de croissance qui est le plus susceptible de modifier l'énergie de transition. Un simple modèle de Fick décrivant la diffusion uni-dimensionnelle est donc utilisé pour simuler l'interdiffusion.

Le potentiel effectif radial pour le confinement latéral est calculé en fonction de la distance à partir du centre de la boîte, pour différentes longueur de diffusion  $L_d$  et différents jeux de paramètres (hauteur  $h$ , diamètre  $d$ , rapport  $h/d$ , concentration en Indium  $In$ ), en utilisant une fonction erreur comme profil d'interdiffusion. On considère que la composition en Indium est homogène dans les boîtes et que les contraintes restent corrélées à la concentration en Indium dans les boîtes, même après interdiffusion.

---

\*Département de physique, Université de Sherbrooke

Quelques profils de potentiel effectif sont présentés à la Figure 2.18 pour les échantillons recuit, non-recuit et tronqué (le sommet des boîtes peut être tronqué par la technique de "l'Indium flush", ce qui modifie leur hauteur effective), avec des paramètres typiques.

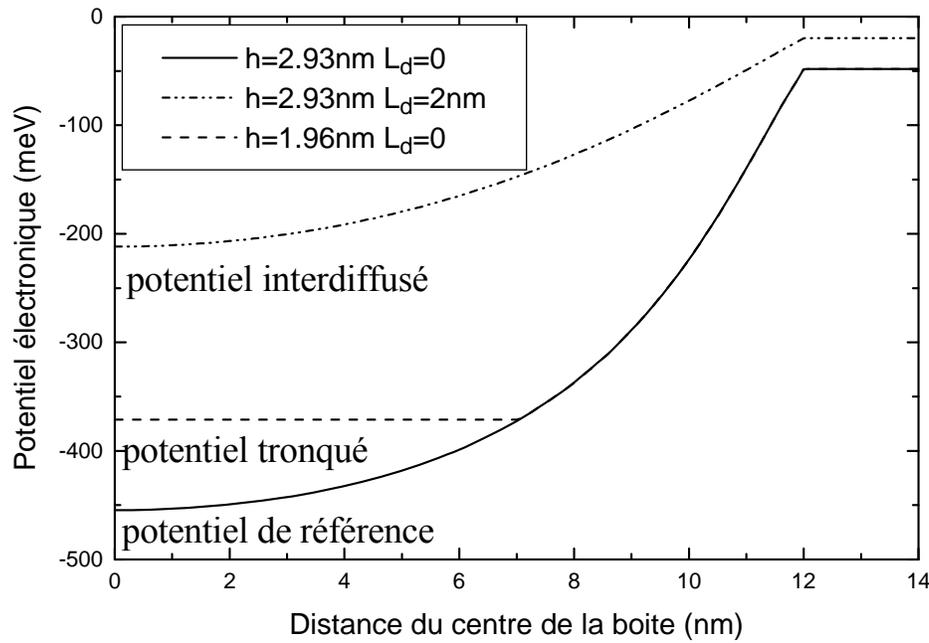


Figure 2.18: Profils de potentiel effectif pour une boîte quantique non recuite ( $L_d=0$ ) entière ( $h=2.93$  nm) ou tronquée ( $h=1.96$  nm), et une boîte fortement recuite ( $L_d=2$  nm). Les autres paramètres fixes sont  $I_n=100\%$ ,  $d=24$  nm et  $h/d=1.222$ .

Les niveaux électroniques sont obtenus en résolvant l'équation de Schrödinger radiale pour plusieurs valeurs des nombres quantiques angulaire et radial, en considérant une masse effective de  $0.067 m_o$ . Des fonctions d'onde électronique au carré sont présentées à la Figure 2.19 pour déterminer l'influence de l'interdiffusion et des variations de hauteur sur le confinement. Deux différents niveaux sont considérés:  $n = 1$  ( $m = 0$ ) correspondant au niveau fondamental et  $n = 3$  ( $m = 2$ ) correspondant au deuxième niveau excité.

Clairement, les fonctions d'onde de ces deux niveaux sont bien confinées dans la boîte. De fait, la probabilité d'occupation des électrons dans la boîte est supérieure à 98% pour les trois premiers niveaux des boîtes non recuite ( $L_d = 0$ ) et pour les deux premiers niveaux des boîtes recuites ( $L_d = 2$  nm). Dans ce dernier cas, la fonction d'onde du troisième niveau est encore confinée à 90 %. Donc, même après une forte interdiffusion, les fonctions d'onde électroniques restent bien confinées dans les boîtes. Une variation de la hauteur des boîtes a une faible

influence sur le degré de confinement des premiers niveaux, et le troisième niveau est encore confiné à plus de 75%, lorsque  $L_d = 2$  nm, pour une hauteur tronquée à 1.96 nm.

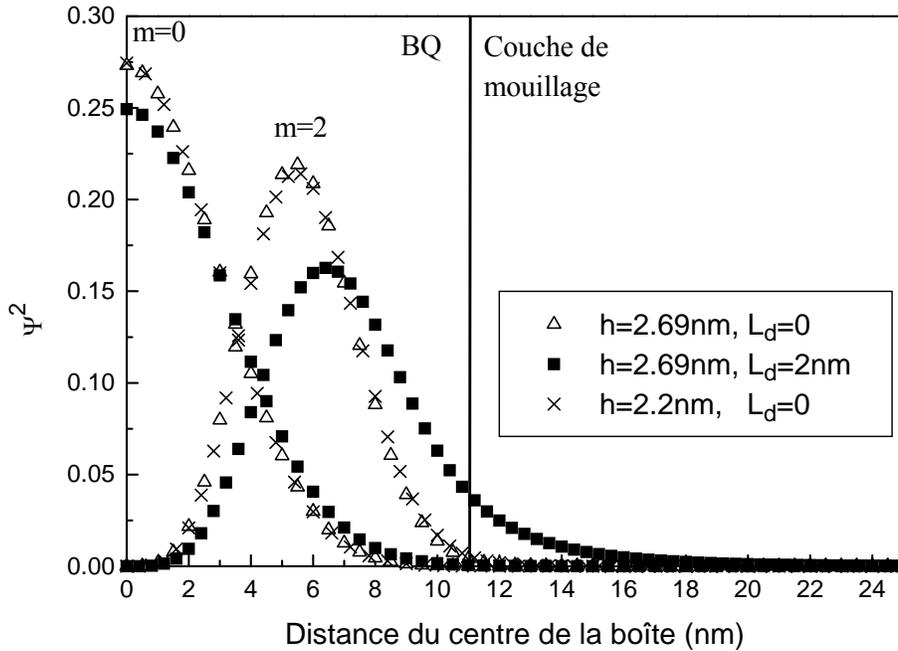


Figure 2.19: Fonctions d'onde au carré pour le premier et le troisième niveau d'énergie confiné dans des boîtes de 11 nm de rayon. Les fonctions d'onde présentées correspondent à l'échantillon non recuit ( $L_d = 0$ ) et fortement recuit ( $L_d = 2$  nm), et avec une hauteur tronquée ( $h = 2.2$  nm), avec les paramètres de référence:  $d = 22$  nm et  $In = 100\%$ .

Dans le but de simplifier le modèle, on a considéré que l'approximation adiabatique est toujours valable dans le cas de forte interdiffusion pour la raison suivante: si ce phénomène se produit de façon isotrope, alors toute la structure (couche de mouillage et boîtes) devrait s'élargir. La hauteur des boîtes reste donc très inférieure au diamètre et la fonction d'onde serait donc toujours confinée. De plus, le potentiel de confinement latéral est lié à la différence en énergie entre les deux premiers niveaux, et peut être comparé à la différence en énergie entre le GaAs et la couche de mouillage. Expérimentalement, la différence en énergie entre le niveau fondamental et le premier niveau excité (11 meV pour l'échantillon le plus recuit) est largement inférieure à celle observée entre le GaAs et la couche de mouillage (34 meV), comme pour l'échantillon non recuit (44 meV et 87 meV, respectivement). Donc le confinement en  $z$  (axe de croissance) est

toujours plus important qu'en  $r$  (plan de croissance des couches), ce qui conforte la validité de l'approximation adiabatique.

Les calculs permettent de déterminer comment les énergies des différents niveaux évoluent lorsqu'on change les valeurs des paramètres structuraux. Les valeurs présentées au Tableau 2.1 correspondent à l'énergie des niveaux électroniques confinés dans les boîtes.

Tableau 2.1: Énergie des niveaux électroniques en fonction des paramètres de simulation (diamètre  $d$ , hauteur  $h$  et concentration en Indium  $In$ ), avant ( $L_d = 0$ ) et après ( $L_d = 2$  nm) interdiffusion.

cas	potentiel	paramètres	Énergie électronique des différents niveaux (meV)				$E_{n=2}$ - $E_{n=1}$ (meV)
			n=1	n=2	n=3	n=4	
1	Référence $L_d=0$	$In=100\%$ , $h/d=0.122$ $h=2.44\text{nm}$ , $d=20\text{nm}$	300.1	401.4	468.7	555.9	101.3
2	Référence $L_d=0$	$In=100\%$ , $h/d=0.122$ $h=2.93\text{nm}$ , $d=24\text{nm}$	249	331	387	464.5	82
3	Interdiffusé $L_d=2\text{nm}$	$In=100\%$ , $h/d=0.122$ $h=2.93\text{nm}$ , $d=24\text{nm}$	486.5	555.1	594.5	-----	68.6
4	Interdiffusé $L_d=2\text{nm}$	$In=80\%$ , $h/d=0.122$ $h=2.93\text{nm}$ , $d=24\text{nm}$	401	461	493.3	-----	60
5	Référence $L_d=0$	$In=100\%$ , $h/d=0.147$ $h=2.93\text{nm}$ , $d=20\text{nm}$	262	364	431.5	525	102
6	Interdiffusé $L_d=2\text{nm}$	$In=100\%$ , $h/d=0.147$ $h=2.93\text{nm}$ , $d=20\text{nm}$	497	580	620	-----	83
7	Référence $L_d=0$	$In=100\%$ , $h/d=0.122$ $h_{tr}=1.96\text{nm}$ , $d=24\text{nm}$	303.1	359.5	412.5	484.6	56.4
8	Interdiffusé $L_d=2\text{nm}$	$In=100\%$ , $h/d=0.122$ $h_{tr}=2.46\text{nm}$ , $d=24\text{nm}$	498.6	557.2	598.1	-----	58.6

Pour les calculs, la profondeur du potentiel considéré est de 644 meV, lorsque la concentration en Indium est de 100 %. En cas de quasi-dégénérescence des niveaux (pour  $n=3$  et  $n=4$ ), la valeur moyenne des énergies a été calculée.

Ces calculs permettent d'évaluer l'effet des modifications des paramètres structuraux, et de les comparer aux observations expérimentales associées à l'interdiffusion (décalage des raies, réduction de l'espace interniveaux, réduction de la largeur des raies). Puisque l'interdiffusion est due à la diffusion atomique, il est probable que la concentration moyenne en Indium dans les boîtes diminue et que la taille des boîtes augmente pendant les recuits.

Dans le tableau 2.1, l'effet de l'augmentation du volume (rapport  $h/d$ ) après interdiffusion peut être déterminé en comparant les cas 1 et 3. De même, l'augmentation de la hauteur après interdiffusion correspond aux cas 1 et 6, l'augmentation de la hauteur tronquée aux cas 7 et 8, l'augmentation du diamètre aux cas 5 et 3, et la diminution de la concentration en Indium aux cas 2 et 4.

Dans tous les cas, on observe après interdiffusion une augmentation de l'énergie des niveaux, ainsi qu'une diminution de la séparation interniveaux électronique. Les variations de tous ces paramètres peuvent donc être responsables du large décalage vers le bleu observé pour les transitions optiques, ainsi que de la réduction de l'espace interniveaux.

Si on considère que les niveaux de trou se comportent de manière semblable aux niveaux électroniques, les variations en énergie des différents niveaux peuvent être corrélées à la variation de la largeur à mi-hauteur des pics de PL. Les résultats présentés au Tableau 2.2 correspondent à la différence en énergie des niveaux électroniques, suite à un changement d'un paramètre structural (diamètre, volume, composition et hauteur des boîtes), pour les valeurs indiquées dans la seconde colonne. Les variations en énergie ont été calculées pour les trois ou quatre niveaux de plus basse énergie, avant ( $L_d = 0$ ) et après ( $L_d = 2$  nm) interdiffusion.

Pour les niveaux  $n = 3$  (nombre quantique radial/angularaire 0/2 et 1/0) et  $n = 4$  (0/3 et 1/1, respectivement), on considère l'énergie moyenne des niveaux quasi-dégénérés. La variation en énergie due à la dégénérescence est négligeable comparée à celle due aux variations des paramètres.

Tableau 2.2: Variation en énergie des premiers niveaux électroniques suite à des variations des paramètres structuraux (diamètre  $d$ , volume, hauteur  $h$  et concentration en Indium  $In$ ), avant ( $L_d = 0$ ) et après ( $L_d = 2$  nm) interdiffusion.

cas	paramètre variable	paramètres constants (référence)	variation en énergie ( $E_{\max} - E_{\min}$ . en meV)					
			$L_d=0$			$L_d=2\text{nm}$		
			n=1	n=2	n=3	n=1	n=2	n=3
9	$20 < d < 26\text{nm}$	$h=2.9\text{nm}$ , $In=100\%$	18	44	60	15	33	39
10	$20 < d < 26\text{nm}$	$h/d=0.122$ , $In=100\%$	72	99	115	56	65	--
11	$100 > In > 80\%$	$h/d=0.122$ , $d=24\text{nm}$	21	27	31	85	94	100
12	<b><math>2.2 &lt; h &lt; 3.3\text{nm}</math></b>	<b><math>d=22\text{nm}</math>, <math>In=100\%</math></b>	<b>85</b>	<b>86</b>	<b>84</b>	<b>63</b>	<b>49</b>	<b>30</b>
13	<b><math>2.5 &lt; h_t &lt; 3\text{nm}</math></b>	<b><math>d=24\text{nm}</math>, <math>In=100\%</math></b>	<b>54</b>	<b>28</b>	<b>25</b>	<b>37</b>	<b>14</b>	<b>12</b>

On constate que si la concentration en Indium diminue (cas 11), alors la variation en énergie augmente avec l'interdiffusion, et pour les niveaux de plus haute énergie. Lorsqu'on augmente le diamètre ou le volume des boîtes (cas 9 et 10), la variation en énergie augmente pour les niveaux de plus haute énergie. En revanche, quand on augmente la hauteur ou la hauteur tronquée des boîtes (cas 12 et 13), alors la variation en énergie diminue, non seulement avec l'interdiffusion, mais aussi pour les niveaux de plus haute énergie.

Si on considère que l'interdiffusion a pour effet d'augmenter la taille (diamètre, hauteur, volume) et de diminuer la concentration en Indium des boîtes, alors seule la variation de hauteur permet d'expliquer la réduction de la variation en énergie pour les niveaux de plus haute énergie de même que la dépendance face au degré d'interdiffusion. La fluctuation de la hauteur des boîtes est donc le paramètre-clé qui joue un rôle dominant sur la largeur des pics de PL. Notons que les calculs ont été faits seulement pour les états confinés des électrons. Il faudrait en principe refaire

le même type de calcul pour les états de trous, mais comme les énergies de confinement sont plus faible dans ce cas, on considère que la largeur des structures de PL est essentiellement régie par les états électroniques et leur variation suite à des fluctuations des paramètres structuraux.

Il est reconnu que les fluctuations d'épaisseur sont responsables de l'élargissement du pic de PL d'un puits quantique. Dans la Figure 2.14, la largeur du pic de la couche de mouillage diminue après interdiffusion, de manière semblable à celle des pics des niveaux quantiques confinés. Donc, il est tout à fait cohérent que des fluctuations d'épaisseur (ou de hauteur des boîtes) jouent un rôle important dans la largeur des pics de PL.

Si on détermine les variations en énergie correspondant à une fluctuation de 20% de la hauteur des boîtes en fonction de l'énergie électronique mesurée à partir du bas du potentiel effectif, on obtient les résultats présentés dans la Figure 2.20. On considère que la profondeur du potentiel de confinement est de  $644 \text{ meV}^{13}$ . Les variations en énergie ont été calculées pour les trois ou quatre niveaux confinés de plus basse énergie, pour différentes longueurs de diffusion de 0, 1.0, 1.5, 2.0 et 2.5 nm.

Lorsque l'interdiffusion est suffisamment importante ( $L_d > 0.5 \text{ nm}$ ), on observe une dépendance plus ou moins linéaire assez semblable aux résultats expérimentaux (Figure 2.14): l'énergie diminue pour les niveaux de plus haute énergie et quand la longueur de diffusion augmente. Cette ressemblance entre les deux figures confirme le fait que les fluctuations de la hauteur des boîtes jouent un rôle critique sur la largeur inhomogène des pics de PL.

En revanche, lorsque la longueur de diffusion est faible ( $L_d < 0.5 \text{ nm}$ ), l'énergie est presque constante, quel que soit le niveau considéré. Étant donné que ce comportement n'est pas observé pour l'échantillon de 25 couches, cela conforte notre hypothèse que l'échantillon de 25 couches a subi un recuit pendant sa fabrication nettement plus important que l'échantillon ayant une seule couche de boîtes.

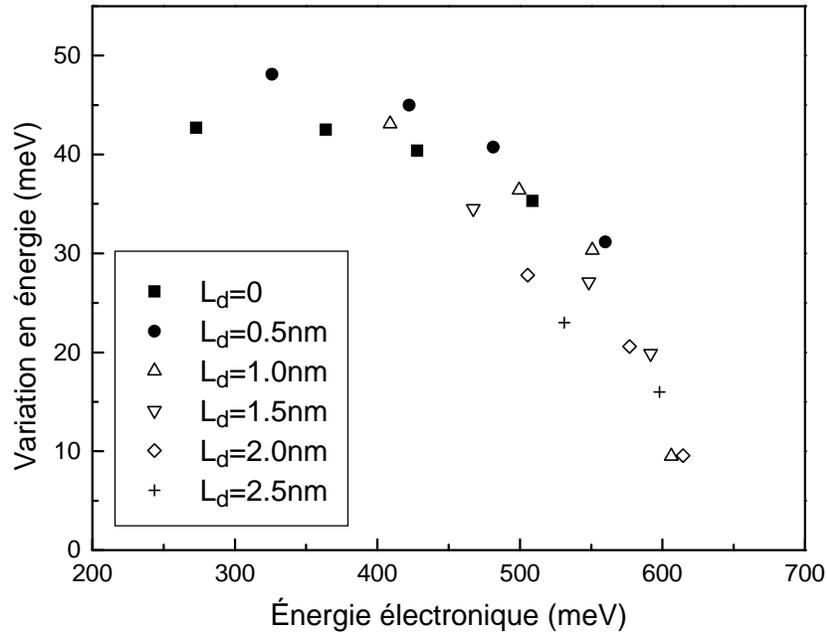


Figure 2.20: Variations en énergie des trois ou quatre premiers niveaux dues à des fluctuations de la hauteur des boîtes. Les différences en énergie sont calculées à partir des valeurs obtenues pour  $h = 2.2$  nm et  $h = 2.69$  nm, avec les paramètres constants  $d = 22$  nm et  $In = 100$  %. Les calculs sont effectués pour différentes longueurs de diffusion de  $L_d = 0$  à  $L_d = 2.5$  nm.

À priori, l'interdiffusion doit augmenter globalement le volume des boîtes. Cependant, du fait de leur forme ( $d \gg h$ ), pour un même degré d'interdiffusion normal et dans le plan des couches, la variation relative du diamètre est beaucoup plus faible que la variation relative de la hauteur, qui devient alors le paramètre critique et gouverne l'élargissement des pics. L'augmentation du diamètre et/ou la variation de composition des boîtes joue tout de même un rôle significatif pour la réduction de l'espace interniveaux, même s'il est de moindre importance. Il faut noter que nos résultats sont en bon accord avec d'autres études publiées<sup>10, 141</sup>. Une analyse quantitative plus précise reste nécessaire pour vérifier ces hypothèses.

Les résultats ci-haut montrent clairement l'intérêt de tronquer les boîtes quantiques durant la fabrication, afin de réduire la largeur à mi-hauteur des raies de PL. De plus, l'optimisation des paramètres de croissance permettrait aussi de limiter les inhomogénéités de volume et de composition des boîtes. Ces résultats sont importants d'un point de vue technologique, car si la technique du recuit est déjà largement utilisée pour décaler les longueurs d'onde, la largeur des

raies reste un facteur limitatif pour l'efficacité optique des dispositifs. Jusqu'à présent, l'optimisation des paramètres de croissance permettait de modifier l'énergie des transitions, l'espace interniveaux, la densité des boîtes, mais pas vraiment de contrôler la largeur des transitions optiques liée à l'inhomogénéité des boîtes. Or la réduction de la largeur des raies est très importante pour améliorer les performances des dispositifs à boîtes quantiques, comme par exemple le gain des lasers et la sensibilité des photo-détecteurs à une certaine longueur d'onde.

### *2.3.3 Émissions radiative et non-radiative*

Pour que les structures à boîtes quantiques soient intéressantes à étudier et aient un potentiel technologique, il est bien sûr nécessaire que l'efficacité radiative soit élevée, c'est-à-dire que l'intensité lumineuse émise par les boîtes soit maximale pour une excitation donnée. Il faut que l'échantillon contienne peu de défauts (centres non-radiatifs) et que ses propriétés soient stables à haute température. D'autre part, les propriétés optiques sont liées aux transitions optiques possibles dans le système et peuvent donc être modifiées par les effets multiparticules (formation de complexes multiexcitoniques stables).

Nous avons d'abord comparé l'intensité des pics de photoluminescence (aire sous les pics) de tous les échantillons multi-couches, sous excitation continue constante. D'après la Figure 2.21, non seulement l'intensité relative des structures du spectre ( $n=1$ ,  $n=2$ , ...) est conservée, mais aussi l'intensité absolue de chaque niveau confiné, quel que soit le degré de recuit. La longueur de diffusion correspondant aux différents recuits est estimée d'après le décalage en énergie du pic de la couche de mouillage après interdiffusion de l'échantillon<sup>64</sup>.

On peut noter que l'intensité du pic associé à la couche de mouillage augmente de façon significative lorsque les boîtes sont recuites. Cet effet est probablement dû à des modifications de la dynamique des porteurs dans le système. La ré-émission thermique ne devrait pas jouer de rôle majeur à basse température (15 K). Il est possible que le processus de capture soit plus lent, mais on n'observe cependant pas de changement de l'intensité des niveaux 0D. Le temps de vie des porteurs dans les barrières est peut-être plus court dans les échantillons recuits (présence de centres radiatifs plus efficaces?). Il est possible que l'apparition d'une barrière de potentiel à l'interface boîte/couche de mouillage due à l'interdiffusion joue un rôle significatif. D'autres

effets dus à ce mécanisme seront décrits plus loin. De manière globale, on n'observe donc pas de perte d'intensité significative pour les différents niveaux des boîtes, quel que soit le degré d'interdiffusion.

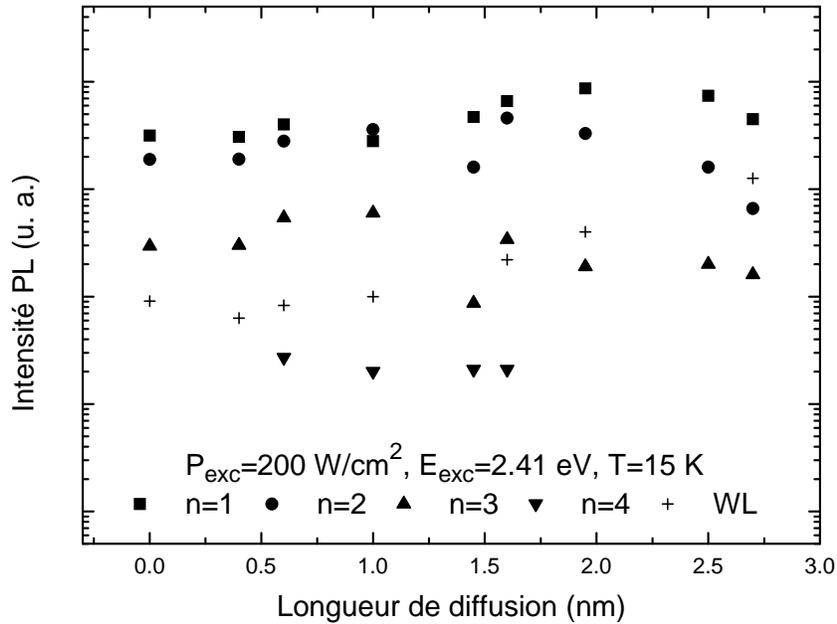


Figure 2.21: Aire sous les pics de PL continue pour les échantillons de 25 couches recuits ou non recuit, pour cinq niveaux du système.

De plus, l'intensité des pics de PL est assez stable en température jusqu'à environ 100 K pour les niveaux de plus basse énergie, pour l'échantillon recuit et non-recuit (Figure 2.22). À plus haute température, la ré-émission thermique joue un rôle important en redistribuant les porteurs des niveaux de basse énergie vers les niveaux d'énergie supérieurs. Ces niveaux se dépeuplent aussi facilement au profit des barrières, à cause du plus faible confinement des porteurs. Cet effet est davantage marqué pour l'échantillon recuit à cause du plus faible confinement des porteurs suite à l'interdiffusion.

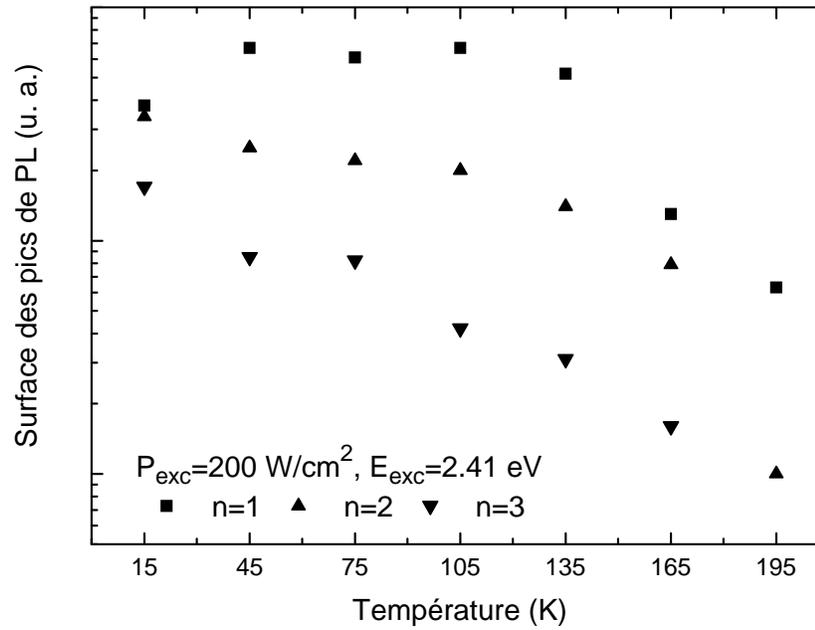
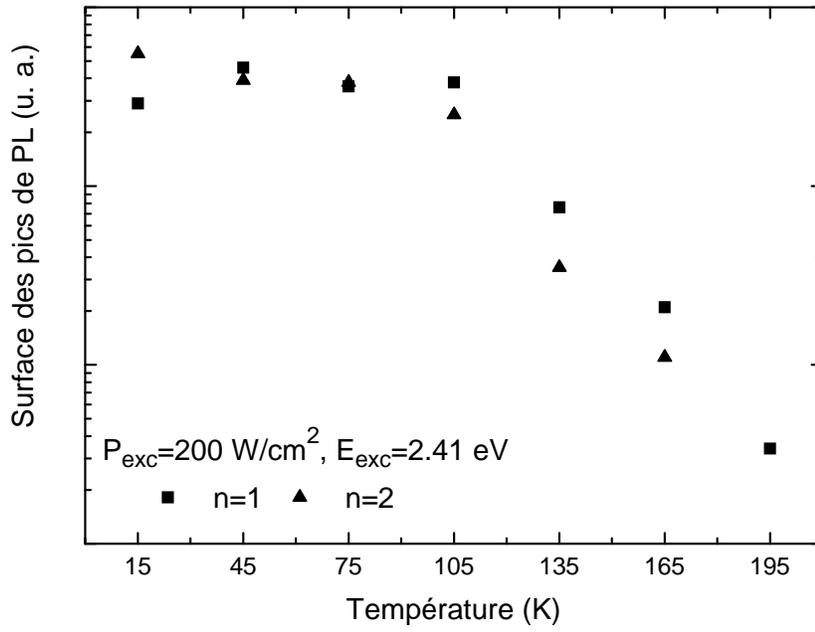


Figure 2.22: Surface des pics de PL continue des premiers niveaux du système, en fonction de la température de l'échantillon de 25 couches recuit 30 s à 840°C, SrF<sub>2</sub> (a) ou non recuit (b).

Des résultats plus étonnants sont présentés à la Figure 2.23. En effet, lorsqu'on observe l'intensité du signal émis par la couche de mouillage en fonction de la température, on peut noter un comportement très différent selon les échantillons. Lorsque les boîtes ne sont pas recuites, on observe une forte diminution du signal avec la température, dû probablement à la capture multiphononique plus efficace par les boîtes (transport des porteurs plus rapide). En revanche, plus les boîtes ont subi un recuit important, plus l'intensité de la couche de mouillage augmente avec la température. Le fait que le confinement des porteurs et la séparation interniveaux diminuent avec le recuit pourrait expliquer l'efficacité de la ré-émission thermique des porteurs confinés dans les boîtes vers la couche de mouillage.

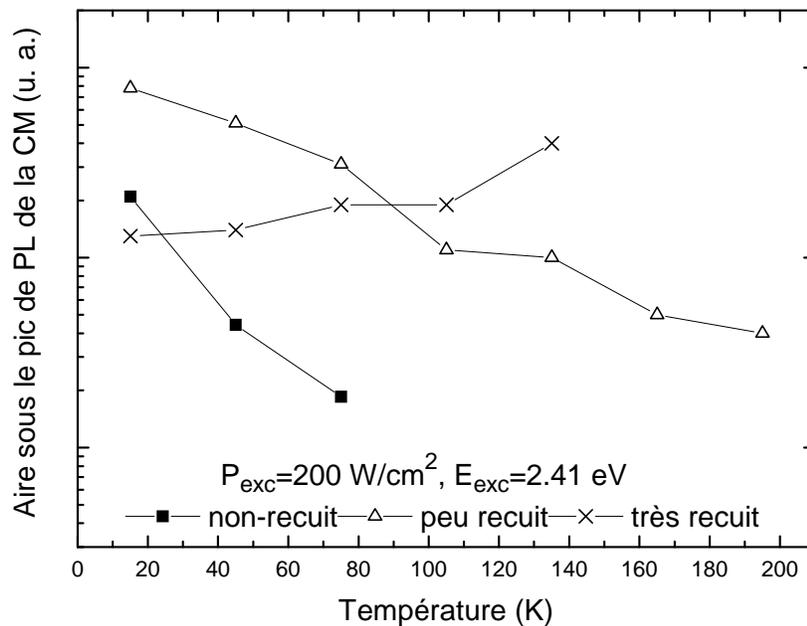


Figure 2.23: Intensité PL de la transition associée à la couche de mouillage en fonction de la température des échantillons de 25 couches non recuit ( $E_{CM}-E_{n=1}=176 \text{ meV}$ ), peu recuit (30 s à  $720^\circ\text{C}$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $E_{CM}-E_{n=1}=96 \text{ meV}$ ) et très recuit (30 s à  $880^\circ\text{C}$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $E_{CM}-E_{n=1}=25 \text{ meV}$ )

Par ailleurs, en observant la variation de l'intensité de tous les pics de PL en fonction de la densité d'excitation, on note une dépendance presque linéaire (Figure 2.24). Cette quasi-linéarité observée même à très basse densité d'excitation laisse supposer que la capture des porteurs par des défauts est négligeable. De plus, le fait que la pente des courbes présentées soit proche de 1 (environ 0.95) suggère une recombinaison excitonique des porteurs plutôt qu'une recombinaison

bande-à-bande pour laquelle la densité d'électrons est non corrélée à la densité de trous. L'allure monotone de l'intensité radiative indique une bonne efficacité radiative dans le domaine des densités d'excitation étudiées.

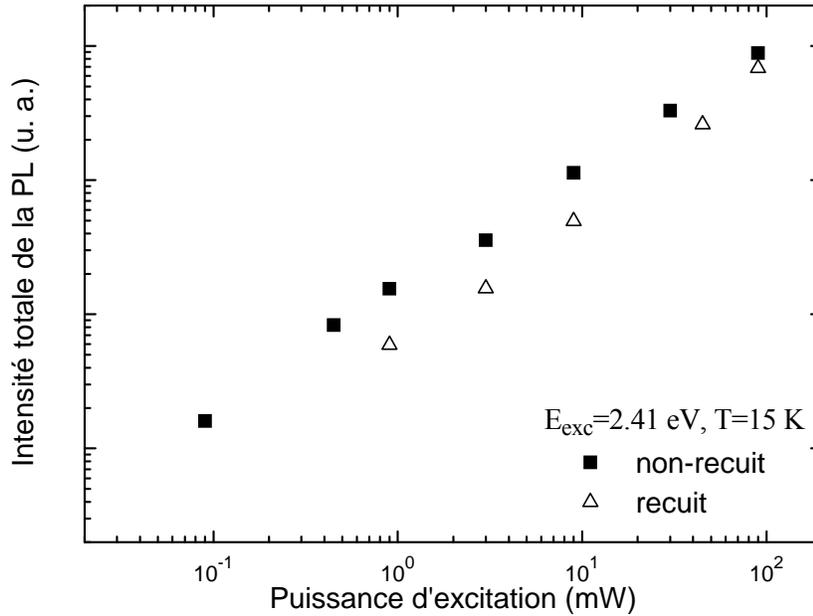


Figure 2.24: Variation de l'intensité de l'émission de PL sous excitation continue, en fonction de la puissance d'excitation, pour les niveaux 0D d'un échantillon non recuit à une seule couche de boîtes ( $E_{CM}-E_{n=1}=284$  meV) et d'un échantillon multicouche recuit (30 s à 830°C, SiO<sub>2</sub>,  $E_{CM}-E_{n=1}=40$  meV).

Des transitions provenant de complexes multiexcitoniques peuvent se produire à des énergies différentes de la transition excitonique, de sorte que la largeur des pics de PL pourrait augmenter avec la densité d'excitation, à cause de la formation de ces complexes<sup>138</sup>. Pourtant, expérimentalement, lorsqu'on teste un grand ensemble de boîtes, on n'observe pas de variation significative de la largeur des raies de PL (Figure 2.25). Il semble que les effets à multiparticules soient masqués par l'inhomogénéité des boîtes sur l'ensemble de l'échantillon.

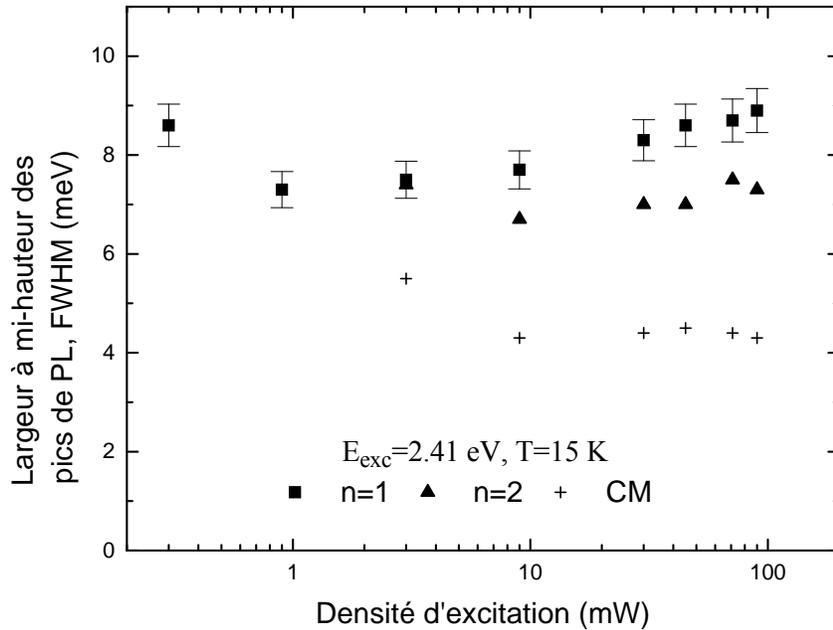


Figure 2.25: Largeur à mi-hauteur des pics de PL de l'échantillon de 25 couches recuit (30s à 820°C, SiO<sub>2</sub>, E<sub>CM</sub>-E<sub>n=1</sub>=37 meV) en fonction de la densité d'excitation.

Les échantillons étudiés (recuits ou non) présentent donc de bonnes propriétés optiques jusqu'à une température d'environ 100 K. La technique de recuit utilisée peut donc être employée sans risque de nuire à l'efficacité de l'émission optique des boîtes. La présence de défauts semble négligeable et ne devrait donc pas affecter de façon significative la relaxation des porteurs dans les boîtes.

## 2.4 Relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques

### 2.4.1 Généralités

Si on étudie l'évolution temporelle des populations dans les différents niveaux du système, après excitation par une courte impulsion optique, on peut évaluer l'importance des différents mécanismes de relaxation de l'énergie des porteurs. Il faut, bien sûr, que les niveaux

soient bien distincts d'un point de vue énergétique. À partir des cinétiques (évolution temporelle de l'intensité de la PL à une énergie donnée), on peut estimer les temps de montée et de décroissance de la photoluminescence (Figure 2.26).

Ainsi, on détermine le temps de montée en considérant un modèle très simple à trois niveaux (barrière, niveau excité et niveau fondamental, par exemple) et en lissant la cinétique du signal de PL à court temps par la somme d'une fonction exponentielle croissante (remplissage) et d'une exponentielle décroissante (dépeuplement). Lorsqu'on observe les niveaux confinés 0D à forte excitation, on observe après la montée du signal un "plateau" qui correspond en fait à la saturation du niveau considéré. Donc, pour déterminer le temps de décroissance de la photoluminescence, on considère seulement le signal à long temps (après le plateau) que l'on décrit simplement par une exponentielle décroissante. Selon les niveaux considérés et les conditions expérimentales, les temps de montée et de décroissance de la PL permettent d'évaluer les temps caractéristiques de capture, relaxation et/ou recombinaison des porteurs des différents états. Autrement dit, ces mesures nous donnent des informations sur les temps de remplissage et de dépeuplement des niveaux d'énergie du système.

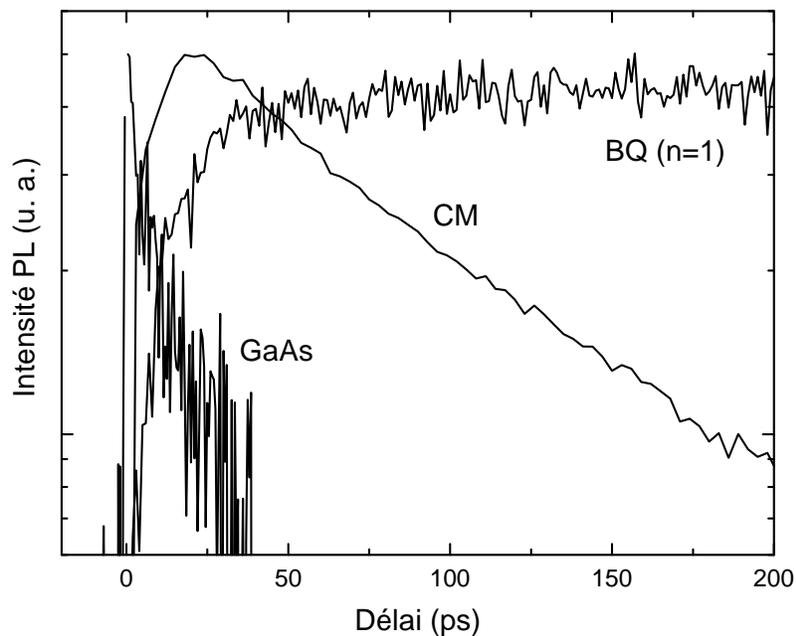


Figure 2.26: Évolution des populations de porteurs dans le système de boîtes quantiques à court temps par photoluminescence résolue dans le temps, à 80 K. Les transitions correspondant à la couche de GaAs, à la couche de mouillage (CM) et au niveau fondamental ( $n=1$ ) sont représentées, pour un échantillon multicouche non recuit.

En comparant les cinétiques mesurées dans les différents niveaux du système, on remarque que les temps caractéristiques sont très différents, parfois de plusieurs ordres de grandeur. La décroissance du signal de la couche de GaAs (matériau volumique) est très rapide (environ 40 ps), le signal de la couche de mouillage (puits 2D) augmente rapidement (quelques ps) et décroît plus lentement (quelques centaines de ps) tandis que le signal des boîtes quantiques augmente assez lentement (plusieurs dizaines de ps) et décroît de manière très lente (environ 1 ns pour le niveau fondamental). Ces observations indiquent un processus de relaxation en cascade, des niveaux de barrière à plus haute énergie vers les niveaux d'énergie inférieure. Ce résultat illustre bien l'efficacité de la relaxation des porteurs en 0D, ce qui est en contradiction avec le fort ralentissement ("phonon bottleneck") des processus de relaxation phononiques prédit théoriquement.

### *2.4.2 Capture des barrières*

Il s'agit du mécanisme de transfert des porteurs des couches de barrières vers les états confinés des boîtes quantiques ( $3D \rightarrow 2D \rightarrow 0D$ ).

Lorsque l'excitation optique se produit à suffisamment haute énergie (valeur supérieure à l'énergie de la bande interdite du GaAs), les porteurs en excès ou photoporteurs sont excités dans la couche de GaAs de surface, mais aussi en profondeur, dans l'échantillon (Figure 2.27). Si on considère l'absorption dans un matériau homogène de GaAs (coefficient d'absorption de  $0.004 \text{ nm}^{-1}$  à 20 K,  $E=2 \text{ eV}$ ), alors on peut observer que 33 % des photoporteurs sont absorbés dans la couche de surface (100 nm), et 62 % sont absorbés dans les 25 plans de couches de boîtes quantiques.

Les cinétiques du signal de photoluminescence émis par les porteurs dans le GaAs sont assez semblables à différentes densités d'excitation (Figure 2.28). Seule l'amplitude du signal change significativement. Le court temps observé (environ 40 ps) et le fait que ce temps semble indépendant de la densité d'excitation indiquent que les processus de capture et/ou de diffusion (ou transport) seraient efficaces et probablement toujours les mêmes.

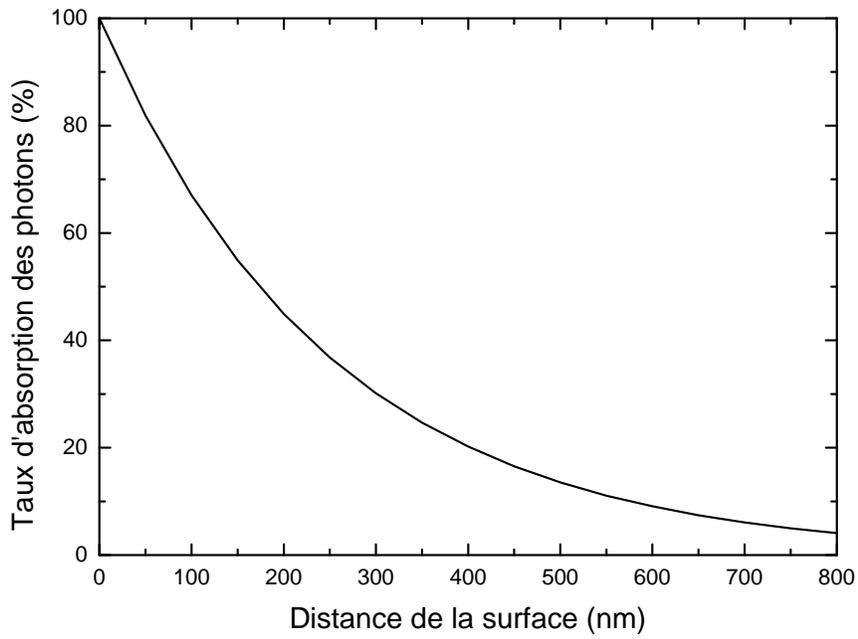


Figure 2.27: Distribution initiale des photoporteurs dans le GaAs, en considérant un matériau homogène de coefficient d'absorption  $0.004 \text{ nm}^{-1}$ ,  $T=20 \text{ K}$ ,  $E=2 \text{ eV}$ .

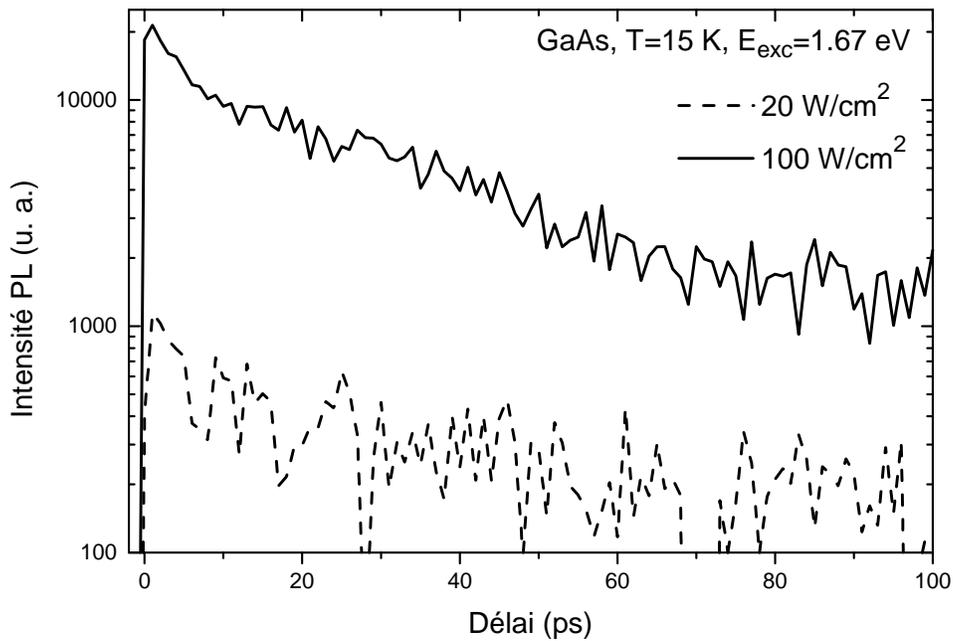


Figure 2.28: Cinétique de photoluminescence correspondant au signal émis par le GaAs, à différentes densités d'excitation, pour l'échantillon multicouches non recuit.

De plus, si l'on compare le temps de vie des porteurs dans le GaAs dans différents échantillons recuits (correspondant à différentes énergies interniveaux), on remarque que le temps de décroissance du signal du GaAs augmente de façon significative lorsque le recuit est important (Figure 2.29). Cet effet n'est pas dû à la ré-émission thermique des porteurs confinés dans les boîtes, car on observe une diminution du temps de décroissance quand la température augmente, alors que la ré-émission thermique devrait augmenter le nombre de porteurs (et par conséquent le temps de décroissance) dans les barrières à 90 K.

À cette relativement faible puissance d'excitation (moins de 10 excitons par boîte), les processus Auger ne devraient pas être très efficaces, et de toutes façons, comme on le verra plus loin, leur rôle est à peu près semblable, que les boîtes soient recuites ou non. De plus, les boîtes sont loin d'être saturées de porteurs, il est donc peu probable que l'effet observé soit dû au remplissage de la couche de mouillage.

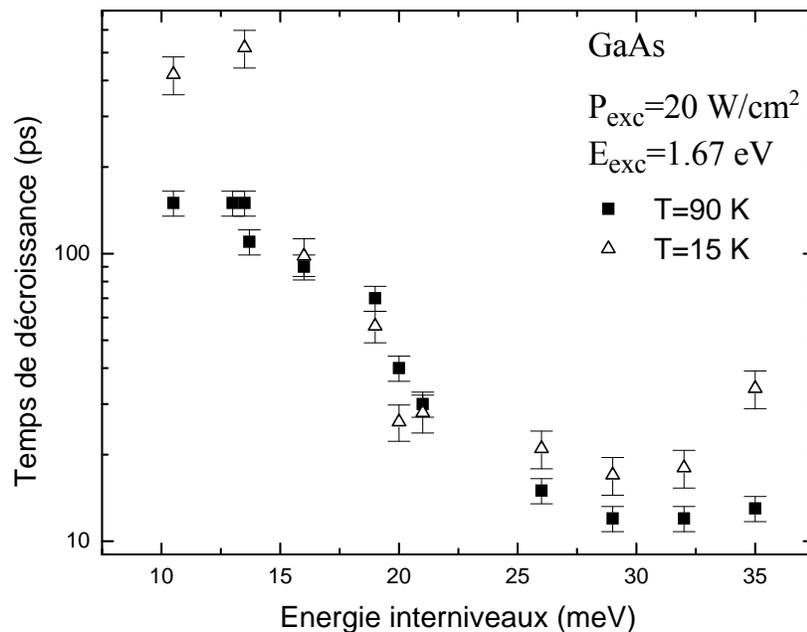


Figure 2.29: Temps de décroissance du signal de la PL de la transition du GaAs, pour des échantillons multicouches ayant différentes énergies interniveaux ( $E_{n=2}-E_{n=1}$ ).

La variation très progressive du temps de décroissance indique qu'on ne peut pas non plus mettre en cause une diminution du nombre de niveaux confinés dans les boîtes les plus recuites qui aurait augmenté les effets de saturation.

Par ailleurs, un couplage plus important entre les niveaux de barrière et les niveaux 0D lorsque les boîtes sont interdiffusées aurait pour effet de diminuer les temps de capture lorsque la séparation interniveaux est faible.

Il est possible que des processus multiphononiques jouent un rôle décisif, si on admet que ces processus sont moins efficaces, et limitent la capture des porteurs lorsque la séparation interniveaux est faible (inférieure à 22 meV). Mais, du fait de la densité d'états 2D de la couche de mouillage, le ralentissement des processus multiphononiques est peu vraisemblable.

En fait, l'augmentation du temps de décroissance est très probablement due à une réduction de l'efficacité de la capture, à cause d'une localisation plus importante des porteurs dans les barrières (apparition et augmentation d'une barrière de potentiel d'InGaAs à l'interface InAs/GaAs, peut-être due à la ségrégation de l'Indium, à cause de l'interdiffusion).

La couche de mouillage (CM), dont l'énergie de transition et la dimensionalité sont intermédiaires entre celles du GaAs et des boîtes quantiques, peut aussi jouer un rôle important lors de la capture des porteurs.

De manière semblable à la figure précédente, on observe une augmentation du temps de vie des porteurs dans la couche de mouillage quand l'énergie interniveaux est réduite, à basse densité d'excitation (Figure 2.30). On considère que ce temps de vie correspond principalement au temps de capture des porteurs dans les boîtes, processus plus rapide que la recombinaison des porteurs. La localisation des porteurs peut affecter de façon significative les processus de capture.

La capture des porteurs de la CM vers les niveaux 0D devient donc de moins en moins rapide lorsque l'énergie interniveaux est réduite, de manière très semblable à la capture des porteurs du GaAs vers la CM. Il est intéressant de noter que les temps de décroissance sont du

même ordre de grandeur dans les deux cas, alors qu'il s'agit du transport de porteurs entre structures de dimensionalité différente (3D→2D et 2D→0D). Là encore, il pourrait s'agir d'un ralentissement des processus multi-phononiques, mais la densité d'états 0D dans les boîtes est beaucoup plus faible que la densité d'états 2D dans la CM, et il serait vraiment étonnant que le même ralentissement se produise dans les deux structures de caractéristiques très différentes.

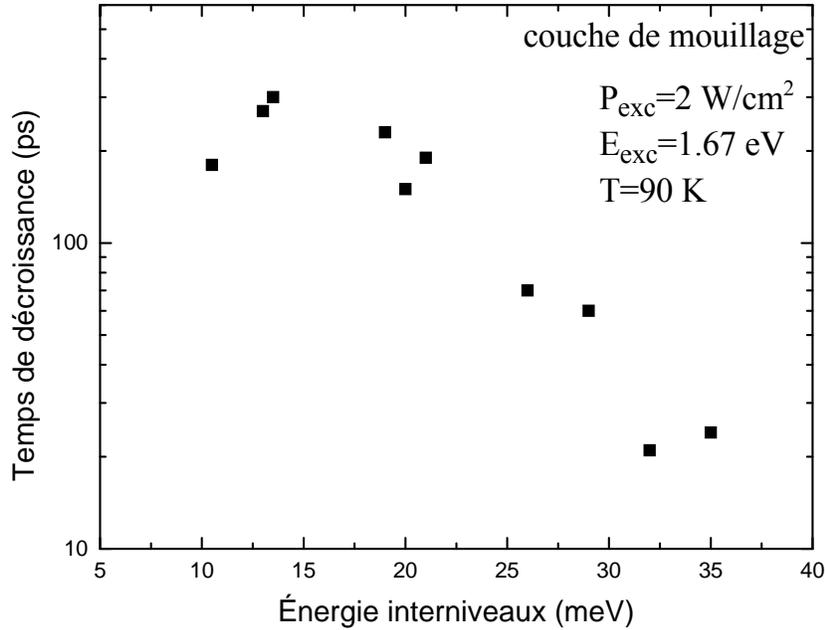


Figure 2.30: Temps de décroissance du signal de PL pour la couche de mouillage, en fonction de l'énergie interniveaux  $E_{n=2} - E_{n=1}$ , pour les échantillons multicouches.

À plus basse température, le temps de décroissance de la CM est sensiblement plus long (Figure 2.31), donc la ré-émission thermique des porteurs de la couche de mouillage vers le GaAs pourrait jouer un rôle significatif à 90 K.

La composition de la couche de mouillage change durant l'interdiffusion, comme en témoigne le décalage de la transition observé sur la Figure 2.12. Il est possible qu'elle contienne davantage de défauts structuraux susceptibles de piéger des porteurs. Mais on observerait alors une réduction de l'efficacité lumineuse des BQ ayant été interdiffusées, ce qui n'a pas été observé expérimentalement. Il est possible aussi que l'interdiffusion des matériaux entraîne l'apparition d'une barrière de potentiel qui pourrait limiter la capture des porteurs. On peut supposer que cette

barrière se formerait à l'interface InAs/GaAs et affecterait principalement les zones où l'interdiffusion joue un rôle critique. Cela pourrait expliquer l'augmentation du temps de décroissance du signal de PL de la CM et du GaAs.

Lorsqu'on augmente la puissance d'excitation, trois types de mécanismes Auger sont susceptibles de modifier la distribution des porteurs dans les boîtes. Le premier fait intervenir deux porteurs de la couche de mouillage dont l'un est capturé dans les boîtes après la collision, il favorise donc le dépeuplement de la CM. Le second fait intervenir deux porteurs confinés dans un même niveau 0D dont l'un relaxe et l'autre est ré-émis à plus haute énergie. Ce mécanisme, au contraire du précédent, augmente le nombre de porteurs de la CM. Et le dernier concerne l'interaction entre un porteur de la couche de mouillage et un porteur de la boîte. Ce mécanisme ne devrait pas jouer de rôle significatif sur la population de la couche de mouillage s'il y a seulement un échange d'énergie entre les deux porteurs.

Les résultats expérimentaux montrent que le temps de décroissance de la CM suit deux tendances différentes: à 15 K, il semble diminuer, et à 90 K, il augmente avec la puissance d'excitation (Figure 2.31). La délocalisation et l'augmentation des interactions entre porteurs quand on augmente la température et la densité d'excitation pourraient jouer un rôle critique.

À basse densité d'excitation, lorsqu'on augmente la température de l'échantillon (de 15 K à 90 K), le temps de décroissance de la couche de mouillage devient extrêmement rapide (Figure 2.31). Le transport devient probablement plus efficace lorsque la température est suffisamment élevée. L'augmentation du temps de décroissance de la couche de mouillage avec la densité d'excitation peut être attribuée au remplissage des niveaux de plus basse énergie, quand la capture et la relaxation sont relativement efficaces, ou à la ré-émission thermique des porteurs 0D vers la couche de mouillage. Cet effet est clairement plus efficace à 90 K qu'à 15 K, peut-être parce que les processus Auger de relaxation intra-boîtes (le coefficient Auger augmente avec la température<sup>124</sup>) amplifient ce phénomène de remplissage. À basse température et faible excitation, l'augmentation du temps de décroissance peut être due à l'augmentation du nombre de porteurs localisés. L'effet de remplissage devrait aussi se manifester à 15 K, mais la délocalisation assistée par des collisions porteurs-porteurs (quand on augmente la densité d'excitation) semble dominer cet effet dans le comportement en température.

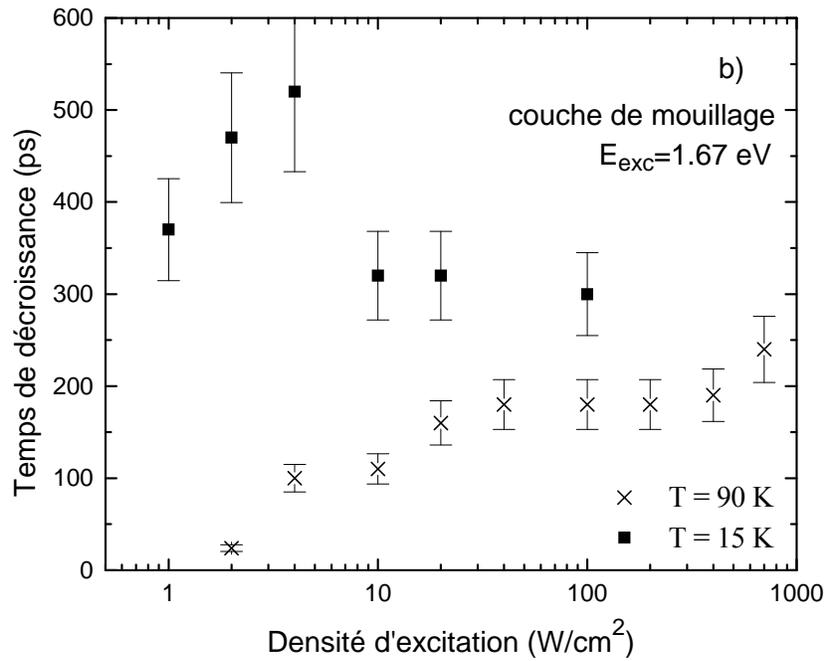
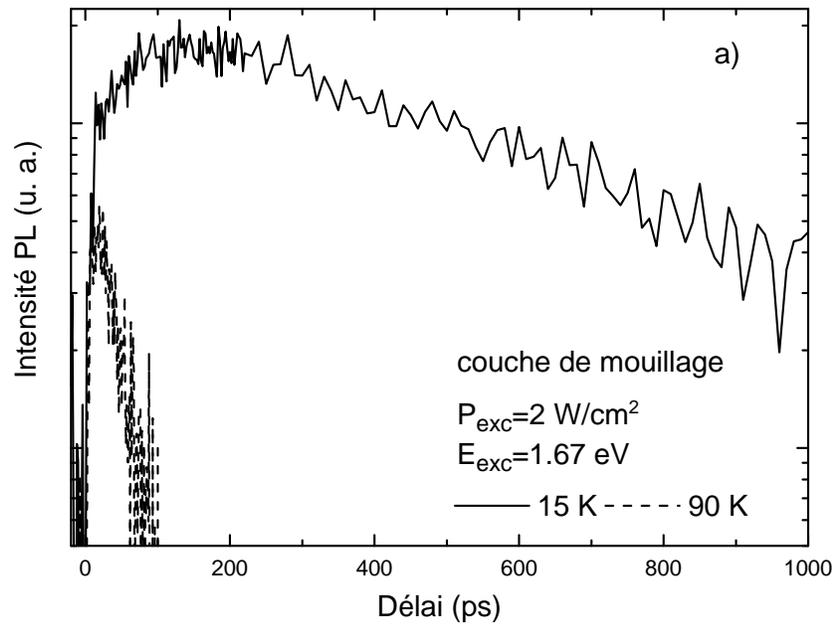


Figure 2.31: Signal de PL de la couche de mouillage en fonction de la température et de la puissance d'excitation: cinétiques (a) et temps de décroissance (b) à deux températures différentes, pour l'échantillon multicouches non recuit.

En fait, le temps de décroissance de la CM est beaucoup plus sensible à une variation de la température qu'à une variation de la puissance d'excitation. Les mécanismes Auger ne semblent donc pas jouer un rôle dominant. La forte dépendance en température observée suggère un rôle important de la localisation des porteurs à basse température, qui limiterait la diffusion latérale et par conséquent la capture des porteurs par les boîtes. Ainsi, lorsque la température devient suffisamment importante, les excitons sont dissociés en porteurs libres dans la couche de mouillage, et ils peuvent éventuellement surmonter la barrière de potentiel grâce à l'énergie thermique acquise, ce qui peut augmenter fortement le taux de capture, à basse excitation.

La Figure 2.32 montre comment le temps de vie des porteurs dans la couche de mouillage varie en fonction de la température. À basse température, le temps de décroissance est plus long dans l'échantillon recuit que dans celui qui ne l'est pas, mais à partir d'environ 100 K, il est semblable. À basse température, cet effet est probablement dû à la diffusion plus lente des excitons ou à la localisation de porteurs dans la couche de mouillage, qui limite le processus de capture, en particulier dans l'échantillon recuit (mais l'échantillon dit "non-recuit" a probablement subi un léger recuit pendant la fabrication, comme on l'a vu dans la section 2.3.2).

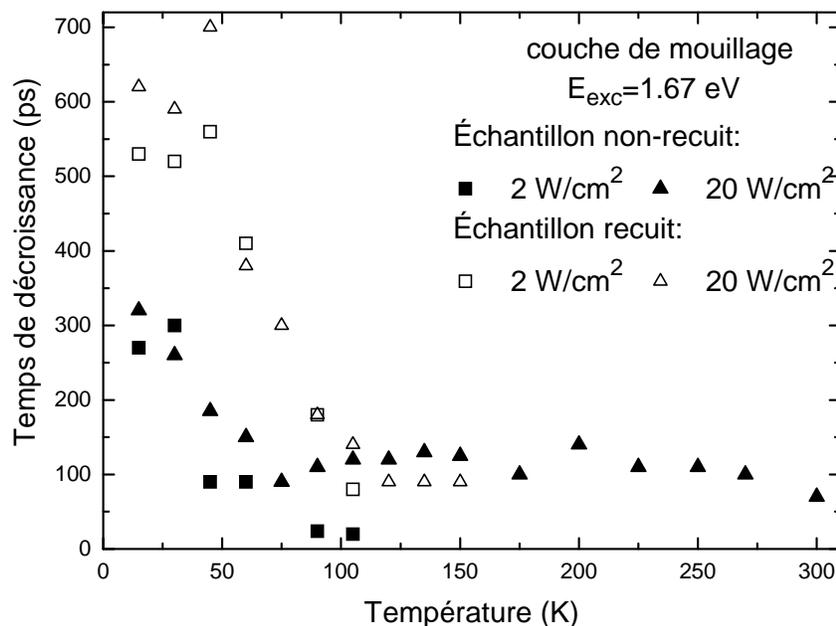


Figure 2.32: Temps de décroissance du signal de PL de la couche de mouillage pour l'échantillon multicouches recuit (30 s à 880°C,  $\text{SiO}_2$ ,  $E_{CM}-E_{n=1}=25 \text{ meV}$ ) et non recuit ( $E_{CM}-E_{n=1}=176 \text{ meV}$ ), en fonction de la température.

D'autre part, le fait que le temps de décroissance soit plus ou moins constant à partir de 100 K (à  $20 \text{ W/cm}^2$ ), et dans un large domaine de température indique que ce temps de vie des porteurs correspond à un équilibre entre l'effet de saturation des niveaux confinés et la ré-émission thermique vers les barrières d'une part, et la capture assistée par les phonons et les processus Auger d'autre part. À très forte densité d'excitation, ce temps devrait correspondre au temps de recombinaison des porteurs dans la couche de mouillage.

À plus basse densité d'excitation ( $2 \text{ W/cm}^2$ ), le signal de la couche de mouillage disparaît vers 100 K, pour les deux échantillons, probablement à cause du faible remplissage et du court temps de capture.

La faible dépendance du temps de décroissance en fonction de la puissance d'excitation suggère un effet particulièrement important de la délocalisation des porteurs à basse température: la capture dépend principalement de la hauteur de la barrière et de l'énergie des porteurs. On peut se rappeler que l'échantillon dit "non-recuit" a cependant subi un léger recuit pendant sa croissance et peut donc présenter une petite barrière de potentiel<sup>137</sup>.

Nous avons aussi étudié l'effet de la température sur les temps de décroissance des différents niveaux confinés des boîtes. Cette étude nous a permis de dégager de nombreuses observations:

a) Échantillon non recuit (Figure 2.33)

- D'abord, à basse densité d'excitation, le temps de montée de la couche de mouillage (CM) est plus court que celui du niveau fondamental ( $s$  ou  $n=1$ ), pour l'échantillon non recuit. Cela confirme l'hypothèse de capture en cascade: les porteurs du GaAs sont d'abord capturés par la couche de mouillage, puis par les niveaux des boîtes.
- Le temps de montée des niveaux excités est supérieur à celui des niveaux de plus basse énergie. Cela peut être dû au fait que la capture des porteurs de la CM se produit vers tous les niveaux 0D. La dégénérescence des niveaux de plus basse énergie est plus faible et ces états saturent donc plus vite. On peut aussi envisager le cas où les porteurs sont capturés seulement par le niveau d'énergie supérieur qui se vide plus vite qu'il ne se remplit vers les niveaux d'énergie inférieurs. Dans ce cas, l'augmentation des temps de montée des niveaux supérieurs serait alors directement liée au remplissage des niveaux de basse énergie. D'autres effets

peuvent expliquer le remplissage prématuré des états à haute énergie: le remplissage aléatoire des boîtes<sup>91</sup> et la présence d'états à multiparticules<sup>100,138</sup>. En effet, Dekel *et al.* observent une augmentation du temps de montée pour les niveaux de plus haute énergie, dans une boîte quantique unique<sup>100</sup>.

- Quand la température de l'échantillon augmente, les temps de montée diminuent, en particulier pour les niveaux de plus haute énergie. Cela peut être dû à des processus multiphononiques efficaces pour la capture et/ou la relaxation interniveaux. Les mécanismes Auger pourraient aussi intervenir, mais ne devraient pas jouer de rôle important à faible excitation. D'autre part, nous avons montré que la ré-émission thermique peut être efficace et favoriser le dépeuplement des niveaux à haute énergie au profit des barrières. Mais elle ne devrait pas jouer de rôle significatif sur la population du niveau fondamental avant 100 K.
- À haute température et basse densité d'excitation, le temps de montée du signal des niveaux confinés semble tendre vers une valeur d'environ 40-50 ps: la capture et la relaxation sont donc très efficaces.

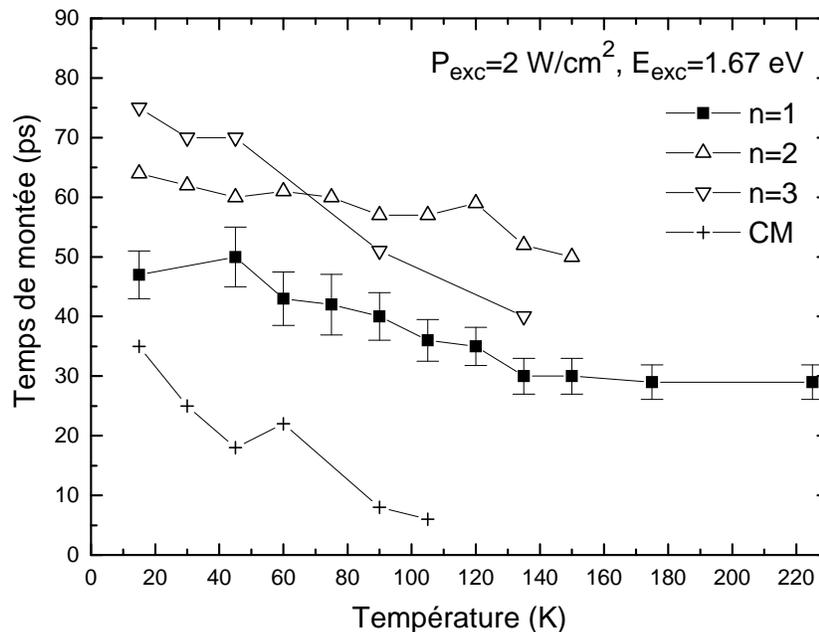


Figure 2.33: Temps de montée de PL pour différents niveaux en fonction de la température de l'échantillon multicouches non recuit.

b) Échantillon très recuit (Figure 2.34)

- Le temps de montée des niveaux excités est similaire ou plus court que celui du niveau fondamental. Cela pourrait suggérer un mécanisme de remplissage différent de celui observé dans l'échantillon non recuit. La barrière de potentiel induite dans les barrières, à l'interface InAs/GaAs pourrait jouer un rôle important en ralentissant le transport des porteurs vers les niveaux confinés des BQs à plus basse énergie.
- Lorsque la température augmente, la population de porteurs augmente très rapidement dans les différents niveaux des boîtes (temps de montée très courts): la capture et la relaxation deviennent très rapides. Cela est probablement dû à la dissociation et délocalisation des excitons, ainsi qu'à l'efficacité particulièrement grande de la ré-émission thermique et/ou des processus multiphononiques, lorsque la séparation interniveaux est réduite.
- À plus haute température ( $T > 60$  K), les temps de montée de tous les niveaux deviennent identiques, et il en est de même pour les temps de décroissance (Figure 2.37). Cela suggère l'apparition d'un certain recouvrement entre les fonctions d'onde des états 0D peu confinés et ceux de la CM, quand tous les états 0D et 2D sont rapprochés. La capture/relaxation multiphononique et la ré-émission thermique doivent jouer un rôle important. Le fait que les temps de montée et de décroissance deviennent semblables suggère que ces processus pourraient être d'autant plus importants que la séparation interniveaux est réduite, et que le confinement des porteurs est faible. Il pourrait se former un équilibre entre les populations des niveaux 0D quand l'énergie interniveaux est faible et devient comparable à  $k_B T$ . À noter que l'écart entre la transition associée à la CM et celle associée au niveau fondamental est d'environ 176 meV pour les BQs non-recuites, et d'environ 25 meV pour les BQs très recuites, à 15 K. Donc, l'écart énergétique est plus proche de la valeur du phonon LO dans le cas des BQs très recuites, ce qui pourrait faciliter la capture phononique vers l'état fondamental. Mais nous avons aussi mis en évidence l'importance de la ré-émission thermique (augmentation du nombre de porteurs dans la couche de mouillage à haute température).

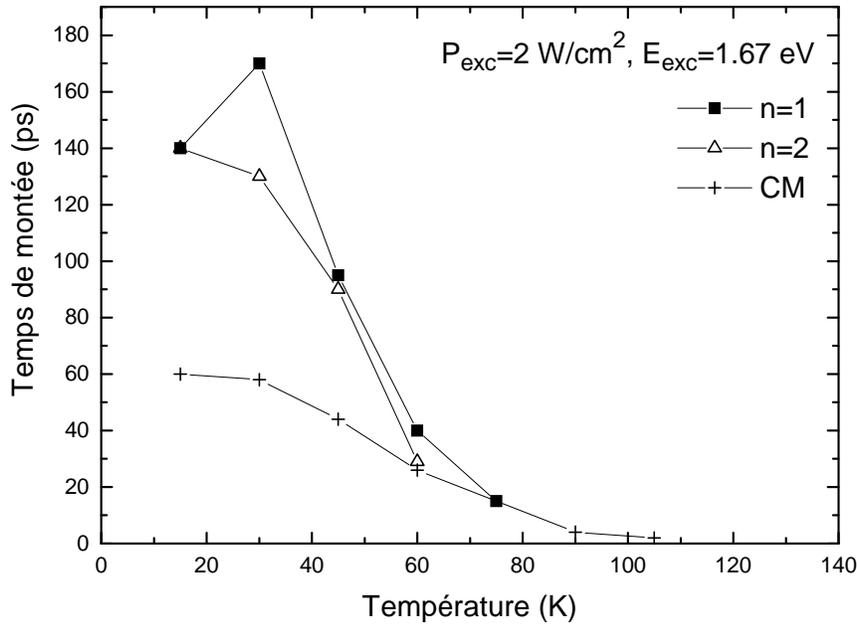


Figure 2.34: Temps de montée de PL pour différents niveaux de l'échantillon très recuit (30 s à 880°C, SiO<sub>2</sub>,  $E_{CM}-E_{n=1}=25 \text{ meV}$ ), en fonction de la température.

On peut noter que le temps de décroissance du signal associé à la couche de mouillage est généralement beaucoup plus long que le temps de remplissage des états 0D. Or l'absorption des photo-porteurs incidents par les boîtes est négligeable. Donc, ceci suggère que le temps de décroissance de la CM n'est pas corrélé au temps de capture. En fait, le signal de PL observé à l'énergie de la CM proviendrait surtout de la recombinaison des porteurs dans des régions de confinement accru (localisation) avec un temps caractéristique de recombinaison qui dépend du recouvrement des fonctions d'onde électrons-trous dans ces régions. D'autres porteurs de la CM se trouvant à l'extérieur de ces zones de forte localisation pourraient être capturés efficacement par les boîtes.

De manière semblable, le temps de décroissance du signal associé au GaAs est plus long que le temps de montée associé aux états de la CM. Dans ce cas, il est possible qu'une partie de l'excitation incidente soit absorbée par la couche de mouillage 2D, ce qui pourrait expliquer le court temps de montée observé. Il n'est toutefois pas impossible que le temps de décroissance dans le GaAs soit aussi dû à des porteurs localisés dans certaines régions (interface InAs/GaAs?), ou encore limité par la lente diffusion des porteurs dans la couche de recouvrement.

La capture/relaxation des porteurs est donc fortement dépendante non seulement de la température et de la densité d'excitation, mais aussi de l'énergie interniveaux des boîtes quantiques. Suite à l'interdiffusion des boîtes, des porteurs se trouvant dans certaines zones de la CM et du GaAs sont localisés, ce qui limite le transport de porteurs à basse température. Il est possible que cet effet soit dû à la présence d'une barrière de potentiel (peut-être d'InGaAs), dont la hauteur augmenterait après interdiffusion.

### ***2.4.3 Remplissage des niveaux des boîtes***

À relativement forte densité d'excitation, lorsque les niveaux de plus basse énergie deviennent remplis, des effets de saturation apparaissent: les porteurs en excès ne peuvent relaxer vers des niveaux inférieurs et restent donc dans les niveaux de plus haute énergie ou dans les barrières. La capture et la relaxation interniveaux des porteurs sont donc ralenties. La saturation des niveaux se manifeste par l'apparition d'un plateau sur les cinétiques de PL, qui se traduit par un retard du dépeuplement de ces niveaux.

Dans la figure suivante (Figure 2.35), le temps de montée plus long des niveaux de plus haute énergie indique que ces niveaux mettent plus de temps à se remplir, à basse densité d'excitation. La capture par tous les niveaux permet un remplissage rapide des niveaux de basse énergie qui saturent plus vite car la dégénérescence de ces niveaux est faible. Les processus de relaxation Auger intra-boîte (entre porteurs du même niveau d'énergie) favorise aussi le remplissage des états de basse énergie aux dépens de ceux à plus haute énergie.

De plus, il est intéressant de noter que l'écart entre les temps de montée des différents niveaux diminue quand la densité d'excitation augmente, jusqu'à ce qu'ils deviennent tous égaux à une valeur d'environ 11 ps (Figure 2.35). Le temps de montée des niveaux de plus haute énergie diminue donc plus vite que celui des niveaux de plus basse énergie. Le temps de montée d'un niveau excité dépend des divers processus en compétition, à savoir: la capture des barrières, la relaxation interniveaux (en tenant compte du remplissage des niveaux inférieurs) et la recombinaison des porteurs. Les résultats observés peuvent être expliqués par le fait qu'à forte excitation, la capture directe des porteurs par des mécanismes de type Auger, des barrières vers

tous les niveaux confinés, domine la relaxation interniveaux. Ce temps limite d'environ 10 ps correspond au temps de capture des porteurs par collisions entre porteurs (effet Auger) à 15 K, pour cet échantillon<sup>142</sup>. Mais pourquoi ce temps est-il limité à 10 ps? Il ne s'agit pas de la limite de résolution expérimentale qui est beaucoup plus faible.

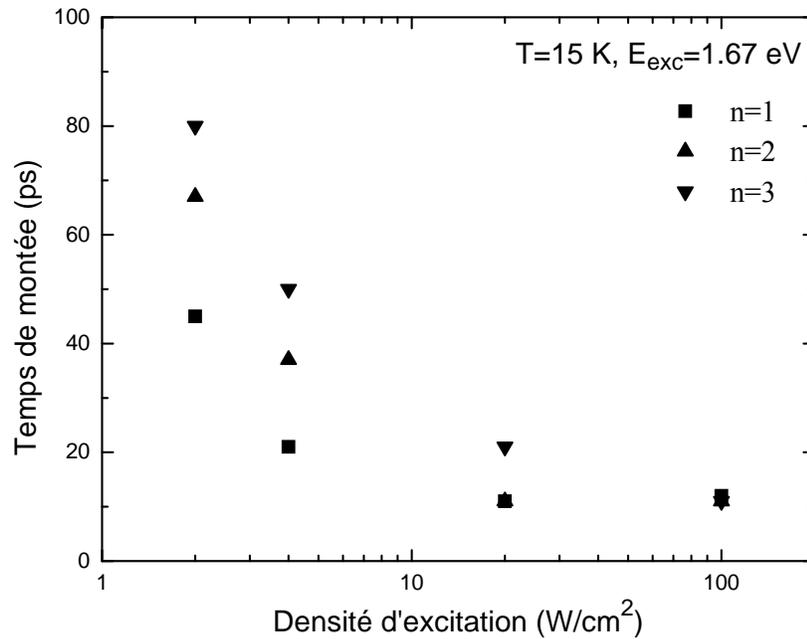


Figure 2.35: Temps de montée de la PL des niveaux de plus basse énergie en fonction de la puissance d'excitation, pour l'échantillon multicouches non-recuit.

À noter que nos résultats sont contradictoires avec ceux obtenus par Dekel et al. qui indiquent une augmentation des temps de montée avec l'excitation, pour des boîtes quantiques uniques<sup>100</sup>. Il reste à déterminer si ce désaccord est dû au régime d'excitation.

Sur la Figure 2.36, on observe une augmentation des temps de décroissance de tous les niveaux en fonction de la densité d'excitation, probablement due aux effets de remplissage et aux mécanismes Auger.

Les valeurs des temps de montée (Figure 2.35) sont beaucoup plus faibles que celles des temps de décroissance (Figure 2.36). Le fait que les temps de montée soient aussi courts, même à

basse densité d'excitation, lorsque les mécanismes Auger sont négligeables, suggère un rôle important de la capture multiphononique des porteurs par tous les niveaux confinés, ou la présence d'un autre mécanisme de capture.

Le fait que les temps de montée soient aussi courts à forte excitation et deviennent semblables pour tous les niveaux suggère un rôle dominant de la capture par mécanismes Auger entre deux porteurs de la CM, ou bien entre un porteur de la CM et un porteur 0D.

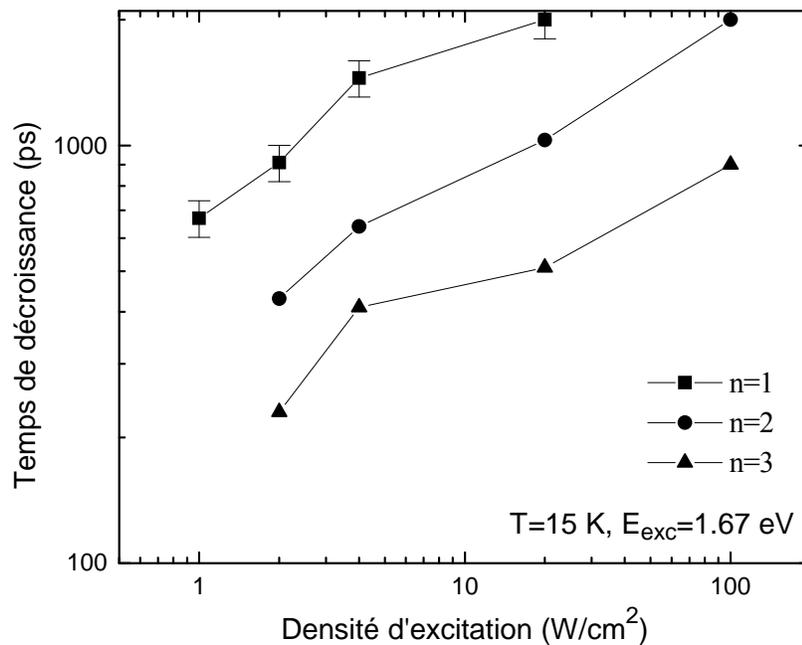


Figure 2.36: Temps de décroissance de la PL des niveaux confinés de plus basse énergie en fonction de la puissance d'excitation, pour l'échantillon multicouches non-recuit.

Nous avons aussi étudié la décroissance du signal de PL des différents niveaux en fonction de la température, pour deux échantillons différents (Figure 2.37). À relativement basse température, les temps de décroissance des niveaux sont à peu près constants: le gain de porteurs par délocalisation et dissociation des excitons est compensé par la perte de porteurs par la ré-émission thermique hors des boîtes. Puis, à plus haute température, la ré-émission thermique des porteurs devient dominante, ce qui se traduit par une diminution rapide du temps de décroissance des niveaux.

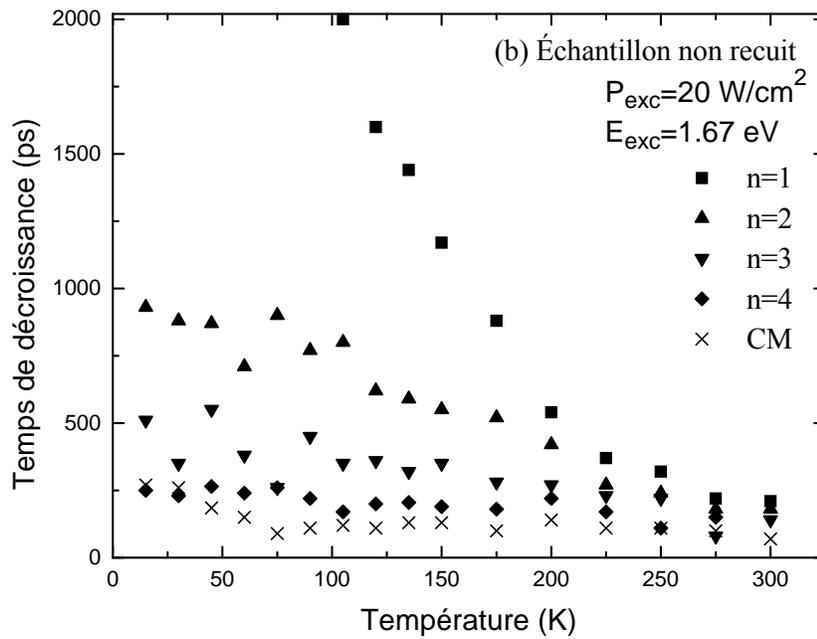
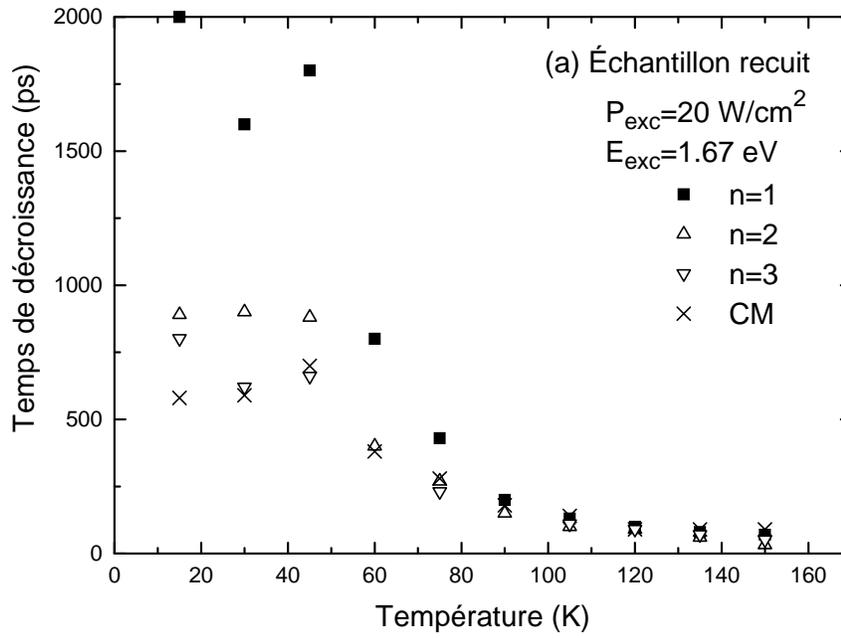


Figure 2.37: Temps de décroissance de la PL en fonction de la température pour les différents niveaux de l'échantillon multicouches recuit 30 s à 880°C,  $\text{SiO}_2$ ,  $E_{CM}-E_{n=1}=25 \text{ meV}$  (a) et non recuit (b). À cette densité d'excitation, le temps de décroissance du niveau fondamental de l'échantillon non recuit est supérieur à 2 ns à basse température.

À haute température (environ 275 K pour l'échantillon non-recuit et 90 K pour l'échantillon très recuit), les temps de décroissance tendent vers une valeur constante. Pour l'échantillon recuit, le temps de décroissance est identique pour tous les niveaux, y compris le niveau fondamental ( $\approx 60$  ps à 150 K), ce qui indique une redistribution très efficace des porteurs entre tous les niveaux des boîtes et ceux de la CM (Figure 2.37a). Ce résultat n'est pas vraiment étonnant si l'on tient compte du fait que, pour l'échantillon recuit, le confinement des porteurs est relativement faible, et que l'énergie interniveaux est d'environ 11 meV comparable à  $k_B T$  à 130 K. Il est possible aussi que les porteurs se recombinent efficacement par un nouveau canal de recombinaison non-radiatif activé thermiquement qui resterait à identifier.

Dans l'échantillon non-recuit, en revanche, le temps de décroissance des niveaux de plus basse énergie reste toujours supérieur à celui des niveaux de plus haute énergie, même à haute température (Figure 2.37b). La relaxation interniveaux en cascade, qui est limitée par le remplissage des niveaux, reste donc efficace malgré l'influence de la ré-émission thermique.

En conclusion, les processus de capture et de relaxation multiphononiques et de type Auger facilite le remplissage des boîtes. Mais le temps de capture et de relaxation interniveaux peut être limité par la localisation des porteurs à basse température. Quant au temps de décroissance des différents niveaux, il est généralement limité par le remplissage des niveaux de plus basse énergie.

#### ***2.4.4 Ralentissement de la relaxation***

Le fait que les temps de montée et de décroissance des différents niveaux varient en fonction de la température indique une possible influence des phonons du système lors de la relaxation des porteurs. L'émission ou l'absorption phononique est un processus inélastique qui fait intervenir un échange d'énergie entre un porteur et un phonon du système. Ces mécanismes sont plus efficaces quand la température augmente car le nombre de phonons devient plus important. Ce processus de relaxation très efficace dans les structures de plus haute

dimensionnalité serait-il ralenti en 0D? Peut-on observer le "phonon bottleneck" prédit par la théorie?

Les résultats précédents ont montré que la capture et la relaxation pouvaient être très rapides. Toutefois, à basse température, lorsqu'on compare le temps de montée du niveau fondamental en fonction de la séparation interniveaux (pour des échantillons recuits à différents degrés), on obtient la courbe présentée à la Figure 2.38 qui semble indiquer un net ralentissement de la relaxation lorsque l'énergie interniveaux devient inférieure à environ 20 meV, à basse densité d'excitation. Cette séparation interniveaux correspond à une énergie de confinement des porteurs dans les boîtes d'environ 70 meV<sup>143</sup>. L'effet observé est probablement lié au ralentissement de la capture suite à la localisation des porteurs à l'interface InAs/GaAs tel que décrit précédemment, mais on ne peut exclure un ralentissement supplémentaire de la relaxation interniveaux.

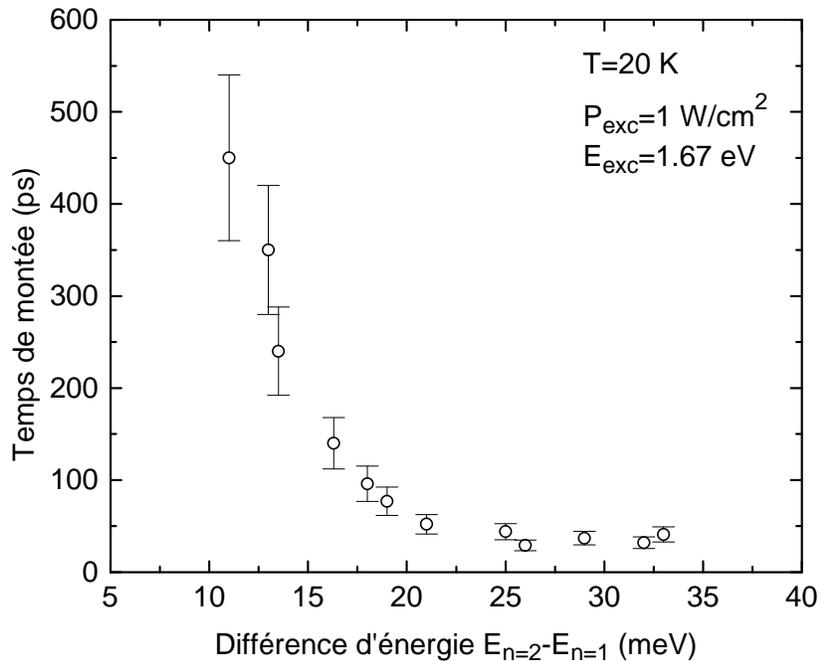


Figure 2.38: Temps de montée de la PL du niveau fondamental (n=1) en fonction de l'énergie entre deux transitions successives, pour les échantillons multicouches.

Contrairement aux résultats obtenus à 20 K, le temps de capture/relaxation semble identique pour tous les échantillons, quelle que soit la séparation interniveaux, à 90 K (Figure 2.39). Nous avons envisagé différents modèles de capture/relaxation assistés par émission de

phonons pour expliquer nos résultats. Mentionnons, par exemple, le modèle de Li *et al.* basé sur le couplage électron-phonon montre que la relaxation des porteurs peut être efficace même lorsque l'énergie interniveaux est relativement différente de l'énergie des phonons présents, mais il ne tient pas compte de la ré-émission thermique<sup>107</sup>. Ce modèle ne permet pas de reproduire nos résultats expérimentaux car, tel que décrit précédemment, l'augmentation du temps de montée semble être liée à l'apparition d'une barrière de potentiel qui localise les porteurs à basse température.

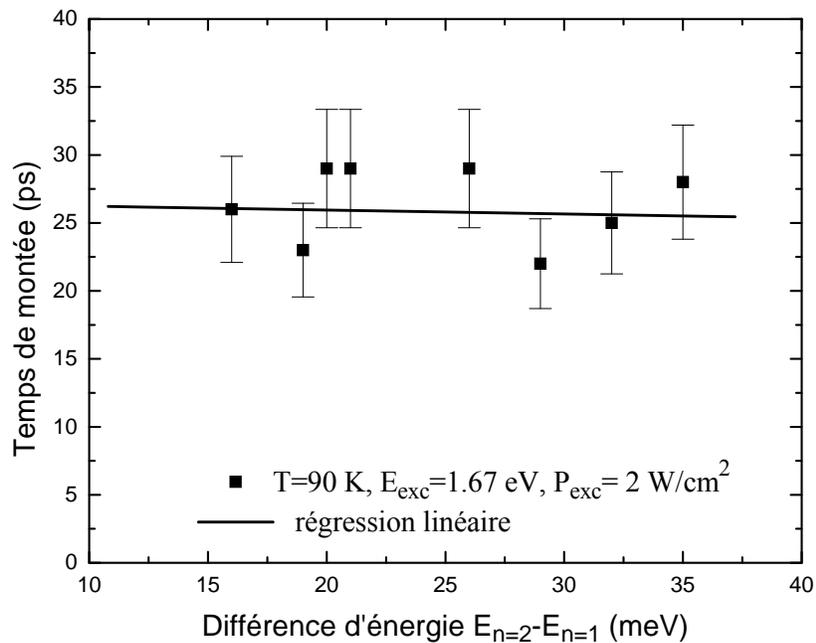


Figure 2.39: Temps de montée de la PL du niveau fondamental ( $n=1$ ) en fonction de l'énergie entre deux transitions successives, pour les échantillons multicouches.

De plus, en observant la dépendance en température du temps de montée du niveau fondamental de différents échantillons recuits, on observe un phénomène très intéressant (Figure 2.40). L'échantillon non recuit présente une faible dépendance en fonction de la température tandis que les autres échantillons présentent une dépendance d'autant plus forte que la séparation interniveaux est réduite.

À noter qu'on a modifié l'énergie de détection du signal de PL en fonction de la température, afin de continuer à sonder la même population de boîtes quantiques.

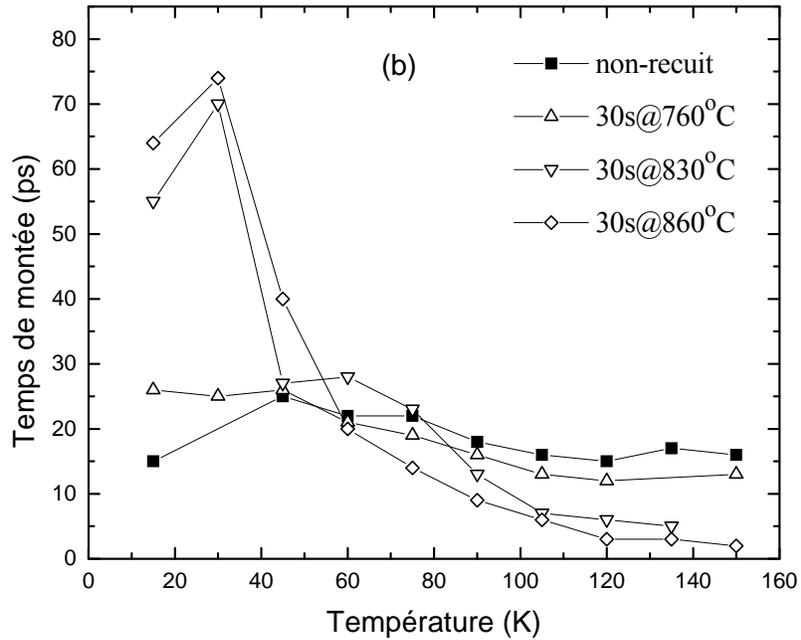
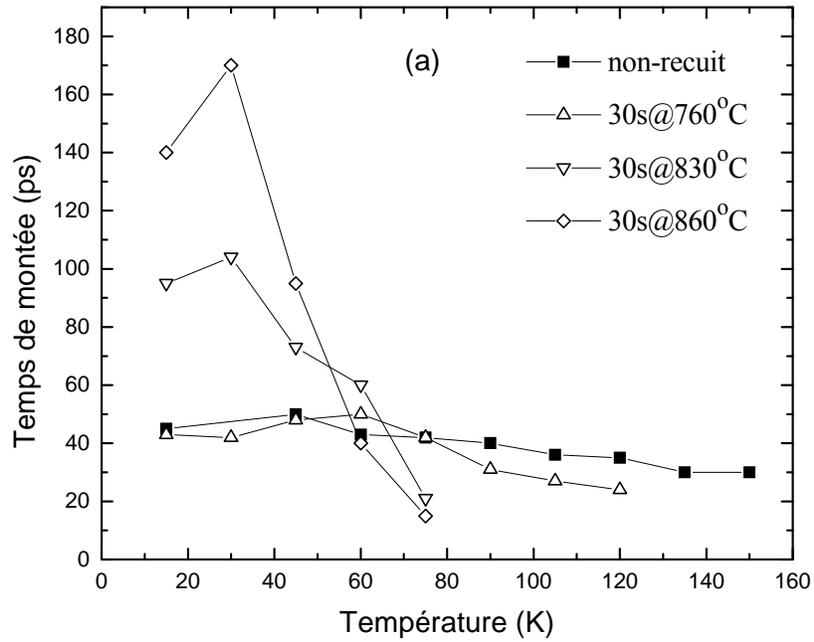


Figure 2.40: Temps de montée de la PL en fonction de la température pour le niveau fondamental ( $n=1$ ) d'échantillons multicouches d'InAs/GaAs recuits ou non, à une densité d'excitation de  $2 \text{ W/cm}^2$  (a), et de  $20 \text{ W/cm}^2$  (b),  $E_{\text{exc}}=1.67 \text{ eV}$ .

Le temps de montée augmente très fortement à basse température, puis il devient extrêmement court à haute température, pour les échantillons très recuits. Cet effet est particulièrement marqué à basse densité d'excitation (Figure 2.40a). Il est toujours observé lorsque la densité d'excitation augmente, bien que les temps de relaxation deviennent plus rapides pour tous les échantillons (Figure 2.40b). On observe distinctement un temps limite à haute température, qui est différent pour chaque courbe (environ 2 ps pour l'échantillon recuit 30 s à 880°C). Le temps le plus court correspond aux boîtes dont la séparation interniveaux est la plus faible.

Pour expliquer ce phénomène, notons que le temps de montée du niveau fondamental dépend à la fois de la capture et de la relaxation interniveaux. À basse excitation, les processus de capture/relaxation multiphononiques et/ou la ré-émission thermique des porteurs hors des boîtes sont probablement responsables des courts temps de montée observés, lorsque la température devient supérieure à environ 60 K. À basse température (20 K-60 K), la localisation des porteurs dans les barrières, ainsi que la dissociation réduite des excitons contribuent probablement au ralentissement de la capture des porteurs, comme observé précédemment.

Les mêmes observations ont déjà été rapportées pour des échantillons de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs fabriqués par MOCVD<sup>136</sup> bien que tous les temps de montée soient plus rapides (Figure 2.41). Pour l'échantillon non recuit, la dépendance en température est insignifiante, mais elle devient de plus en plus importante pour les échantillons recuits. On observe aussi une augmentation du temps de montée à basse température, qui devient très rapide quand la température est supérieure à 100 K, pour l'échantillon très recuit. À 90 K, les temps de montée sont aussi très semblables pour tous les échantillons, quelle que soit la séparation interniveaux. La ressemblance entre les courbes obtenues pour des échantillons différents suggère que cet effet pourrait être une caractéristique spécifique aux boîtes quantiques, probablement liée à la hauteur des barrières de confinement.

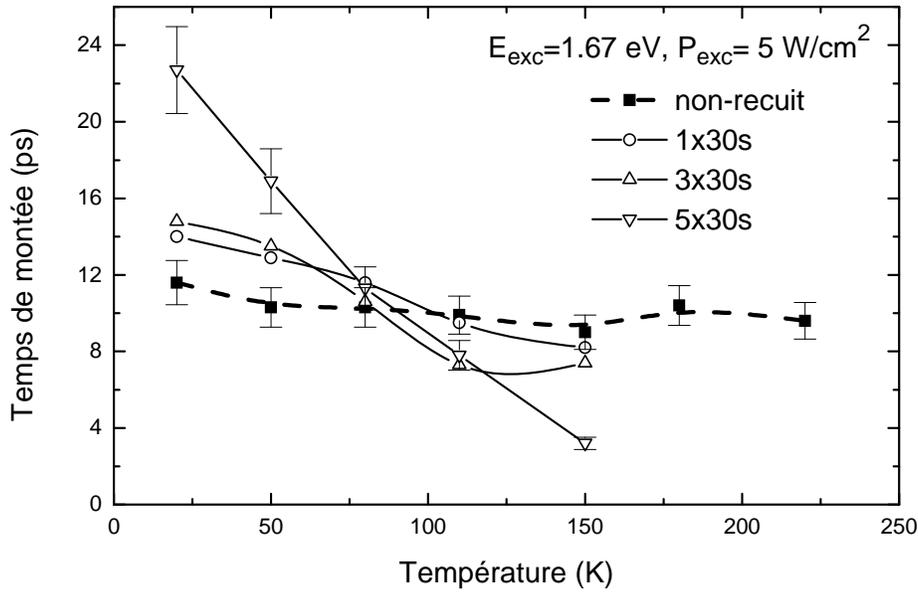


Figure 2.41: Temps de montée du signal de PL en fonction de la température, pour des échantillons de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs recuites ou non à 830°C.

D'après la Figure 2.38, il semble y avoir une énergie-seuil à partir de laquelle la relaxation est inhibée (ou devient moins efficace). Cette énergie peut-elle être corrélée à une énergie de phonon particulier, ou même une combinaison de phonons?

Pour tenter de déterminer quel(s) type(s) de phonons pourrait(ent) jouer un rôle important à haute température, évaluons d'abord l'énergie moyenne entre deux niveaux de la même bande. Pour l'échantillon le plus fortement recuit, la différence d'énergie entre les transitions correspondant à deux niveaux successifs ( $n=1$  et  $n=2$ , autrement dit  $s$  et  $p$ ) est de 10.5 meV. Les discontinuités de bande ne sont pas bien connues dans ce système. Si on prend les valeurs généralement considérées dans la littérature, c'est-à-dire pour la bande de conduction, une discontinuité de bande de  $0.6 < \Delta E_C / \Delta E_g < 0.7$ , ceci correspond donc à une énergie de confinement comprise entre 6.3 meV et 7.4 meV. De même, pour la bande de valence, une discontinuité de bande de  $0.3 < \Delta E_V / \Delta E_g < 0.4$  correspond à une énergie de confinement comprise entre 3.1 meV et 4.2 meV.

Quelques valeurs expérimentales des énergies de phonons ont été rapportées pour le système d'In(Ga)As/GaAs<sup>4, 94, 114</sup>: 36.6 meV pour le phonon LO dans le GaAs volumique, 29.6 pour le phonon LO confiné dans la couche de mouillage d'InAs, 32 meV pour le phonon LO

confiné dans des BQs pyramidales d'InAs, 7 meV pour le phonon d'interface InGaAs/GaAs, 3 meV (énergie limite) pour le phonon LA dans des boîtes d'InGaAs. Mais l'effet du confinement et les énergies des différents types de phonons d'interface sont encore mal connus dans les boîtes quantiques auto-assemblées.

On considère, dans un processus de relaxation multiphononique, la probabilité qu'a un électron d'émettre un phonon LO d'énergie  $E^{LO}$  et un phonon LA d'énergie  $E^{LA}$ <sup>105</sup>. La dépendance en température du taux d'émission à deux phonons est déterminé par:

$$W(T) \propto [n_B(E^{LO})+1].[n_B(E^{LA})+1] \quad (2.1)$$

où la fonction de distribution de Bose est donnée par  $n_B = [\exp(E/kT)-1]^{-1}$ .

Le taux de transition global peut être calculé pour un nombre  $p$  de phonons LA:

$$W = \Gamma^{LO} [n_B(E^{LO})+1]. \Gamma^{LA} [n_B(E^{LA})+1]^p \quad (2.2)$$

où  $\Gamma^{LO}$  et  $\Gamma^{LA}$  représentent les taux de transition par diffusion de phonons LO et LA, respectivement, à T=0 K.

À noter que l'élément de matrice d'interaction multiphononique diminue rapidement avec le nombre de phonons impliqués. Le temps de vie des porteurs s'écrit alors:

$$\tau = (\Gamma^{LO})^{-1} e^{-E^{LO}/kT} (e^{E^{LO}/kT} - 1) (\Gamma^{LA})^{-1} e^{-pE^{LA}/kT} (e^{E^{LA}/kT} - 1)^p \quad (2.3)$$

On peut comparer le temps de vie des porteurs ainsi calculé, pour différentes valeurs moyennes d'énergie de phonons susceptibles d'intervenir (par absorption ou émission), avec les données expérimentales obtenues pour l'échantillon le plus recuit (Figure 2.42). On peut envisager un processus de capture direct (plus grandes énergies de phonons) ou séquentiel (plus faibles énergies de phonons). Les courbes calculées se ressemblent, bien que les paramètres soient très différents. Clairement, plusieurs combinaisons de phonons sont envisageables<sup>143</sup>.

Si les processus multiphononiques limitent la capture/relaxation interniveaux à haute température (Figure 2.40 et Figure 2.41), il est possible que lorsque la séparation interniveaux est réduite, le nombre de phonons impliqués diminue, ce qui rendrait les mécanismes de capture/relaxation plus efficaces. Ceci reste toutefois à confirmer.

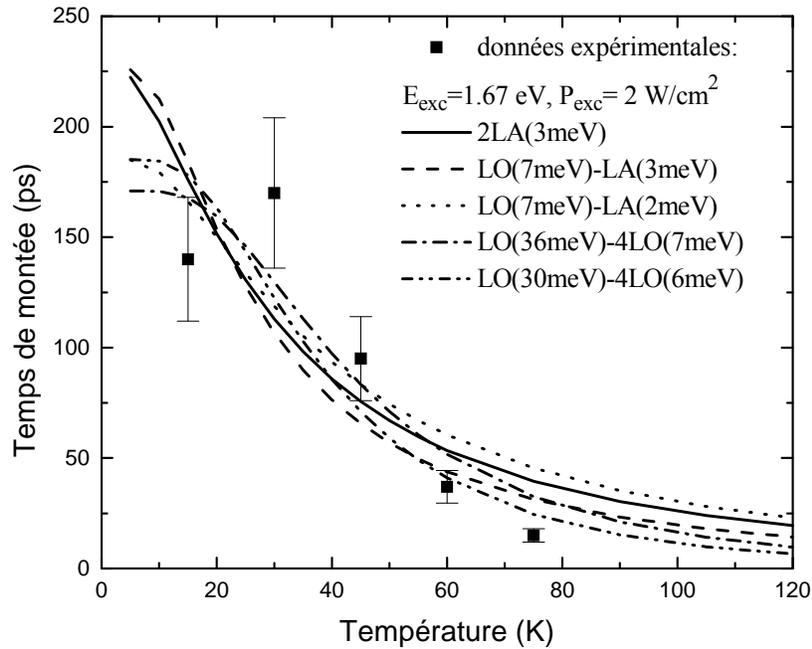


Figure 2.42: Modélisation des processus multiphononiques. Les données expérimentales correspondent au temps de montée de la PL du niveau fondamental en fonction de la température, pour l'échantillon recuit 30s à 880°C, SiO<sub>2</sub>,  $E_{CM}-E_{n=1}=25$  meV.

Maintenant, si on observe la dépendance du temps de montée en fonction de la puissance d'excitation à basse température (Figure 2.43), il est intéressant de noter que le temps de capture/relaxation diminue dans tous les échantillons, qu'ils soient recuits ou non. Ce ralentissement, observé lorsque la séparation interniveaux est réduite, est toujours présent à forte puissance d'excitation.

Deux types de mécanismes Auger peuvent expliquer l'efficacité de la capture/relaxation dans le niveau fondamental quand on augmente la densité d'excitation (Figure 2.43). Celui qui fait intervenir deux porteurs de la couche de mouillage dont l'un est capturé dans les boîtes après la collision, favorise la capture des porteurs. Tandis que le second, qui fait intervenir deux porteurs confinés dans un même niveau 0D dont l'un va relaxer vers un niveau de plus basse énergie, favorise la relaxation interniveaux. Les interactions entre porteurs 0D et 2D pourraient aussi jouer un rôle important lors de la capture et de la relaxation interniveaux.

Les mécanismes Auger de capture/relaxation semblent aussi efficaces dans les échantillons recuits que non recuits (pentes des courbes assez semblables), mais ils ne dominent pas les processus de capture/relaxation à basse température.

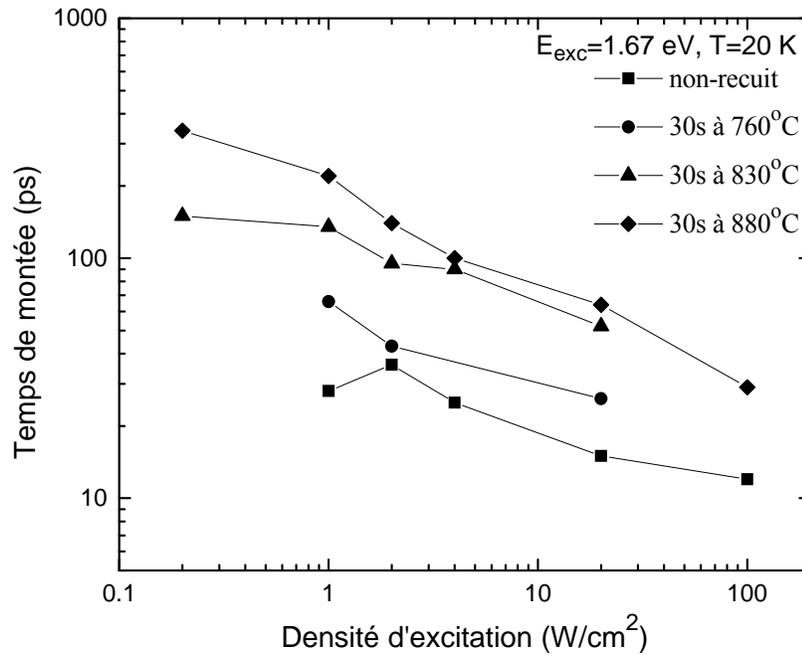


Figure 2.43: Temps de montée de la PL pour le niveau fondamental d'échantillons multicouches recuits ou non en fonction de la densité d'excitation.

À basse température, un fort ralentissement de la relaxation est donc observé, lorsque l'énergie interniveaux est très réduite. À forte excitation, ce ralentissement (probablement lié à la localisation des porteurs dans les barrières) est toujours présent, mais il est moins important. Donc, les mécanismes Auger (de capture, en particulier) semblent jouer un rôle significatif, mais les processus de capture/relaxation restent limités par la localisation des porteurs (ou éventuellement d'autres processus). Comme cela a été décrit précédemment, des processus multiphoniques pourraient aussi contribuer à l'efficacité de la relaxation des porteurs dans ce système.

### 2.4.5 Recombinaison radiative

À basse température et sous faible excitation, le temps de recombinaison des porteurs à l'état fondamental (niveau  $s$ ) est d'environ 0.8 ns dans les boîtes quantiques. Ce temps de vie diminue légèrement pour les échantillons recuits: par un facteur 2 au maximum, pour l'échantillon le plus recuit (Figure 2.44).

Cette observation est contraire au résultat attendu. En effet, la diminution du confinement des porteurs dans les boîtes (aplanissement de la barrière après interdiffusion) devrait se traduire par une diminution du recouvrement des fonctions d'onde électrons-trous (délocalisation accrue des électrons). Ceci aurait alors pour effet l'augmentation du temps de vie radiatif.

Il est possible que l'interdiffusion favorise la localisation des porteurs (avec un temps de vie radiatif plus court), ou favorise la recombinaison d'excitons chargés (avec des temps de vie aussi plus courts), ou encore modifie les champs de contraintes du système. On ne comprend pas exactement l'origine de ce phénomène. Les processus de recombinaison non-radiatifs ne devraient pas être importants, puisque l'intensité des pics de PL est semblable, que les échantillons soient recuits ou non, et est constante à basse température (Figure 2.22).

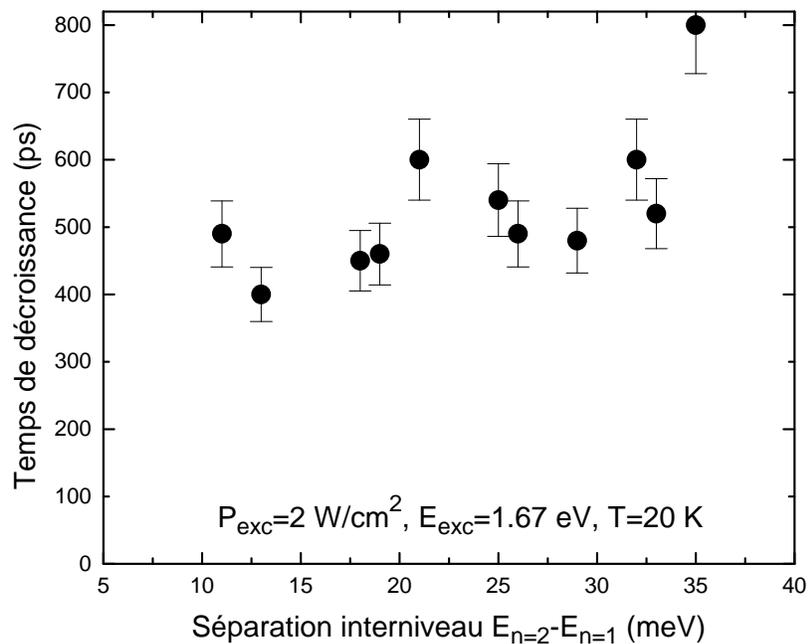


Figure 2.44: Temps de décroissance du niveau fondamental ( $n=1$  ou  $s$ ) pour des échantillons multicouches recuits ou non, en fonction de la séparation interniveaux.

Le temps de décroissance du signal à l'énergie de la transition du niveau fondamental ( $n = 1$  ou  $s$ ) dépend aussi de la densité d'excitation (Figure 2.45). Il augmente avec le nombre de porteurs, à cause du remplissage des boîtes.

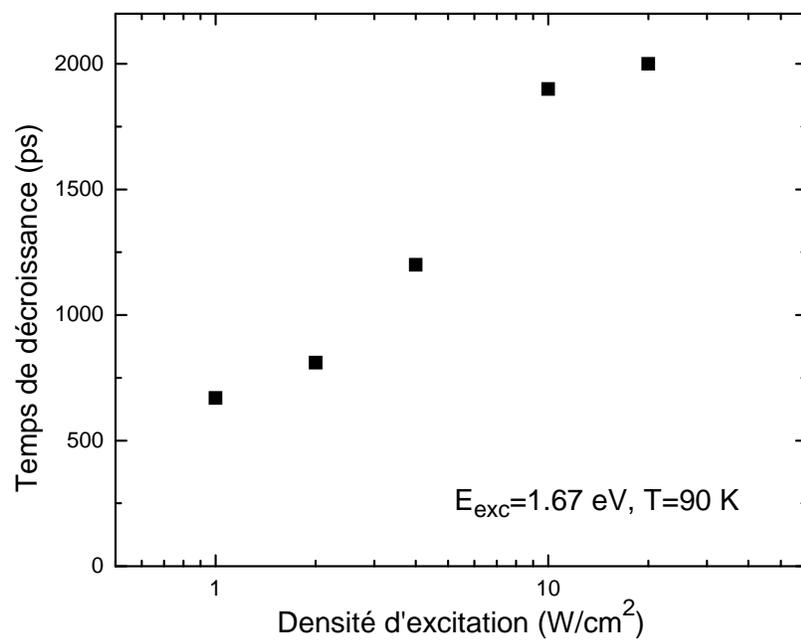
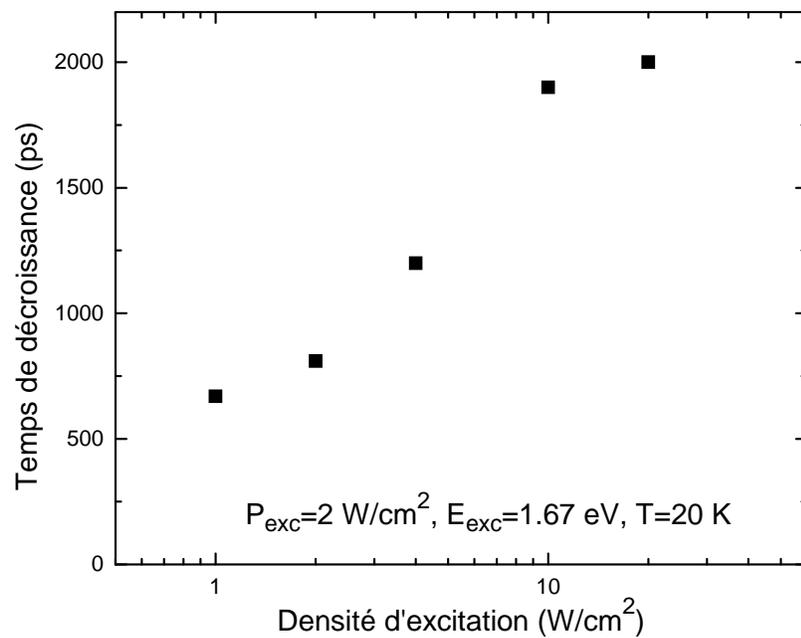


Figure 2.45: Temps de décroissance du niveau fondamental de l'échantillon multicouches non-recuit en fonction de la densité d'excitation.

De plus, il est important de noter que le temps de décroissance du signal de PL dépend fortement de la température de l'échantillon. Selon le degré de recuit de l'échantillon (ou la séparation interniveaux), le comportement en température est très différent (Figure 2.46).

À basse densité d'excitation, on observe clairement une augmentation du temps de décroissance, probablement due à la délocalisation progressive des porteurs, quand la température augmente ( $20 \text{ K} < T < 90 \text{ K}$ ). La dissociation des excitons et la fuite des électrons dans la couche de mouillage (les trous resteraient confinés dans les boîtes à cause de leur masse plus importante) suivie de leur re-capture dans d'autres boîtes peuvent aussi expliquer l'augmentation du temps de décroissance alors que l'intensité du signal de PL reste constante (les porteurs ne se recombinent donc pas dans les barrières)<sup>90</sup>.

À plus haute température, on observe une importante diminution du temps de décroissance. Cet effet peut être expliqué par l'augmentation de l'efficacité de la ré-émission thermique: les électrons et les trous s'échappent facilement et ils se recombinent hors des boîtes<sup>133</sup>.

Le maximum du temps de décroissance se produit à environ 130 K pour l'échantillon non-recuit. Il apparaît à des températures de plus en plus basse à mesure que l'échantillon est davantage recuit. Cet effet s'explique par le confinement de plus en plus faible des porteurs dans les boîtes (potentiel moins profond), lorsque celles-ci subissent un recuit plus important. En considérant que la température-seuil est caractéristique de l'énergie de confinement typique des porteurs, on obtient des valeurs d'environ 13 meV pour l'échantillon non recuit et 4 meV pour l'échantillon le plus recuit. Ces valeurs semblent très faibles. Le calcul sous-estime sûrement les véritables valeurs d'énergie de confinement.

À plus forte excitation, on peut observer que le temps de décroissance tend vers une valeur constante, lorsqu'on augmente la température (Figure 2.46b). Cette valeur est de 200 ps pour l'échantillon non-recuit et diminue jusqu'à environ 70 ps pour l'échantillon le plus recuit.

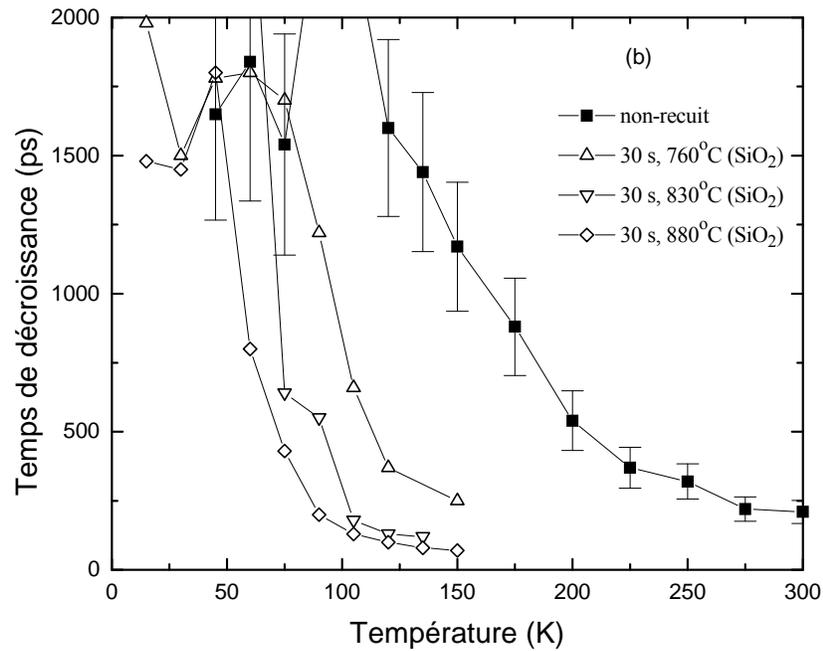
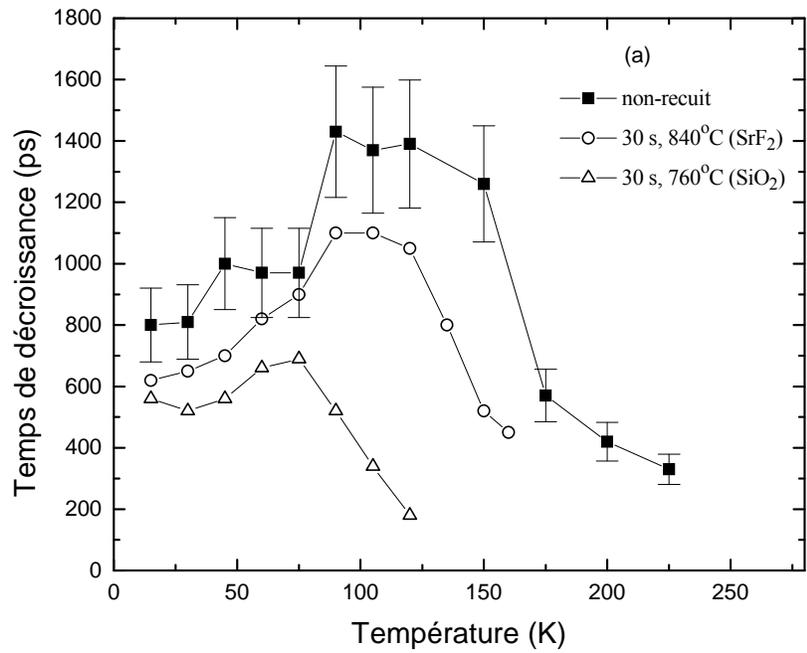


Figure 2.46: Temps de décroissance du niveau fondamental (niveau  $s$ ) en fonction de la température pour différents échantillons multicouches recuits ou non, à une densité d'excitation de  $2 \text{ W/cm}^2$  (a), et de  $20 \text{ W/cm}^2$  (b),  $E_{\text{exc}}=1.67 \text{ eV}$ .

En étudiant le comportement en température du temps de décroissance du signal de PL en fonction de la température pour un autre système de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs, on observe la même allure des courbes que précédemment (Figure 2.47).

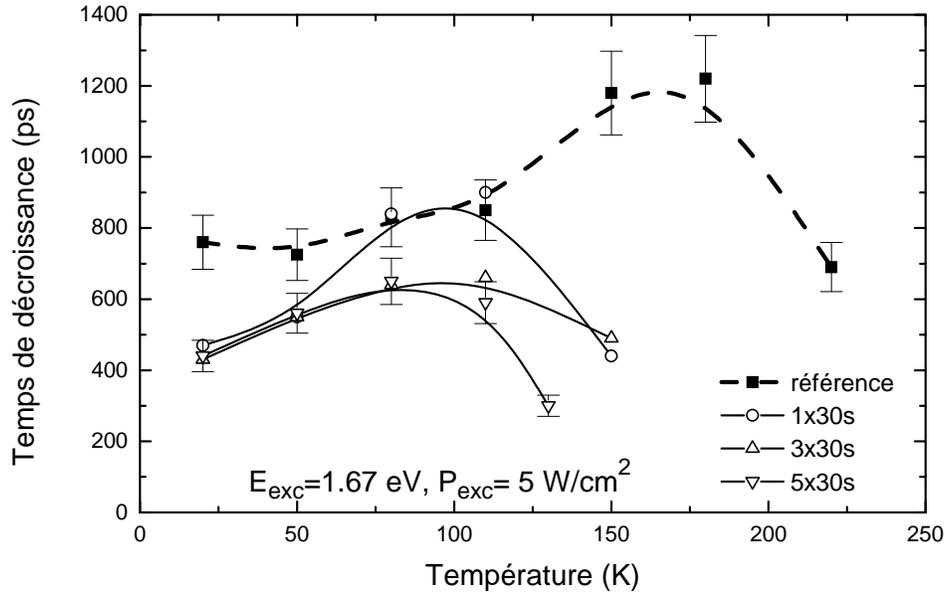


Figure 2.47: Temps de décroissance de la PL en fonction de la température pour un échantillon de boîtes quantiques d'InGaAs/GaAs (100) non recuit et recuit à 830 °C pour différentes durées (30s, 1mn 30s, 2mn 30s).

La ré-émission thermique semble donc jouer un rôle semblable. De plus, les températures-seuil sont aussi du même ordre de grandeur.

Le temps de décroissance du signal de PL dépend donc fortement de la température de l'échantillon. C'est le facteur qui limite principalement l'utilisation des boîtes quantiques pour des applications technologiques à température ambiante.

## 2.5 Conclusions

Cette étude a permis de clarifier le rôle joué par les différents processus de relaxation de l'énergie des porteurs dans les boîtes quantiques. En particulier, on a pu mettre en évidence les résultats suivants:

- On observe une dépendance presque linéaire de la largeur des pics de PL en fonction de l'énergie de la transition, probablement due aux variations du potentiel de confinement. Nos calculs indiquent que la variation de la largeur inhomogène des pics de photoluminescence est principalement causée par des variations de la hauteur des boîtes, que les échantillons soient plus ou moins interdiffusés.
- Les différences entre les temps de montée des signaux de PL des états excités et de l'état fondamental des BQs, ainsi que la rapidité du remplissage de tous les niveaux simultanément suggèrent une capture simultanée des porteurs des barrières par tous les niveaux confinés des boîtes.
- À forte densité d'excitation, les processus de capture/relaxation Auger semblent jouer un rôle important, pour tous les échantillons recuits ou non. Un ralentissement de la capture/relaxation a été mis en évidence à basse température, lorsque la séparation interniveaux est fortement réduite, même sous forte excitation. Cet effet est probablement dû à la localisation des porteurs/excitons dans les barrières qui limite la capture vers les niveaux 0D. Ce ralentissement pourrait être dû à l'existence d'une barrière de potentiel d'autant plus haute que l'interdiffusion est importante. Cet effet disparaît lorsque la température est suffisamment élevée ( $T > 60$  K environ).
- La capture/relaxation des porteurs devient extrêmement efficace à haute température pour les échantillons dont l'énergie interniveaux est faible, peut-être à cause des processus multiphononiques. On n'a cependant pas pu déterminer précisément l'énergie des phonons (LO et/ou LA) mis en jeu.
- La ré-émission thermique, qui permet aux porteurs confinés dans les boîtes de s'échapper dans les barrières, devient très importante à partir d'une certaine température d'autant plus basse que la séparation interniveaux est faible.

- Le temps de recombinaison des porteurs dans les boîtes est plus court lorsque l'énergie interniveaux est réduite, et sa dépendance en température est modifiée. La présence de canaux de recombinaison non-radiatifs est possible, mais nos résultats obtenus en excitation continue n'appuie pas cette hypothèse. Nous suggérons que la réduction du temps de recombinaison soit liée à un changement du temps de vie radiatif dans les BQs dont le profil de potentiel a été modifié.
- L'approche abordée ici pour étudier les mécanismes de relaxation pourrait être remise en cause si les effets à multiparticules observés pour des boîtes quantiques uniques gouvernent effectivement tous les mécanismes de relaxation de l'énergie pour un grand ensemble de boîtes. Mais, à notre connaissance, cela n'a pas encore été mis en évidence. Si, comme le suggèrent Dekel *et al.*, les transitions observées à haute énergie correspondent à des transitions permises de l'état fondamental à  $N_{exc}+1$  vers un des états excités multiparticules à  $N_{exc}$ , on devrait alors parler de recombinaison excitonique plutôt que de relaxation interniveaux<sup>100</sup>. Cependant le nombre de transitions permises demeure relativement faible. Il est important aussi de noter un désaccord entre nos résultats et ceux de Dekel *et al.* concernant la dépendance des temps de montée en fonction de la densité d'excitation. L'étude de ces effets présente donc aujourd'hui un intérêt capital.

# Chapitre 3

## Modélisation de la relaxation

### *3.1 Motivations*

Plusieurs théories plus ou moins complexes et basées sur des concepts très différents ont été développées pour décrire la dynamique de relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques. Ces modèles sont basés soit sur une approche microscopique prenant en compte les interactions entre particules, mais pas le caractère aléatoire de la distribution des porteurs, soit sur une approche macroscopique considérant le comportement d'un ensemble de BQs, mais dans un système extrêmement simplifié à cause de la complexité du problème.

À priori, lorsqu'on étudie expérimentalement un grand ensemble de BQs, on peut clairement observer l'inhomogénéité de la distribution des BQs (mise en évidence par la largeur inhomogène des pics de PL). Donc, l'approche macroscopique est la plus réaliste. Cependant, aucun modèle, jusqu'à présent, ne réussit à reproduire de façon satisfaisante les résultats expérimentaux. Les modèles existant apportent seulement une compréhension partielle des mécanismes de relaxation dans les BQs, puisque seule la décroissance du signal de PL a pu être modélisée. À notre connaissance, aucun modèle de relaxation ne permet de reproduire la montée du signal de PL de l'ensemble des transitions dans les BQs, pour différentes conditions d'excitation. Ces données sont pourtant très importantes pour comprendre les mécanismes de capture et de relaxation.

Dans ce chapitre, nous décrivons d'abord les principaux modèles de relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques utilisés jusqu'à maintenant. Puis, nous décrivons un nouveau modèle que nous avons développé dans le but de tenir compte de la répartition inhomogène des porteurs dans un système à plusieurs niveaux, tout en considérant différents mécanismes de relaxation dans les BQs. Les résultats des simulations sont analysés dans le but de déterminer l'influence de la distribution inhomogène des porteurs, et de tenter d'identifier le ou les mécanismes jouant un rôle dominant lors de la relaxation. Les cinétiques calculées à court temps sont donc examinées attentivement. Finalement, plusieurs jeux de cinétiques obtenues expérimentalement sont modélisés afin de vérifier la validité de notre modèle.

### ***3.2 Symboles utilisés***

Les principaux symboles utilisés dans les équations de ce chapitre sont les suivants:

$N_0$	nombre total de porteurs photo-excités, nombre directement lié à la densité d'excitation incidente (porteurs en excès)
$M$	nombre total de boîtes quantiques (BQs)
$n_0$	nombre initial moyen de porteurs excités par BQ ( $n_0=N_0/M$ )
$n$	nombre de porteurs (excités) dans une BQ
$m$	nombre de BQs ayant la même population de porteurs $n$
$i,j$	indices d'un niveau d'énergie: 1 (niveau fondamental), 2, 3 ou 4 (niveaux excités) dans les BQs, 5 dans la couche de mouillage, 6 et 7 dans le GaAs
$n_i$	nombre de porteurs à un niveau d'énergie $i$ de la structure à BQs
$N_i$	nombre total de porteurs à un niveau $i$ , pour l'ensemble des BQs
$N_i^m$	nombre de porteurs à un niveau $i$ pour un nombre $m$ de BQs
$FWHM$	largeur à mi-hauteur de la Gaussienne, exprimée en fonction de $n_0$
$\tau^R$	temps de recombinaison radiatif
$\tau^I$	temps de relaxation interniveaux
$\tau^c$	temps de capture des porteurs à partir de la couche de mouillage vers le niveau de BQ de plus haute énergie

- $g_i$  dégénérescence du niveau  $i$
- $f_i$  taux d'occupation du niveau  $i$  tel que  $f_i = n_i/g_i$  ( $0 \leq f_i \leq 1$ )
- $R_i$  taux de recombinaison radiatif des porteurs du niveau  $i$  tel que  $R_i = 1/\tau_i^R$
- $R_{ii}^A$  taux de recombinaison de type Auger des porteurs du niveau  $i$
- $R^{diffG}$  taux de diffusion des porteurs dans la couche de GaAs
- $R^{diffI}$  taux de diffusion/localisation des porteurs dans la couche de mouillage d'InAs
- $R_{ij,ij}^A$  taux caractéristique des processus Auger entre porteurs des niveaux  $i$  et  $j$  vers les niveaux  $i$  et  $j$ .
- $R_{ij}^{ph}$  taux caractéristique des processus multi-phononiques du niveau  $i$  vers le niveau  $j$

### 3.3 Description des modèles existants

#### 3.3.1 Interactions avec les phonons LA

Cette approche consiste à tenir compte de la relaxation de l'énergie des excitons par leur couplage avec des phonons acoustiques<sup>119</sup>. Lorsque l'énergie de liaison des excitons dans les BQs est inférieure à l'énergie de confinement, le principe d'exclusion de Pauli doit jouer un rôle important lors de la relaxation des porteurs, et il est nécessaire d'en tenir compte. Bockelmann *et al.* considèrent donc un gaz d'excitons obéissant aux statistiques de Fermi-Dirac dans une BQ<sup>119</sup>.

Pour calculer le spectre et les temps de vie radiatifs des excitons dans les boîtes, ils considèrent l'interaction électron-trou comme une simple perturbation. En tenant compte du blocage de Pauli, la variation temporelle de la probabilité d'occupation des états excitoniques dans la BQ est:

$$\frac{df_i}{dt} = \sum_{j \neq i} \tau_{ji}^{-1} f_j (1 - f_i) - f_i S_i \quad (3.1)$$

Le premier terme décrit la diffusion de l'état  $j$  à l'état  $i$ , tandis que le second terme correspond à la perte de particules de l'état  $i$ .

Le taux de diffusion  $\tau_{ij}^{-1}$  entre deux états séparés par une énergie  $\hbar\omega_{ij} = E_i - E_j$ , considérant un nombre de phonons donné par la distribution de Bose-Einstein  $n_P$  à la température du réseau  $T_r$ , est défini par:

$$\tau_{ij}^{-1} = \tau_{ij}^0{}^{-1} \left[ n_P(|\omega_{ij}|, T_r) + \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \text{signe}(\omega_{ij}) \right] \quad (3.2)$$

Si  $\omega_{ij} > 0$ , alors on considère l'émission spontanée d'un phonon et le nombre  $n_P$  est augmenté de 1. Les taux de diffusion  $\tau_{ij}^0$  sont calculés par la théorie de perturbation de premier ordre en considérant l'interaction avec un phonon LA, probablement plus efficace lorsque l'énergie interniveaux est faible<sup>102, 119</sup>

Le taux de perte  $S_i$  comprend la recombinaison non-radiative (dont le taux  $P$  est considéré comme identique pour tous les niveaux), la recombinaison radiative ( $\tau_i^R$ ) et la diffusion de porteurs entre les états  $i$  et  $j$  par phonons LA ( $\tau_{ij}$ ):

$$S_i = P + (\tau_i^R)^{-1} + \sum_{j \neq i} \tau_{ij}^{-1} (1 - f_j) \quad (3.3)$$

Le temps de vie radiatif d'un état est calculé à partir de la fonction enveloppe associée à l'exciton:

$$\tau^R \propto \left| \int dr \Psi_{ex}(r_e, r_h) \right|^{-2} \quad (3.4)$$

Le spectre de luminescence dépendant du temps est obtenu en résolvant l'équation 3.1, car l'intensité  $J_i$  associée à l'état excitonique  $i$  est donnée par:

$$J_i \propto f_i (\tau_i^R)^{-1} \quad (3.5)$$

Bockelmann *et al.* considèrent que la distribution initiale, à  $t = 0$ , est déterminée par la distribution de Fermi des excitons caractérisée par la température  $T_{ex}$ , avec le potentiel chimique  $\mu$ :

$$f_i(0) = \left(1 + e^{(E_i - \mu)/k_B T_{ex}}\right)^{-1} \quad (3.6)$$

Lorsque le confinement latéral est de 6 meV, les calculs qui prennent en compte la diffusion par phonons LA, la recombinaison radiative et non radiative, ainsi que le blocage de Pauli, montrent que l'intensité de chaque niveau commence à décroître juste après l'excitation (Figure 3.1a). Ce dépeuplement similaire des états de plus basses énergies est dû à l'absence de transfert efficace de population entre ces niveaux. Deux raisons peuvent être mentionnées: le ralentissement de la diffusion par phonons LA vers les états de plus basse énergie, et le ralentissement de la relaxation par l'intervention d'états non-radiatifs d'énergie intermédiaire. Les courbes calculées pour ce confinement latéral ressemblent aux résultats expérimentaux obtenus pour une boîte quantique fabriquée par interdiffusion thermique induite par laser<sup>119</sup>. En effet, les auteurs n'observent pas de transfert de porteurs des niveaux à haute énergie vers les niveaux à basse énergie, en fonction du temps.

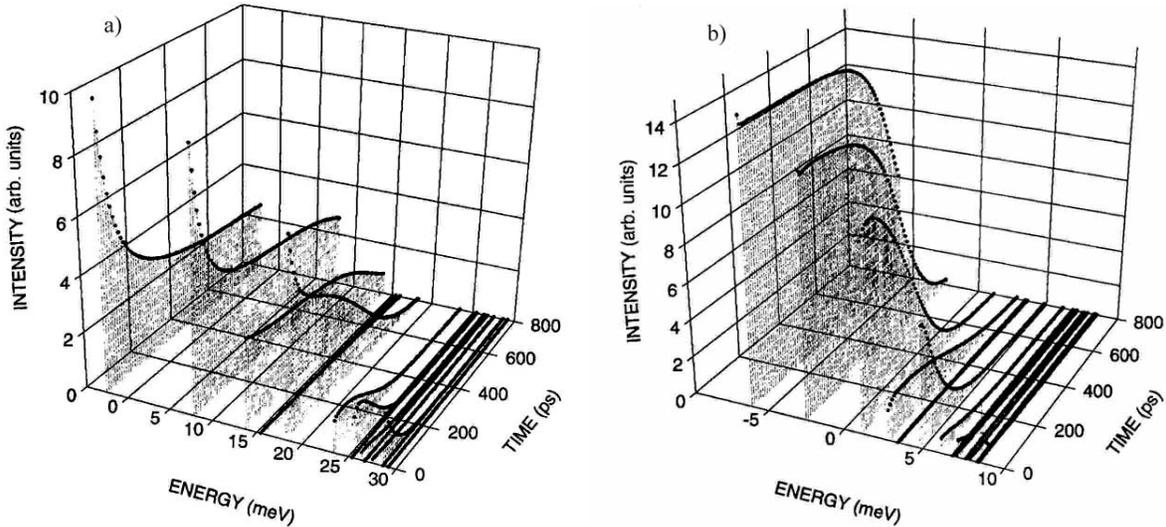


Figure 3.1: Évolution temporelle de la luminescence des différents états d'une BQ de confinement latéral  $\hbar\omega_e = 6$  meV (a) et  $\hbar\omega_e = 2$  meV (b). On considère initialement 50 excitons et  $k_B T = 4$  meV. La température du réseau est 10 K. On considère la diffusion par phonons LA, la recombinaison radiative et non radiative ( $2 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ ) et le blocage de Pauli<sup>119</sup>

En revanche, lorsque le confinement latéral est plus faible (espacement interniveaux faible), des plateaux apparaissent pour les états de plus basse énergie (Figure 3.1b). Il s'agit d'une conséquence directe de l'efficacité de la relaxation interniveaux, ainsi que du remplissage d'états limité par le blocage de Pauli (particulièrement visible pour les états de plus basse énergie).

Le bon accord qualitatif entre ce modèle et les résultats expérimentaux obtenus avec des boîtes quantiques à faible confinement latéral suggère qu'il est essentiel de tenir compte du principe d'exclusion de Pauli pour décrire la relaxation des porteurs dans ces systèmes.

### 3.3.2 Équations d'évolution classiques

Les modèles d'équations d'évolution conventionnels reposent sur l'hypothèse de champ moyen, c'est-à-dire que les populations d'électrons et de trous des différents niveaux d'énergie sont considérées par des valeurs moyennes représentant l'ensemble des BQs.

Pour mieux modéliser les données expérimentales, il est nécessaire de tenir compte du blocage de Pauli qui intervient lors du remplissage des niveaux. Cet effet permet de reproduire les plateaux des cinétiques des signaux de PL plus longs pour les états de plus basse énergie, ainsi que la saturation des intensités observée expérimentalement à forte densité d'excitation.

L'évolution temporelle des populations de porteurs des différents niveaux du système peut être modélisée de manière simple en tenant compte de la relaxation de l'énergie en cascade, du niveau de plus haute énergie vers le niveau d'énergie inférieur<sup>92</sup>.

Le système d'équations décrivant l'évolution de la population de chaque niveau  $i$ , rempli par le niveau  $i+1$  et se vidant dans le niveau  $i-1$ , est:

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\frac{N_i(t)}{\tau^r} + \frac{N_{i+1}(t)}{\tau_{i+1}^l} \frac{[g_i - N_i(t)]}{g_i} - \frac{N_i(t)}{\tau_i^l} \frac{[g_{i-1} - N_{i-1}(t)]}{g_{i-1}} \quad (3.7)$$

Il est aussi possible de tenir compte de la relaxation des porteurs vers tous les niveaux d'énergie inférieure<sup>91, 144</sup>. Dans ce cas,

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\frac{N_i(t)}{\tau^r} + \sum_{j \neq i} \frac{N_j(t)}{\tau_{ji}^l} \frac{[g_i - N_i(t)]}{g_i} - \sum_{k \neq i} \frac{N_i(t)}{\tau_{ik}^l} \frac{[g_k - N_k(t)]}{g_k} \quad (3.8)$$

où  $k < i < j$

Dans le cas où la dynamique est limitée par les porteurs minoritaires, on peut considérer que l'intensité de PL d'une transition est proportionnelle au nombre moyen de ces porteurs occupant le niveau excité correspondant à cette transition. Le modèle le plus largement utilisé, consiste à considérer seulement trois niveaux d'énergie. Dans ce cas très simple, le système d'équations peut être résolu analytiquement, et ainsi servir à déterminer les temps caractéristiques de montée et de décroissance des données expérimentales. Si la capture d'un niveau de barrière  $|2\rangle$  vers l'état excité  $|1\rangle$  est caractérisée par un temps  $\tau_2$ , et la relaxation interniveaux de l'état excité  $|1\rangle$  vers l'état fondamental  $|0\rangle$  par un temps  $\tau_1$ , alors la variation temporelle du signal du niveau  $|1\rangle$  peut être décrite par<sup>94</sup>:

$$I_{exc}(t) \propto (e^{-t/\tau_1} - e^{-t/\tau_2})/(\tau_1 - \tau_2) \quad (3.9)$$

où  $\tau_2 < \tau_1$ .

Ainsi,  $\tau_2$  décrit la montée et  $\tau_1$  la décroissance du signal. L'interprétation des résultats peut être délicate, car d'une part, les deux paramètres sont interchangeable et d'autre part, l'incertitude est importante quand ces paramètres sont du même ordre de grandeur. Ce modèle ne tient pas compte de la dégénérescence ni des effets de saturation des différents niveaux.

Certains modèles plus évolués prennent en compte les mécanismes de relaxation via les interactions porteurs-porteurs, aussi appelés processus Auger. Selon Grosse *et al.*<sup>92</sup>, ces mécanismes seraient responsables de la relaxation rapide des porteurs vers les états de plus basse énergie. Le taux de relaxation entre deux niveaux doit alors correspondre à la somme des taux de diffusion par phonons  $(\tau^{ph})^{-1}$  et par processus Auger  $(\tau^A)^{-1}$ . Le coefficient Auger est généralement considéré comme proportionnel à la densité de porteurs 2D. Ainsi, le taux de relaxation d'un niveau  $i$  vers un niveau  $j$  s'écrit:

$$\Gamma_{ij} = (\tau_{ij}^l)^{-1} = (\tau_{ij}^{ph})^{-1} + (\tau_{ij}^A)^{-1} \quad (3.10)$$

où  $(\tau_{ij}^A)^{-1} = C.N_{2D}(t)$ ,  $C$  décrit la force de l'interaction de Coulomb (coefficient Auger) et  $N_{2D}$  la densité de porteur dans la couche de mouillage<sup>92</sup>.

Les résultats des calculs sont comparés avec des mesures de photoluminescence obtenues en sondant des boîtes d'InGaAs/GaAs fabriquées par contraintes<sup>92</sup>. Le relativement bon accord qualitatif avec les données montre qu'il est possible de simuler correctement la décroissance des signaux de PL par des équations d'évolution tenant compte du blocage de Pauli et des interactions de Coulomb avec la couche de mouillage (Figure 3.2).

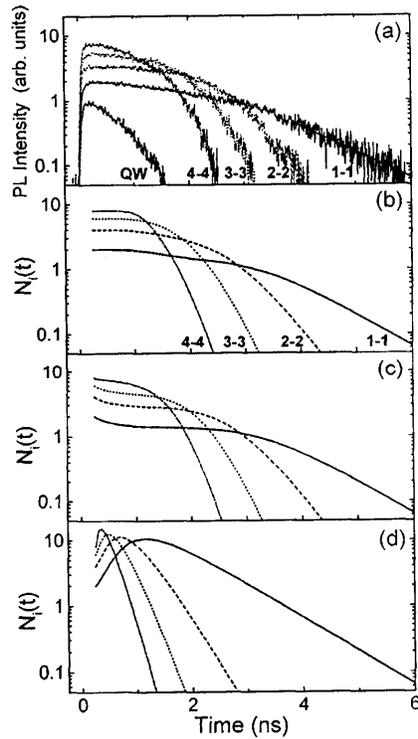


Figure 3.2: (a) Spectres de photoluminescence résolue en temps pour les quatre niveaux de plus faible énergie des BQs et pour le puits quantique à forte excitation. (b) Calcul du nombre moyen de porteurs des quatre premiers niveaux des BQs avec  $\tau^{ph} = 570$  ps et  $\tau^A = 1$  ps. (c) Calculs avec les mêmes paramètres mais en négligeant la diffusion de Coulomb. (d) Mêmes calculs que précédemment mais en négligeant les effets de remplissage<sup>92</sup>.

Les modèles basés sur les équations d'évolution présentent le grand avantage d'être très simples, permettant ainsi une résolution analytique ou numérique rapide, même si l'on considère un certain nombre de niveaux dans le système. Cependant, l'hypothèse de distribution homogène des porteurs dans les BQs considérée dans ces modèles est peu vraisemblable pour modéliser un grand ensemble de BQs.

### 3.3.3 Modèle des micro-états

Une approche très différente a été proposée pour tenir compte de la répartition inhomogène des porteurs et expliquer le remplissage des niveaux excités observé expérimentalement, à basse densité d'excitation. Ce modèle est basé sur le concept de distribution aléatoire de population: ainsi, la capture et la recombinaison des porteurs sont considérés comme des processus aléatoires, tandis que la relaxation interniveaux est extrêmement rapide<sup>91</sup>. Contrairement au modèle des équations d'évolution qui prédit une occupation négligeable des états excités, à basse température, quand la relaxation interniveaux est très rapide (les porteurs se trouvent alors dans les états de plus basse énergie), cette théorie, en revanche, permet d'expliquer l'apparition d'un niveau excité avant que l'intensité du niveau fondamental ne soit saturée, et cela même quand la relaxation de l'énergie dans les BQs est extrêmement rapide.

Ce modèle est basé sur les hypothèses suivantes: on considère un large ensemble de BQs, chaque boîte possède un certain nombre de niveaux  $S$  considérés comme distincts, même si certains sont dégénérés en énergie. Ce nombre est identique pour les électrons et les trous. Le temps de vie radiatif est le même pour toutes les transitions et il n'y a pas de canaux non-radiatifs. Le temps de capture dépend du remplissage (au lieu de tenir compte de la dégénérescence des niveaux). La relaxation interniveaux est infiniment rapide, donc tous les porteurs se trouvent dans les états de plus basse énergie. En régime de basse température, les porteurs ne sont pas ré-émis vers les niveaux de plus haute énergie par l'effet de la température. De plus, les processus Auger ne sont pas considérés dans ce modèle.

L'ensemble des porteurs dans les BQs est décrit par des micro-états. En fait, chaque micro-état représente une configuration d'occupation particulière des boîtes. Le nombre de BQs ayant  $S$  niveaux et remplies avec  $n$  paires électron-trou est  $m_n^S$  où  $0 < n < S$ . L'équation d'évolution régissant ce terme est:

$$\frac{dm_n^S}{dt} = \frac{(n+1).m_{n+1}^S}{\tau^R} - \frac{n.m_n^S}{\tau^R} + \frac{N_R.m_{n-1}^S}{M.\tau^c} \left(1 - \frac{n-1}{S}\right) - \frac{N_R.m_n^S}{M.\tau^c} \left(1 - \frac{n}{S}\right) \quad (3.11)$$

où  $N_R$  est le nombre de porteurs dans le réservoir et  $M$  est le nombre total de boîtes.

Les deux premiers termes correspondent à la recombinaison dans les boîtes contenant respectivement  $n+1$  et  $n$  paires électrons-trous, tandis que les deux derniers termes correspondent à la capture d'une paire électron-trou par des boîtes contenant déjà  $n-1$  et  $n$  paires.

Les systèmes de BQs comprenant un certain nombre de niveaux sont difficiles à décrire par cette théorie des micro-états à cause du très grand nombre de micro-états distincts qui interviennent (10395 pour un système à cinq niveaux<sup>145</sup>). Pour mieux comprendre ce modèle, on peut considérer seulement deux niveaux dans les boîtes, il existe alors quatre états distincts: (00) si les deux niveaux sont vides, (01) et (10), si seulement l'un des niveaux est plein, et (11) si les deux niveaux sont remplis (Figure 3.3).

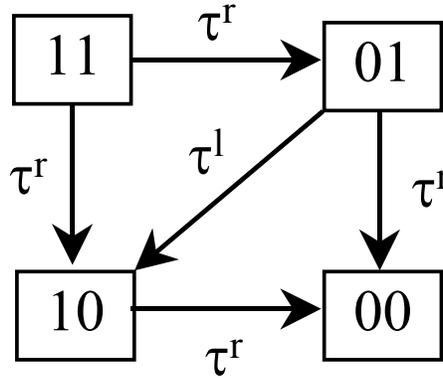


Figure 3.3: Schéma représentant les processus de relaxation (temps caractéristique  $\tau^l$ ) et de recombinaison (temps caractéristique  $\tau^r$ ) possibles entre les différents états d'un système à deux niveaux qui sont soit remplis (1), soit non-remplis (0). Ces processus sont pris en compte dans le modèle des micro-états<sup>145</sup>.

Les probabilités de trouver une BQ dans un micro-état donné sont:  $\omega_{00}$ ,  $\omega_{01}$ ,  $\omega_{10}$  et  $\omega_{11}$  telles que  $\omega_{00} + \omega_{01} + \omega_{10} + \omega_{11} = 1$ . Les équations décrivant les transitions possibles entre les micro-états sont les suivantes:

$$\frac{d\omega_{00}}{dt} = \frac{\omega_{10}}{\tau^r} + \frac{\omega_{01}}{\tau^r} \quad (3.12a)$$

$$\frac{d\omega_{10}}{dt} = -\frac{\omega_{10}}{\tau^r} + \frac{\omega_{11}}{\tau^r} + \frac{\omega_{01}}{\tau^l} \quad (3.12b)$$

$$\frac{d\omega_{01}}{dt} = -\frac{\omega_{01}}{\tau^r} + \frac{\omega_{11}}{\tau^r} - \frac{\omega_{01}}{\tau^l} \quad (3.12c)$$

$$\frac{d\omega_{11}}{dt} = -2 \cdot \frac{\omega_{11}}{\tau^r} \quad (3.12d)$$

Si on considère les probabilités d'occupation  $f_1$  et  $f_2$  pour les deux niveaux du système, alors

$$f_1 = \omega_{10} + \omega_{11} \quad (3.13a)$$

$$\text{et } f_2 = \omega_{01} + \omega_{11} \quad (3.13b)$$

si bien que:

$$\frac{df_1}{dt} = -\frac{f_1}{\tau^r} + \frac{\omega_{01}}{\tau^l} \quad (3.14a)$$

$$\frac{df_2}{dt} = -\frac{f_2}{\tau^r} - \frac{\omega_{01}}{\tau^l} \quad (3.14b)$$

Le taux de relaxation interniveaux entre micro-états dépend du nombre initial et final d'états disponibles, et par conséquent augmente pour les états de plus haute énergie.

Ce modèle est intéressant parce qu'il considère une distribution aléatoire des porteurs, ce qui est probablement proche de la réalité. Cependant, il reproduit mal les données expérimentales à long temps<sup>89</sup>. En particulier, ce modèle va à l'encontre des résultats obtenus avec des boîtes quantiques uniques au niveau du nombre de raies et de leur position en énergie.

### ***3.3.4 Distribution aléatoire indépendante des porteurs***

Pour l'élaboration de ce modèle dit "d'occupation initiale aléatoire", les auteurs ont cherché à décrire une distribution aléatoire des porteurs, comme dans la théorie précédente, mais sans normaliser les probabilités d'occupation, si bien que la distribution des porteurs ainsi que les processus de relaxation sont des événements considérés indépendants<sup>89</sup>.

Ce modèle est basé sur deux hypothèses principales régissant la capture des porteurs. D'abord, les auteurs considèrent que tous les porteurs sont capturés dans les niveaux discrets des BQs. Ensuite, ils considèrent que la capture se produit de façon aléatoire, le nombre de porteurs et leur distribution dans les niveaux discrets peuvent différer d'une BQ à l'autre. Comme précédemment, seulement deux niveaux, l'état fondamental et l'état excité, sont considérés pour simplifier le modèle. Toutes les configurations de distribution initiale des porteurs sont représentées sur la Figure 3.4 (A, B, C et D), ainsi que toutes les combinaisons possibles de relaxation et/ou de recombinaison des porteurs ( $A_1$  à  $C_1$ ).

Cette approche est différente de la précédente, car elle tient compte non seulement des l'évolution du remplissage quand la configuration initiale correspond aux deux états remplis (modèle précédent ou canaux A1, A2 et A3), mais aussi des configurations initiales correspondant à un seul état rempli (canaux B1, B2 et C1). La formulation du problème est donc différente.

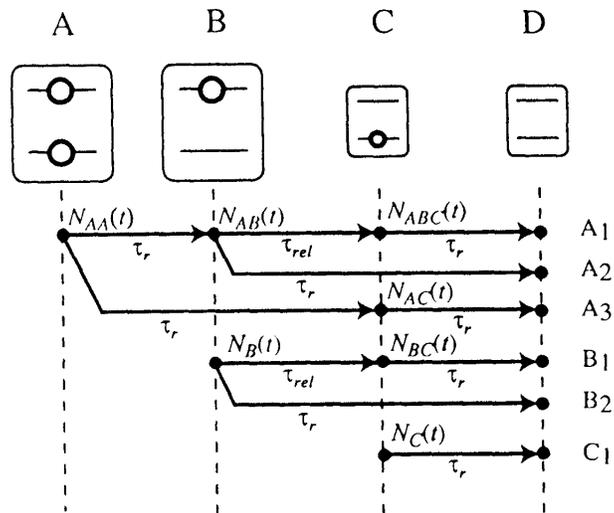


Figure 3.4: Schéma des canaux de relaxation et de recombinaison possibles en considérant deux états. On distingue quatre cas selon la distribution initiale de porteurs (A, B, C et D). Toutes les combinaisons de relaxation et/ou recombinaison sont indiquées de  $A_1$  à  $C_1$ .  $\tau_r$  et  $\tau_{rel}$  sont respectivement les temps de recombinaison et de relaxation des porteurs<sup>89</sup>.

Pour calculer le nombre total de porteurs  $N_{exc}$  dans l'état excité, il faut tenir compte de deux cas: si la configuration initiale est A ou B (l'état excité est rempli et l'état fondamental est vide ou plein), ce qui va donner lieu à la relaxation des porteurs par les canaux A ou B, respectivement:

$$N_{exc}(t) = N_A(t) + N_B(t) \quad (3.15)$$

De plus, avec le temps, la configuration initiale A peut devenir B dans un certain nombre de boîtes, si le niveau fondamental se dépeuple mais pas le niveau excité:

$$N_A(t) = N_{AA}(t) + N_{AB}(t) \quad (3.16)$$

En observant les canaux de relaxation et recombinaison possibles (Figure 3.4), il est possible de déterminer les équations d'évolution du nombre de porteurs suivantes:

$$\frac{dN_{AA}(t)}{dt} = -\frac{2N_{AA}(t)}{\tau^r} \quad (\text{canaux A1 et A3}) \quad (3.17)$$

$$\frac{dN_{AB}(t)}{dt} = \frac{N_{AA}(t)}{\tau^r} - \frac{N_{AB}(t)}{\tau^l} - \frac{N_{AB}(t)}{\tau^r} \quad (\text{canaux A1, A2 et A3}) \quad (3.18)$$

$$\frac{dN_B(t)}{dt} = -\frac{N_B(t)}{\tau^l} - \frac{N_B(t)}{\tau^r} \quad (\text{canaux B1 et B2}) \quad (3.19)$$

La résolution de ce système permet de calculer le nombre total de porteurs dans l'état excité ( $N_A+N_B$ ). Ce modèle permet de reproduire l'allure de la décroissance de type double exponentielle observée expérimentalement<sup>146</sup> (Figure 3.5). La première pente rapide correspond à la relaxation quand le niveau inférieur est vide, tandis que la seconde pente plus lente correspond à la recombinaison des porteurs quand le niveau inférieur est rempli.

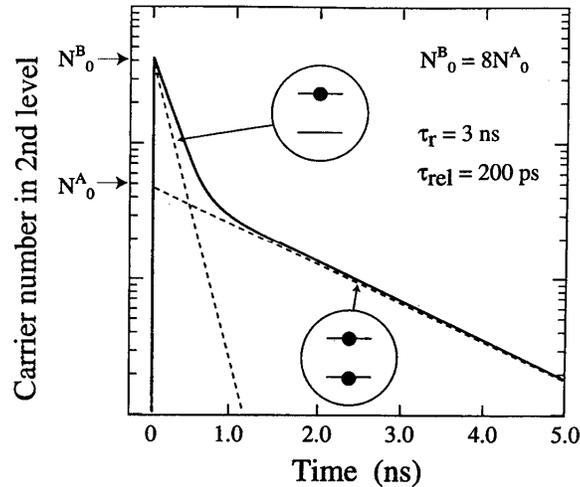


Figure 3.5: Courbe de décroissance du nombre de porteurs calculée pour l'état excité. La forte pente est due à la relaxation et la seconde plus lente à la recombinaison des porteurs<sup>146</sup>.

L'intérêt de ce modèle est malheureusement assez limité à cause de sa complexité. En effet, le nombre de configurations et de processus de relaxation possibles augmente très rapidement avec le nombre d'états considérés, ce qui rend les calculs extrêmement lourds.

D'autres modèles proposent des approches mixtes assez complexes, par exemple, en combinant la théorie des micro-états avec le calcul des processus Auger par la règle d'Or de Fermi, mais les résultats reproduisent encore mal les données expérimentales<sup>147</sup>.

## 3.4 Développement d'un nouveau modèle

### 3.4.1 Principes de base

- *Objectifs*

Le but de cette étude est d'étudier de façon approfondie le rôle des différents mécanismes de relaxation. Pour cela, nous avons décidé de développer un modèle simple basé sur une description déterministe des populations de porteurs. Les modèles basés sur une distribution

aléatoire des porteurs sont très complexes et surtout, il n'a pas été prouvé qu'ils décrivent mieux les résultats expérimentaux. Nous allons cependant étudier l'effet d'une distribution initiale inhomogène des porteurs.

Un autre aspect qui nous paraît très important consiste à déterminer quels mécanismes de relaxation jouent un rôle dominant dans les boîtes quantiques. Dans un premier temps, nous allons considérer une distribution initiale homogène des porteurs, c'est-à-dire que toutes les boîtes contiennent le même nombre de porteurs. Et nous allons tenter d'identifier indépendamment le ou les principaux mécanismes de relaxation susceptibles de jouer un rôle important lors de la relaxation de l'énergie des porteurs. Ce modèle est donc simplement basé sur les équations d'évolution conventionnelles. Ensuite, nous verrons l'effet d'une distribution initiale inhomogène des porteurs et nous modéliserons les données expérimentales.

Il est important de noter que ce modèle a été développé dans le seul but de mieux comprendre le rôle joué par différents mécanismes de relaxation. Il n'a pas été conçu pour déterminer quantitativement les valeurs des divers taux de relaxation, qui seraient de toutes façons peu significatifs, si l'on considère le grand nombre d'approximations utilisées. La modélisation des données expérimentales a été réalisée dans le but de valider le modèle proposé, pour montrer qu'il peut décrire de façon satisfaisante les observations expérimentales, mais ce modèle et les valeurs numériques obtenues représentent une solution au problème qui n'est certainement pas unique. Pourtant cette étude montre qualitativement (en comparant l'allure relative des courbes), qu'il est important sinon indispensable de tenir compte de certains mécanismes de relaxation, sinon on ne peut reproduire l'allure des courbes expérimentales. À notre connaissance, cette modélisation bien qu'imparfaite, est pourtant l'une des premières à reproduire simultanément les temps de montée et de décroissance du signal de PL correspondant à quatre ou cinq niveaux de boîtes quantiques, dans différentes conditions expérimentales.

Nous allons considérer sept niveaux d'énergie distincts dans le système, afin d'étudier plus précisément les mécanismes de relaxation entre ces différents niveaux. Trois sont des niveaux de barrière (couche de mouillage et GaAs) et quatre des niveaux confinés dans la boîte quantique, comme illustré sur la Figure 3.6.

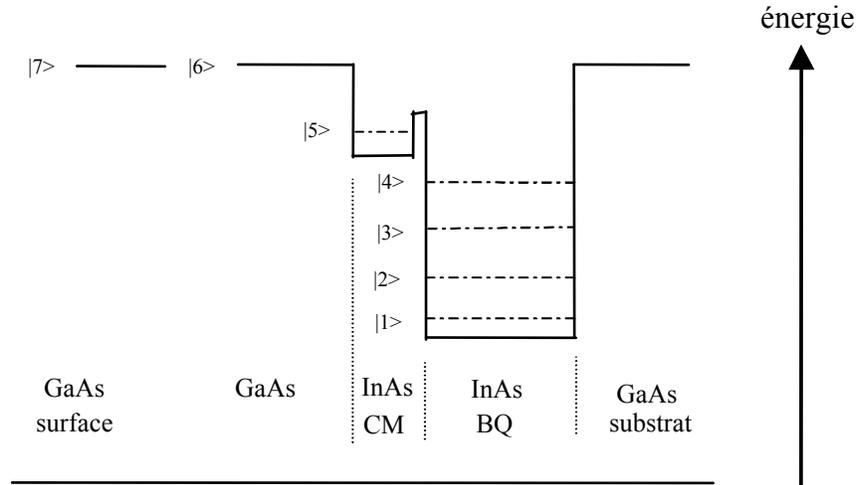


Figure 3.6: Schéma représentant les différents niveaux d'énergie considérés dans les structures à boîtes quantiques.  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ ,  $|3\rangle$  et  $|4\rangle$  sont confinés dans la boîte,  $|5\rangle$  dans la couche de mouillage,  $|6\rangle$  et  $|7\rangle$  dans le GaAs

Les mécanismes étudiés sont le transport des porteurs dans le GaAs et dans la couche de mouillage, la capture des porteurs des barrières vers les niveaux confinés, la relaxation interniveaux, la recombinaison radiative électron-trou, ainsi que les principaux mécanismes d'interactions entre porteurs (processus Auger et multiphononiques) dans les différents niveaux du système.

De manière générale, le critère que nous avons choisi pour déterminer l'importance d'un mécanisme repose sur la comparaison entre les résultats des calculs avec et sans la présence du mécanisme d'une part, et les cinétiques obtenues expérimentalement d'autre part. Si les courbes calculées en tenant compte du mécanisme ressemblent davantage aux cinétiques réelles, alors on considère que celui-ci peut jouer un rôle significatif. Comme nous l'avons observé dans le chapitre précédent, les principales caractéristiques des signaux transitoires de PL, qui sont à reproduire par les simulations, sont les suivantes: un temps de montée de quelques picosecondes pour la couche de mouillage, un court temps de montée pour le niveau fondamental qui augmente pour les niveaux de plus haute énergie, des courbes superposées lors de la montée pour les différents niveaux du système, un temps de décroissance assez long pour la couche de mouillage (environ 400 ps), un plateau de saturation constant pour le niveau fondamental (à forte densité d'excitation), décroissant pour les niveaux d'énergie supérieure, et qui disparaît à haute énergie (à moyenne excitation, avant le remplissage total des boîtes).

À priori, on s'attend à ce que des boîtes quantiques réelles soient légèrement différentes et puissent contenir un nombre variable de porteurs. La relaxation de l'énergie des porteurs, qui dépend des interactions entre particules, pourrait en être fortement modifiée. L'excitation optique pulsée consiste en une très brève impulsion qui se produit sur une échelle de temps beaucoup plus courte que les processus de capture/relaxation interniveaux/recombinaison des porteurs. Les conditions initiales découlent par conséquent principalement de la distribution initiale des photo-porteurs (Figure 3.7) dans le plan des couches et dans la profondeur de l'échantillon (absorption des couches).

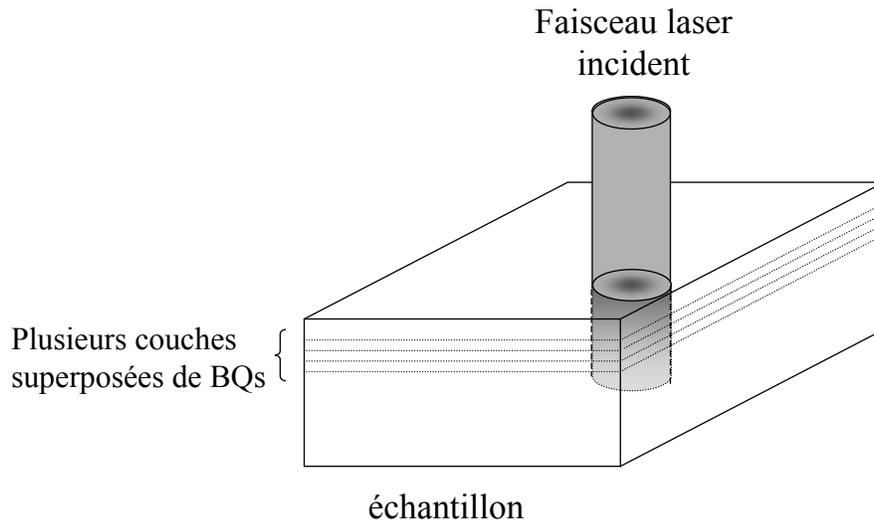


Figure 3.7: Schéma montrant une distribution planaire inhomogène des photo-porteurs et l'absorption inhomogène de ces porteurs dans la profondeur de l'échantillon.

Dans le modèle que nous avons développé, nous considérons une distribution inhomogène du nombre de porteurs dans les BQs, tant que les BQs ne sont pas entièrement remplies<sup>148</sup>. La distribution inhomogène des porteurs pourrait expliquer le fait que des transitions à haute énergie peuvent apparaître avant que les niveaux de plus basse énergie ne soient saturés, comme cela est observé expérimentalement. À forte excitation, la distribution devient homogène, puisque toutes les boîtes sont saturées. Nous allons considérer plusieurs types de distributions inhomogènes: une fonction de Poisson, une fonction de type gaussienne et une fonction exponentielle. L'utilisation de ces fonctions analytiques plutôt qu'une méthode numérique de style Monte-Carlo permet de simplifier la résolution du modèle.

En principe, si le faisceau d'excitation est considéré uniforme, la fonction de distribution des porteurs dans les boîtes correspond à une distribution binomiale (les porteurs ont une probabilité égale d'être capturé dans n'importe quelle boîte). Dans la limite où le nombre de boîtes tend vers l'infini, la fonction est réduite à une distribution de Poisson<sup>149</sup>. D'autre part, les inhomogénéités dans la distribution des BQs (variations de la taille et de la composition) peuvent se traduire par une répartition non-uniforme des porteurs différente, selon le type de boîtes. La fonction gaussienne a été choisie par analogie à la répartition spatiale inhomogène des porteurs photo-excités dans le plan des couches. En effet, on peut noter que les pics observés en PL, dont la largeur est due aux variations énergétiques des transitions dans l'ensemble inhomogène de BQs, ont aussi une forme gaussienne. La fonction exponentielle, quant à elle, peut décrire la distribution initiale des photo-porteurs due à l'absorption des couches. Les fonctions de distribution ont été choisies de manière à représenter des phénomènes physiques, mais il est important de noter que ces modèles ont été développés avant tout pour étudier l'effet d'une distribution inhomogène des porteurs et non pour déterminer de manière la plus juste et la plus réaliste possible l'effet du type d'éclairement par un faisceau laser...

- *Hypothèses*

Pour le développement de notre modèle de relaxation, nous considérons les hypothèses suivantes, globalement en accord avec nos résultats expérimentaux:

- On considère des niveaux à particule unique seulement, on ne tient donc pas compte des états à multi-particules.
- La relaxation et la capture sont ambipolaires, ou bien limitées par un seul type de porteurs (électron ou trou). Alternativement, on peut considérer la relaxation excitonique.
- On considère chaque BQ comme une entité individuelle: on néglige le couplage inter-boîte. Cette hypothèse est justifiée pour les échantillons présentant une faible densité de BQs (comme les échantillons étudiés).
- Chaque BQ de l'ensemble considéré contient un même nombre d'états. Cette hypothèse est très vraisemblable car, d'une part, l'homogénéité des BQs est suffisamment bonne pour

permettre l'observation de pics distincts en PL, et d'autre part, les BQs présentent un large espace inter-niveau.

- On considère quatre niveaux confinés dans les BQs (1, 2, 3 et 4) plus un à trois niveaux d'énergie supérieure (5, 6 et 7) correspondant aux barrières d'InAs (couche de mouillage) et du GaAs. Les états confinés dans les boîtes peuvent être dégénérés.
- On considère que la distribution de porteurs dans les BQs obéit au principe d'exclusion de Pauli<sup>92, 119</sup>; ainsi le nombre maximum de porteurs des niveaux de plus basse énergie est 2, 4, 6 et 8 pour les niveaux d'énergie croissante, en tenant compte de la dégénérescence de spin.
- Les temps de recombinaison des porteurs sont semblables pour tous les niveaux et dans toutes les BQs<sup>87, 89</sup>. Il en va de même pour les temps de relaxation interniveaux. En effet, la dynamique des porteurs dépend surtout de la qualité de la fabrication (présence de défauts et homogénéité de l'ensemble de BQs) et des propriétés structurelles des BQs, et non du nombre total de porteurs (mis à part la dégénérescence qui est déjà prise en compte). La recombinaison radiative est caractérisée par le temps  $\tau^R$ .
- On ne tient pas compte de l'activation thermique, c'est-à-dire de la ré-émission des porteurs des BQs vers la couche de mouillage ou dans tout autre niveau de plus haute énergie. On va considérer que ce processus est inclus dans les taux de capture/relaxation multiphononiques.
- On considère seulement la relaxation des porteurs en cascade, du niveau de plus haute énergie vers le niveau d'énergie immédiatement inférieur, jusqu'au niveau fondamental, sauf indications contraires. La relaxation interniveaux est déterminée par le temps de relaxation  $\tau^I$ , tandis que la capture des porteurs à partir du réservoir vers le niveau de plus haute énergie est limitée par le temps  $\tau^C$ .

Dans un premier temps, on considère que la distribution initiale des porteurs est homogène. Autrement dit, toutes les BQs ont le même nombre (moyen) de porteurs.

En revanche, dans le cas d'une distribution inhomogène de Poisson, on considère que chaque boîte peut avoir un nombre différent de porteurs. Ce nombre suit une distribution de Poisson, et le nombre de porteurs initial par boîte suit la fonction suivante (Figure 3.8):

$$m_n = \frac{n_0^n}{n!} \cdot e^{-n_0} \quad (3.20)$$

où  $n$  et  $n_0$  sont positifs

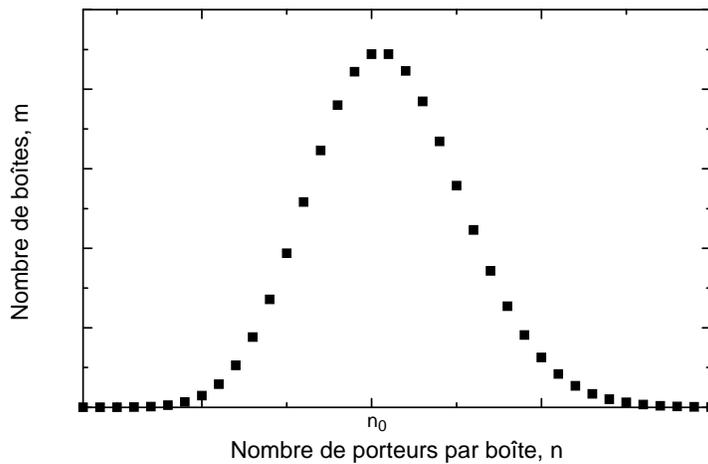


Figure 3.8: Distribution de Poisson du nombre de boîtes  $m$  en fonction du nombre de porteurs  $n$ . La distribution est centrée autour du nombre de porteurs moyen  $n_0$ .

Dans le cas d'une distribution de type gaussienne, on considère que le nombre de boîtes suit une loi gaussienne centrée autour de la valeur moyenne  $n_0$  (Figure 3.9). L'intérêt de cette fonction de distribution est la présence d'un paramètre variable (largeur de la gaussienne) qui permet de varier le degré d'inhomogénéité. Le nombre de boîtes  $m$  ayant  $n$  porteurs à  $t = 0$  suit la fonction suivante:

$$m_n = K \cdot e^{-4 \ln 2 (n - n_0)^2 / FWHM^2} \quad (3.21)$$

où  $K$  est une constante de normalisation et FWHM la largeur de la gaussienne.

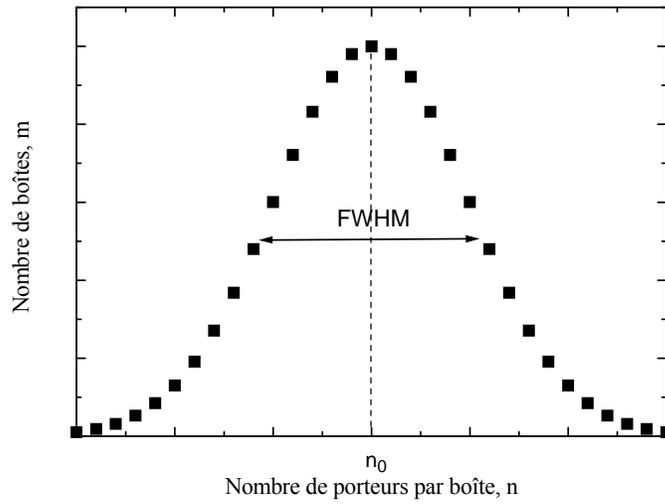


Figure 3.9: Distribution gaussienne du nombre de boîtes quantiques  $m$  en fonction du nombre de porteurs  $n$ . La distribution est centrée autour du nombre moyen  $n_0$  et la largeur à mi-hauteur est  $FWHM$ .

Pour la distribution exponentielle, on considère que le nombre de porteurs photo-excités absorbés dans le GaAs (dont le coefficient d'absorption est  $\alpha$ ) suit la loi exponentielle d'absorption selon la profondeur  $z$  (Figure 3.10):

$$N = N_0.e^{-\alpha z} \quad (3.22)$$

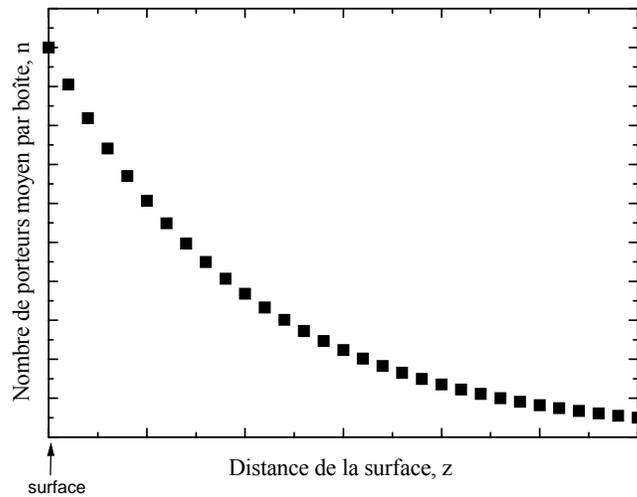


Figure 3.10: Distribution exponentielle du nombre de porteurs dans les BQs en fonction de la distance  $z$ .

- *Conditions initiales et constante de normalisation*

Tout d'abord, dans tous les cas, on considère que tous les porteurs sont initialement excités dans le niveau de plus haute énergie (à  $t = 0$ ) et que tous les niveaux inférieurs sont vides.

Pour la distribution gaussienne, le calcul de la constante de normalisation  $K$  permet de s'assurer que la somme de toutes les BQs ayant  $n$  porteurs est égale au nombre total de BQs. Elle est déterminée par:

$$\sum_{n=0}^{n=\infty} m(n) = M \quad (3.23)$$

Si on considère un grand nombre de porteurs, on peut faire l'approximation suivante: la somme discrète est équivalente à une intégrale que l'on peut résoudre analytiquement.

$$\int_0^{\infty} K.e^{-4 \ln 2(n-n_0)^2 / FWHM^2} = M \quad (3.24)$$

Ainsi, on obtient:

$$K \approx \frac{4 M}{FWHM} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \quad (3.25)$$

La validité de l'approximation (intégration continue de la fonction plutôt que sommation discrète) est vérifiée lors de chaque calcul en calculant la somme discrète de tous les  $m$ . Les résultats montrent les valeurs de  $K$  ne sont pas valables si  $FWHM < 2$  car le nombre  $n$  définissant la gaussienne est alors trop faible. Lorsque la largeur de la gaussienne est très réduite, on définit les valeurs de  $K$  de la façon suivante:

si  $1.5 < FWHM < 2$ , alors  $m = M / 4$  pour  $n = n_0 - 1$  et  $n = n_0 + 1$ ,

$$m = M / 2 \text{ pour } n = n_0$$

et  $m = 0$  pour toutes les autres valeurs de  $n$

si  $FWHM < 1.5$ , alors  $m = M$  pour  $n = n_0$

et  $m = 0$  pour toutes les autres valeurs de  $n$

### 3.4.2 Mise au point des modèles

- *Description analytique des modèles*

Dans le cas de distribution inhomogène des porteurs, il faut évaluer la dynamique des porteurs dans des BQs ayant un nombre de porteurs variable,  $n$ .

Pour la distribution de Poisson et la distribution gaussienne, il faut calculer l'évolution temporelle de la distribution de la population, pour chaque valeur de  $n$  et pour tous les niveaux. Pour chaque courbe, on attribue un poids correspondant au nombre de BQs ayant un nombre  $n$  de porteurs. Puis, on additionne toutes les distributions temporelles obtenues pour toutes les valeurs de  $n$ , à chaque niveau  $i$ .

Pour la distribution exponentielle, on évalue la distribution de la population en fonction du temps pour chaque valeur de  $n$  correspondant à une valeur particulière de  $z$ . Puis on somme toutes les cinétiques calculées pour toutes les valeurs  $n$ , à chaque niveau  $i$ .

Pour une distribution homogène des porteurs, il suffit de résoudre le système d'équations pour obtenir la distribution temporelle de la population moyenne pour chaque niveau.

Le système d'équations de base le plus simple est le suivant. Il tient compte seulement de la capture et de la relaxation vers le niveau inférieur le plus proche. Chaque variable  $N_i$  dépend du temps; mais pour simplifier les équations, cette dépendance n'est pas indiquée explicitement. On s'est limité à l'évolution des populations de cinq niveaux étudiés expérimentalement.

$$\frac{dN_5^n}{dt} = -\frac{N_5^n}{\tau_5^r} - \frac{N_5^n}{\tau^c} \left( \frac{g_4 - N_4^n}{g_4} \right) \quad (3.26.a)$$

$$\frac{dN_4^n}{dt} = -\frac{N_4^n}{\tau^r} - \frac{N_4^n}{\tau^l} \left( \frac{g_3 - N_3^n}{g_3} \right) + \frac{N_5^n}{\tau^c} \left( \frac{g_4 - N_4^n}{g_4} \right) \quad (3.26.b)$$

$$\frac{dN_3^n}{dt} = -\frac{N_3^n}{\tau^r} - \frac{N_3^n}{\tau^l} \left( \frac{g_2 - N_2^n}{g_2} \right) + \frac{N_4^n}{\tau^l} \left( \frac{g_3 - N_3^n}{g_3} \right) \quad (3.26.c)$$

$$\frac{dN_2^n}{dt} = -\frac{N_2^n}{\tau^r} - \frac{N_2^n}{\tau^l} \left( \frac{g_1 - N_1^n}{g_1} \right) + \frac{N_3^n}{\tau^l} \left( \frac{g_2 - N_2^n}{g_2} \right) \quad (3.26.d)$$

$$\frac{dN_1^n}{dt} = -\frac{N_1^n}{\tau^r} + \frac{N_2^n}{\tau^l} \left( \frac{g_1 - N_1^n}{g_1} \right) \quad (3.26.e)$$

et le nombre total de porteurs d'un niveau est donné par:

$$N_i(t) = \sum_{n=n_{\min}}^{n_0 + 2FWHM} m_n \cdot N_i^n(t) \quad (3.27)$$

où  $n_{\min} = n_0 - 2FWHM$  si  $n_0 - 2FWHM > 0$

et  $n_{\min} = 0$  si  $n_0 - 2FWHM \leq 0$

La sommation est ainsi limitée afin de réduire les temps de calcul du programme. L'approximation introduit une erreur inférieure à  $5 \times 10^{-4}$  M. Dans le cas où  $n_0 - 2FWHM < 0$ , la forme de la fonction gaussienne sera asymétrique mais la somme des BQs est conservée.

### • Description des mécanismes de relaxation

Les équations d'évolution peuvent aussi être modifiées pour étudier l'importance relative des différents mécanismes de relaxation (processus Auger et multiphononiques):

○ Les interactions des porteurs avec les phonons sont décrites par les processus phononiques.

Les équations d'évolution de la population de porteurs d'un niveau  $i$  vers un niveau  $j$  s'écrivent alors:

$$\frac{dn_i(t)}{dt} = -R_{ij}^{ph} \cdot n_i \cdot \left( 1 - \frac{n_j(t)}{g_j} \right) \quad (3.28)$$

$$\frac{dn_j(t)}{dt} = R_{ij}^{ph} \cdot n_i \cdot \left( 1 - \frac{n_j(t)}{g_j} \right) \text{ où } i > j \quad (3.29)$$

On suppose que le taux de relaxation caractéristique  $R_{ij}^{ph}$  est indépendant de la densité de porteurs mais qu'il est, en revanche, implicitement dépendant de la température. Cette équation peut décrire la capture des porteurs des barrières vers des états confinés des BQs, ainsi que la relaxation interniveaux, des états de plus haute énergie vers les états de plus basse énergie.

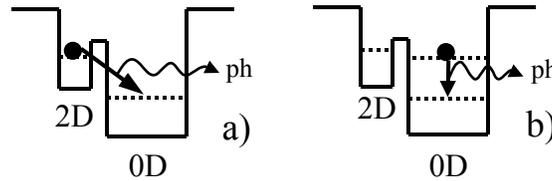


Figure 3.11: Processus typiques de capture (a) et de relaxation interniveaux (b) faisant intervenir des phonons.

○ Les collisions des porteurs entre eux sont caractérisées par les processus de type Auger. Ces interactions conduisent à une redistribution de l'énergie des porteurs, et par conséquent à d'importantes modifications de la distribution des porteurs dans les BQs. On distingue différents mécanismes, selon les niveaux mis en jeu:

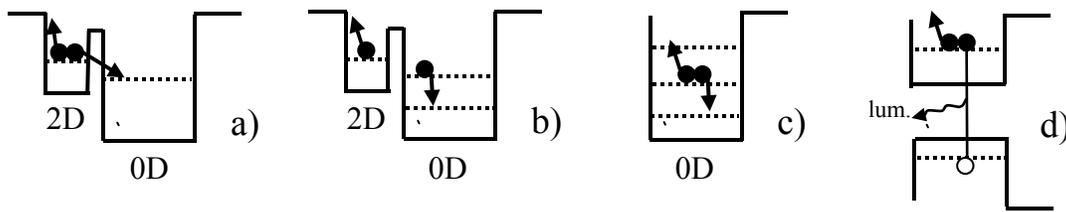


Figure 3.12: Processus typiques de capture (a), de relaxation interniveaux avec un porteur dans la couche de mouillage (b) ou les deux porteurs confinés (c), et de recombinaison (d) dus à des collisions entre porteurs (mécanismes Auger).

➤ la capture Auger se produit entre deux porteurs de la couche de mouillage: l'un est capturé dans la boîte tandis que l'autre est excité dans la couche de mouillage

$$\frac{dn_5(t)}{dt} = -R_{55,5i}^A \cdot n_5(t) \cdot n_5(t) \cdot \left(1 - \frac{n_i(t)}{g_i}\right) \quad (3.30)$$

$$\frac{dn_i(t)}{dt} = +R_{55,5i}^A \cdot n_5(t) \cdot n_5(t) \cdot \left(1 - \frac{n_i(t)}{g_i}\right) \quad (3.31)$$

où 5 est un niveau de la CM, et  $i$  est un niveau de la BQ

- la relaxation Auger entre un porteur de la couche de mouillage et un porteur de la BQ: dans ce cas, le porteur de la BQ relaxe vers un niveau d'énergie inférieur, tandis que l'autre porteur est excité vers un état 2D excité de la CM.

$$\frac{dn_i(t)}{dt} = -R_{5i,5i}^A \cdot n_5(t) \cdot n_i(t) \cdot \left(1 - \frac{n_{i-1}(t)}{g_{i-1}}\right) \quad (3.32)$$

$$\frac{dn_{i-1}(t)}{dt} = +R_{5i,5i}^A \cdot n_5(t) \cdot n_i(t) \cdot \left(1 - \frac{n_{i-1}(t)}{g_{i-1}}\right) \quad (3.33)$$

où  $i$  est un niveau de la BQ

- la relaxation Auger entre deux porteurs confinés au même niveau de la BQ: l'un relaxe vers un niveau d'énergie inférieur tandis que l'autre est excité à un niveau d'énergie supérieur. Ces collisions pourraient être importantes à faible densité d'excitation. Six processus différents peuvent se produire si la séparation interniveaux est constante et qu'il y a des niveaux 2D d'énergie appropriée (Figure 3.13):

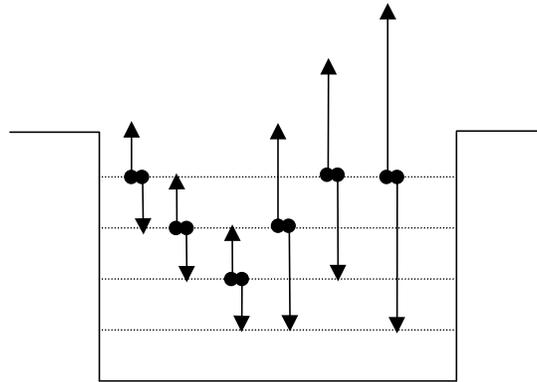


Figure 3.13: Processus Auger possibles entre deux porteurs de même niveau quantique, dans une boîte à quatre niveaux quantiques distincts et équidistants.

On suppose que ces processus sont énergétiquement possibles et qu'ils sont tous aussi probables. On n'a pas considéré les processus intra-boîtes pouvant se produire entre porteurs de différents niveaux.

Le système d'équations correspondant aux processus schématisés sur la Figure 3.13 est donné par les équations suivantes (la dépendance temporelle de  $n_i$  est supprimée pour plus de clarté):

$$\begin{aligned} \frac{dn_5}{dt} = & +R_{44,3}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_3}{g_3}\right) + R_{33,1}^A \cdot n_3 \cdot n_3 \cdot \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \\ & + R_{44,2}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_2}{g_2}\right) + R_{44,1}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \end{aligned} \quad (3.34.a)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_4}{dt} = & -2 \cdot R_{44,3}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_3}{g_3}\right) + R_{33,42}^A \cdot n_3 \cdot n_3 \cdot \left(1 - \frac{n_4}{g_4}\right) \left(1 - \frac{n_2}{g_2}\right) \\ & - 2 \cdot R_{44,2}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_2}{g_2}\right) - 2 \cdot R_{44,1}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \end{aligned} \quad (3.34.b)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_3}{dt} = & R_{44,3}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_3}{g_3}\right) - 2 \cdot R_{33,42}^A \cdot n_3 \cdot n_3 \cdot \left(1 - \frac{n_4}{g_4}\right) \left(1 - \frac{n_2}{g_2}\right) \\ & + R_{22,31}^A \cdot n_2 \cdot n_2 \cdot \left(1 - \frac{n_3}{g_3}\right) \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) - 2 \cdot R_{33,1}^A \cdot n_3 \cdot n_3 \cdot \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \end{aligned} \quad (3.34.c)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_2}{dt} = & R_{33,42}^A \cdot n_3 \cdot n_3 \cdot \left(1 - \frac{n_4}{g_4}\right) \left(1 - \frac{n_2}{g_2}\right) - 2 \cdot R_{22,31}^A \cdot n_2 \cdot n_2 \cdot \left(1 - \frac{n_3}{g_3}\right) \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \\ & + R_{44,2}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_2}{g_2}\right) \end{aligned} \quad (3.34.d)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} = & R_{22,31}^A \cdot n_2 \cdot n_2 \cdot \left(1 - \frac{n_3}{g_3}\right) \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) + R_{33,1}^A \cdot n_3 \cdot n_3 \cdot \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \\ & + R_{44,1}^A \cdot n_4 \cdot n_4 \cdot \left(1 - \frac{n_1}{g_1}\right) \end{aligned} \quad (3.34.e)$$

- La recombinaison Auger pourrait se produire entre porteurs de n'importe quel niveau 0D, mais on n'a considéré ici que les mécanismes entre porteurs confinés au même niveau quantique. À forte densité d'excitation, ces termes supplémentaires de recombinaison peuvent jouer un rôle important en limitant la recombinaison radiative.

$$\frac{dn_i}{dt} = -R_{ii}^A \cdot n_i \cdot n_i \quad (3.35)$$

Les processus mettant en jeu des porteurs dans la couche de mouillage sont supposés très efficaces à cause du grand nombre de porteurs dans ce niveau 2D. En revanche, les processus de capture Auger à partir du GaAs ne sont pas pris en compte car la capture multiphononique des porteurs du GaAs (barrière) vers la couche de mouillage est déjà très efficace. Si l'on considérait ces mécanismes entre les niveaux 3D et 2D, cela reviendrait seulement à réduire le temps de capture 3D-2D, et si l'on considérait ces mécanismes entre les niveaux 3D et 0D, les temps de montée des niveaux 0D pourraient devenir plus courts que celui de la couche de mouillage, ce qui est contraire aux observations expérimentales. Des processus Auger se produisent probablement à partir du GaAs, mais d'autres mécanismes semblent jouer un rôle plus important.

- D'autres mécanismes pourraient jouer un rôle important sur la distribution des porteurs dans les boîtes quantiques.

En particulier, la diffusion des porteurs dans la couche relativement épaisse de GaAs en surface peut être significative. Si on veut tenir compte de façon rigoureuse de ce mécanisme de transport, il faudrait suivre l'évolution spatiale de la distribution de porteurs en profondeur en fonction du temps (on néglige dans ce cas la diffusion latérale). En principe, il faudrait donc résoudre simultanément les équations d'évolution et l'équation de diffusion. Une approche de type Monte-Carlo semble plus appropriée pour résoudre ce problème.

Dans cette étude, pour simplifier les calculs, on tiendra seulement compte de l'évolution temporelle de la diffusion à partir d'un niveau-réservoir (états du GaAs massif de surface) vers des états du GaAs des barrières. Cette approximation est justifiée par le fait qu'on observe expérimentalement un temps de décroissance du signal de la transition du GaAs typique d'environ 40 ps presque indépendant de la densité d'excitation, qui pourrait être caractéristique du temps de diffusion des porteurs dans le GaAs. Du fait de l'épaisseur de la couche de surface de GaAs, une grande partie des photo-porteurs devraient être absorbés dans cette couche. Pour

simplifier les calculs, on considère un taux de transport constant pour tenir compte de la diffusion de la couche de surface vers la couche-barrière de GaAs:

$$\frac{dn_7(t)}{dt} = -R^{diffG} \cdot n_7(t) \quad (3.36)$$

De plus, à basse température (15 K), on observe expérimentalement une augmentation du temps de décroissance des porteurs dans la couche de mouillage. Cela peut être dû à la localisation des porteurs piégés momentanément dans des défauts d'interface du puits quantique très étroit. Il est aussi possible qu'une barrière de potentiel, plus importante pour certains échantillons, limite la capture des porteurs. Cet effet peut donc aussi jouer un rôle sur la distribution des porteurs dans les boîtes quantiques. Quel que soit le phénomène physique mis en cause, l'effet de ce processus de transport est compris dans le terme de capture phononique  $R_{si}^{ph}$ .

- *Paramètres variables*

Les paramètres variables sont les suivants:

- les valeurs des temps de capture, de relaxation et de recombinaison, pour les différents niveaux. Dans cette étude, ces paramètres seront maintenus constants, fixés à des valeurs proches de celles déduites des données expérimentales. Mais l'effet de variations de ces valeurs a été observé au préalable, de façon à vérifier l'adéquation de ces paramètres.
- le nombre de porteurs moyen par boîte quantique,  $n_0$ , qui est fonction de la densité d'excitation
- les mécanismes de relaxation effectifs, et leurs paramètres caractéristiques ( $R^{diffI}$ ,  $R^{diffG}$ ,  $R^A$ ,  $R^{ph}$ )
- la largeur à mi-hauteur de la gaussienne *FWHM*, pour le modèle gaussien (Figure 3.14)

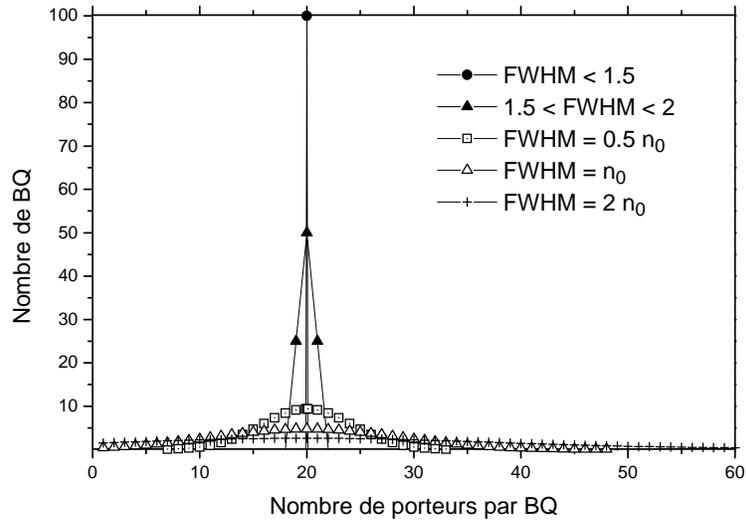


Figure 3.14: Distribution gaussienne du nombre de porteurs dans l'ensemble des BQs. Les courbes correspondent à différentes largeurs de la gaussienne (FWHM) exprimées en fonction du nombre moyen de porteurs par BQ (20 porteurs ici). Le nombre total de BQ est normalisé dans tous les cas.

- le coefficient d'absorption  $\alpha$ , pour le modèle exponentiel (Figure 3.15)

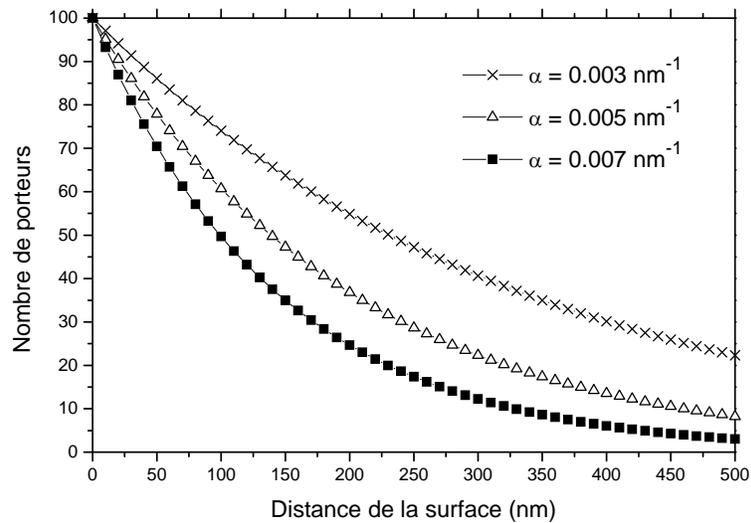


Figure 3.15: Distribution exponentielle du nombre de porteurs dans l'ensemble des BQs représentant une distribution inhomogène des porteurs selon l'axe de croissance de l'échantillon (d'une couche de BQs à l'autre). Les courbes correspondent à différents coefficients d'absorption.

D'autres paramètres ont été fixés afin de diminuer le nombre de variables du système:

- les valeurs des dégénérescences des niveaux confinés dans les BQs sont  $g_1 = 2$ ,  $g_2 = 4$ ,  $g_3 = 6$  et  $g_4 = 8$ .

- On peut raisonnablement supposer que les taux de relaxation interniveaux dans les boîtes (par effet Auger et par diffusion de phonons) sont égaux, d'où:

$$R_{43}^{ph} = R_{42}^{ph} = R_{41}^{ph} = R_{32}^{ph} = R_{31}^{ph} = R_{21}^{ph} = R^{ph} \text{ et}$$

$$R_{ij,ij}^A = R_{0D-0D}^A \text{ où } i, j \leq 4$$

- De la même manière, on suppose que les taux de capture Auger et phononique, respectivement, sont égaux pour chacun des niveaux confinés:

$$R_{54}^{ph} = R_{53}^{ph} = R_{52}^{ph} = R_{51}^{ph} = R_5^{ph} \text{ et}$$

$$R_{64}^{ph} = R_{63}^{ph} = R_{62}^{ph} = R_{61}^{ph} = R_6^{ph}$$

$$R_{5,i}^A = R_{2D-0D}^A \text{ où } i \leq 4$$

- Comme les temps de recombinaison  $\tau^R$  sont beaucoup plus longs que les temps de relaxation, on considère pour simplifier les calculs que ces temps sont égaux, d'où:

$$R_1 = R_2 = R_3 = R_4 = R_5 = R_6 = R_7$$

- D'autre part, les paramètres  $\tau^R$ ,  $R^{diffG}$  et  $R^{diffI}$  peuvent être fixés aux valeurs déduites des cinétiques à long temps pour le niveau fondamental, pour le GaAs, et la couche de mouillage, respectivement. Les valeurs suivantes ont été déterminées expérimentalement:

$$\tau^R = 1/R_i = 0.8 \text{ ns}, R^{diffG} = 1/40 \text{ ps}^{-1} \text{ et } R^{diffI} = 1/400 \text{ ps}^{-1}$$

- D'autres paramètres, comme les temps de capture et de relaxation interniveaux, sont optimisés de manière à reproduire le mieux possible les données expérimentales. Finalement, des paramètres d'amplitude permettent de comparer le nombre de porteurs d'un niveau avec l'intensité du signal de PL mesurée pour une transition donnée.

- *Structure des programmes*

Pour déterminer l'évolution des populations des différents niveaux du système en fonction du temps, il faut résoudre un système de plusieurs équations différentielles couplées non-linéaires. Ce problème ne peut pas être résolu analytiquement, et par conséquent c'est la résolution numérique qui a été retenue. Le logiciel de calcul scientifique Mathematica (version 3.0) a été utilisé pour effectuer les calculs.

La routine permettant la résolution numérique du système d'équation est décrite à la Figure 3.16. La routine utilisée est la même si on considère une distribution de Poisson ou une distribution gaussienne.

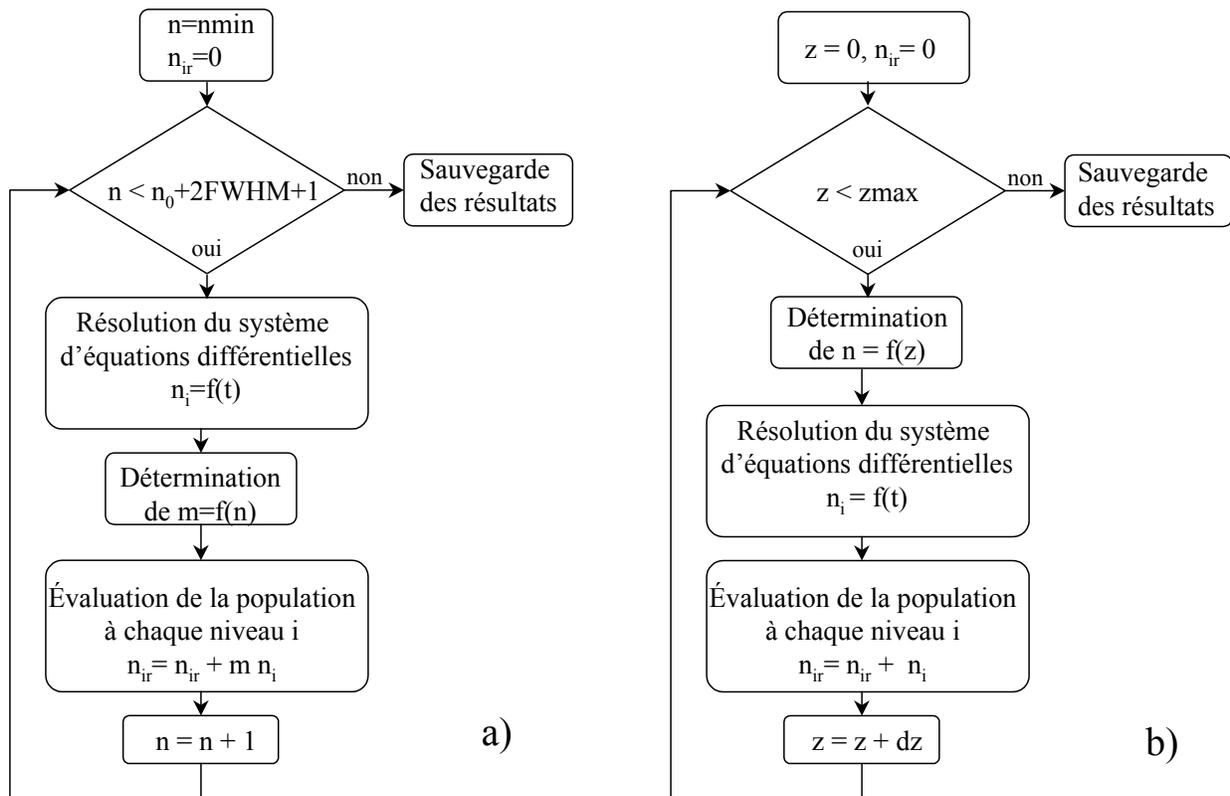


Figure 3.16: Organigramme décrivant les étapes nécessaires aux calculs pour déterminer l'évolution de la population de chaque niveau du système, si on tient compte d'une distribution initiale gaussienne a) ou d'une distribution initiale exponentielle b) des porteurs.

## 3.5 Résultats des simulations

### 3.5.1 Paramètres de modélisation

Pour simplifier la présentation des résultats des simulations, tous les paramètres fixes et variables utilisés pour les calculs sont répertoriés dans les tableaux suivants.

Le code suivant a été choisi pour décrire les différents mécanismes de relaxation pris en compte dans le modèle, les paramètres caractéristiques sont indiqués entre parenthèses.

A: Diffusion dans la couche de surface du GaAs ( $R^{diffG}$ )

B: Capture multiphononique du GaAs (barrière) vers la CM ( $R_{65}^{ph}$ )

C: Capture multiphononique du GaAs (barrière) vers les niveaux 0D ( $R_{6i}^{ph}$ )

D: Capture multiphononique de la CM vers le niveau  $f$ , tenant en compte la localisation des porteurs dans la CM ( $R_{5f}^{ph}$ )

E: Capture multiphononique de la CM vers tous les niveaux 0D, tenant en compte la localisation des porteurs dans la CM ( $R_{5i}^{ph}$ )

F: Relaxation interniveaux multiphononique vers le niveau d'énergie immédiatement inférieur ( $R_{ij}^{ph}$ )

G: Relaxation interniveaux multiphononique vers tous les niveaux d'énergie inférieurs ( $R_{ij}^{ph}$ )

H: Capture de type Auger (2D-2D) vers tous les niveaux d'énergie 0D ( $R_{55,5i}^A$ )

I: Relaxation interniveaux assistée par les mécanismes Auger (2D-0D) vers tous les niveaux d'énergie 0D ( $R_{5i,5j}^A$ )

J: Relaxation interniveaux assistée par les mécanismes Auger entre porteurs de même niveaux (0D-0D) vers tous les niveaux d'énergie ( $R_{ii,jk}^A$ )

K: Recombinaison électron-trou à tous les niveaux ( $R_i$ )

L: Recombinaison via des mécanismes Auger (entre porteurs de même niveau) à tous les niveaux ( $R_{ii}^A$ )

De plus, on considère que la distribution spatiale initiale des porteurs correspond soit à une distribution homogène (notée W), soit à une distribution de Poisson (notée X), soit à une distribution Gaussienne (notée Y, de paramètre  $FWHM$ ), ou soit à une distribution exponentielle (notée Z, de coefficient  $\alpha$ ).

Dans tous les cas, les dégénérescences sont fixées à 2, 4, 6 et 8 pour les niveaux s, p, d et f respectivement, des boîtes quantiques.

Les valeurs fixées dans le programme ont été déterminées expérimentalement, d'après les temps de décroissance du signal de PL des transitions associées aux différents niveaux. Comme cela a été discuté précédemment, le transport des porteurs dans le GaAs est définie par un temps caractéristique constant de 40 ps. Le temps de capture multiphononique GaAs-CM est fixé à 1 ps. Le temps de transport dans la couche de mouillage est fixé à 400 ps. Ce temps assez long est dû à la localisation des porteurs (barrière de potentiel) à basse température. De plus, le temps de relaxation multiphononique interniveaux est évalué à 100 ps et le temps de recombinaison à 800 ps.

L'amplitude des niveaux est identique pour tous les niveaux et pour toutes les simulations (Figures 3.18 à 3.32). En revanche, pour les modélisations, l'amplitude de chaque niveau est optimisée. Les valeurs des amplitudes et du paramètre  $\chi^2$  ne sont pas présentées ici car ces valeurs sont considérées comme peu représentatives. En effet, la valeur du  $\chi^2$  dépend du nombre de données expérimentales, de l'amplitude du signal et de la dispersion des données. L'amplitude relative réelle des différentes courbes n'est peut-être pas exactement celle détectée, et de plus, les effets à N-corps peuvent modifier significativement la population des différents niveaux.

Tableau 3.1: Tableau récapitulatif regroupant les différents paramètres utilisés lors des simulations réalisées pour étudier le rôle des principaux mécanismes de relaxation.

Figure	Distri- bution	Mécanismes de relaxation	Paramètres variables unités pour R: ps <sup>-1</sup>	Paramètres fixés à 0
3.18	W	A, B, D, F, K	$R^{diffG}=1/0.1$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{54}^{ph}=1/0.1$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=20$	$R_{55,5i}^A$ , $R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.19	W	A, B, D, F, K	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{54}^{ph}=1/0.1$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=20$	$R_{55,5i}^A$ , $R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.20	W	A, B, D, F, K	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{54}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=20$	$R_{55,5i}^A$ , $R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.21	W	A, B, D, F, K	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{54}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$	$R_{55,5i}^A$ , $R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.22, 3.23	W	A, B, E, G, K	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$	$R_{55,5i}^A$ , $R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.24, 3.25	W	A, C, E, G, K	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{6i}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$	$R_{55,5i}^A$ , $R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.26	W	A, B, E, G, K, H	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$	$R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.27	W	A, B, E, G, K, H, I	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$ , $R_{5i,5j}^A=6x10^{10}$	$R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.28	W	A, B, E, G, K, H, J	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$ , $R_{ii,jk}^A=1x10^{11}$	$R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii}^A$
3.29	W	A, B, E, G, K, H, L	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$ , $R_{ii}^A=2x10^{10}$	$R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$

Tableau 3.2: Tableau récapitulatif regroupant les paramètres utilisés lors des simulations effectuées pour étudier le rôle de la distribution spatiale initiale des porteurs.

Figure	Distri- bution	Mécanismes de relaxation	Paramètres variables unités pour R: ps <sup>-1</sup>	Paramètres fixés à 0
3.30	X	A, B, E, G, K, H	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$	$R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.31	Y	A, B, E, G, K, H	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$ , $FWHM=40$	$R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$
3.32	Z	A, B, E, G, K, H	$R^{diffG}=1/40$ , $R_{65}^{ph}=1$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_{ij}^{ph}=1/100$ , $R_i=1/800$ , $n_o=40$ , $R_{55,5i}^A=2x10^{10}$ , $\alpha=0.004\text{ nm}^{-1}$	$R_{5i,5j}^A$ , $R_{ii,jk}^A$ , $R_{ii}^A$

Dans ce modèle, on considère, dans les niveaux des barrières, le nombre de porteurs par boîte et non la densité spatiale de porteurs, ce qui nous amène à définir les coefficients Auger sous une forme différente de celle utilisée dans la littérature. Dans le programme, les taux de collisions Auger tiennent compte du nombre de porteurs dans les barrières, et sont donc exprimés en nombre de porteurs moyen par boîte.

Cependant, les valeurs figurant dans les tableaux ont été calculées en tenant compte des valeurs expérimentales de densité d'excitation et de densité de boîtes dans l'échantillon, afin de pouvoir comparer approximativement nos valeurs avec celles de la littérature. Les valeurs des taux de collision Auger citées dans la littérature peuvent être assez différentes, variant de  $10^{10}\text{s}^{-1}$  à  $10^{12}\text{s}^{-1}$ , selon la densité de porteurs  $2D^{11,124}$ . Les valeurs obtenues par la modélisation semblent donc plausibles. La valeur élevée ( $3x10^{15}\text{s}^{-1}$ ) déterminée dans le dernier cas peut être expliquée par l'intervention d'un nouveau mécanisme de capture/relaxation lié à la délocalisation des porteurs dans des conditions expérimentales plus favorables (plus haute température et plus forte excitation que les cas précédents).

Tableau 3.3: Tableau récapitulatif regroupant les paramètres utilisés lors de la modélisation des données expérimentales.

Figure	Distri- bution	Mécanismes de relaxation	Paramètres optimisés (unités pour R: ps <sup>-1</sup> )	Paramètres fixés
3.33, 3.34	W	A, C, E, G, H, I, K, L	$R_{6i}^{ph}=8x10^{-3}$ , $R_{ij}^{ph}=1/300$ , $n_o=30$ , $R_{55,5i}^A = R_{5i,5j}^A = 2x10^{10}$ , $R_{ii}^A \approx 0$	$R^{diffG}=1/30$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_i=1/800$ , $R_{ii,jk}^A=0$
3.35, 3.36	Y	A, C, E, G, H, I, K, L	$R_{6i}^{ph}=8x10^{-3}$ , $R_{ij}^{ph}=1/300$ , $n_o=30$ , $R_{55,5i}^A = R_{5i,5j}^A = 2x10^{10}$ , $FWHM=15$	$R^{diffG}=1/30$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_i=1/800$ , $R_{ii,jk}^A=0$ , $R_{ii}^A \approx 0$
3.37	W	A, C, E, G, H, I, K, L	$R_{6i}^{ph}=8x10^{-3}$ , $R_{ij}^{ph}=1/300$ , $n_o=14$ , $R_{55,5i}^A = R_{5i,5j}^A = 6x10^{11}$	$R^{diffG}=1/30$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_i=1/800$ , $R_{ii,jk}^A=0$ , $R_{ii}^A \approx 0$
3.38	Y	A, C, E, G, H, I, K, L	$R_{6i}^{ph}=8x10^{-3}$ , $R_{ij}^{ph}=1/300$ , $n_o=14$ , $R_{55,5i}^A = R_{5i,5j}^A = 6x10^{11}$ , $FWHM=7$	$R^{diffG}=1/30$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_i=1/800$ , $R_{ii,jk}^A=0$ , $R_{ii}^A \approx 0$
3.39	W	A, C, E, G, H, I, K, L	$R_{6i}^{ph}=0.1$ , $R_{ij}^{ph}=1/300$ , $n_o=19$ , $R_{55,5i}^A = R_{5i,5j}^A = 9x10^{15}$	$R^{diffG}=1/30$ , $R_{5i}^{ph}=1/400$ , $R_i=1/800$ , $R_{ii,jk}^A=0$ , $R_{ii}^A \approx 0$

Pour les résultats concernant la modélisation des données expérimentales, il est très important de comprendre que l'accord avec les données est qualitatif. Le programme d'optimisation utilisé permet généralement de trouver une solution locale, donc les valeurs numériques obtenues ne sont pas uniques. Ceci n'est pas vraiment un problème car si on considère toutes les approximations qui sont faites, la détermination d'un minimum global ne serait pas forcément plus réaliste. Le modèle est seulement utilisé pour reproduire l'allure des courbes expérimentales, avec des paramètres plausibles.

### 3.5.2 Mécanismes de relaxation dominants

- *Transport des porteurs*

Les photo-porteurs sont en grande partie absorbés par la couche de GaAs de surface avant de diffuser vers les boîtes. Il est donc important d'étudier l'effet de la diffusion verticale des porteurs dans cette couche. Ensuite, les porteurs sont très probablement capturés de manière efficace dans la couche de mouillage, avant d'être capturés dans les boîtes. Cependant, à basse température (15 K), les résultats expérimentaux montrent que le temps de décroissance du signal de la couche de mouillage peut être relativement long. Il est donc aussi important de tenir compte de ce ralentissement du transport qui a été attribué à la présence de défauts d'interface ou d'une barrière de potentiel induite par le processus d'interdiffusion à l'interface InAs/GaAs (Figure 3.17).

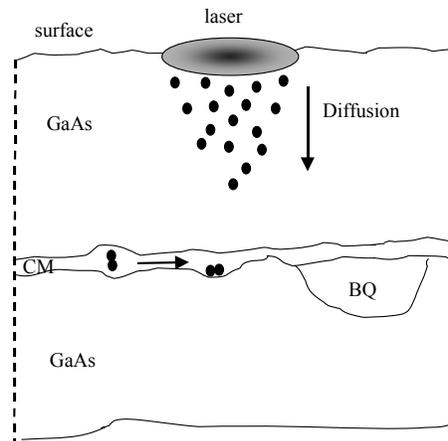


Figure 3.17: Schéma présentant des mécanismes de transport des porteurs dans des structures à boîtes quantiques

Pour les simulations, on considère le modèle de base le plus simple: on tient compte de la capture, de la relaxation interniveaux vers le niveau inférieur le plus proche et de la recombinaison des porteurs à tous les niveaux. La distribution initiale spatiale des porteurs est considérée homogène. Les valeurs des paramètres utilisés sont présentées dans la section 3.5.1.

Le nombre de porteurs moyen initial par boîte est fixé à 20, afin d'obtenir un degré de remplissage suffisamment important de tous les niveaux.

Les courbes désignées par les lettres  $s$ ,  $p$ ,  $d$ ,  $f$  et  $CM$  correspondent aux transitions des quatre niveaux confinés dans les boîtes et de la couche de mouillage ( $n=1$ ,  $n=2$ ,  $n=3$ ,  $n=4$ , et  $CM$ , respectivement).

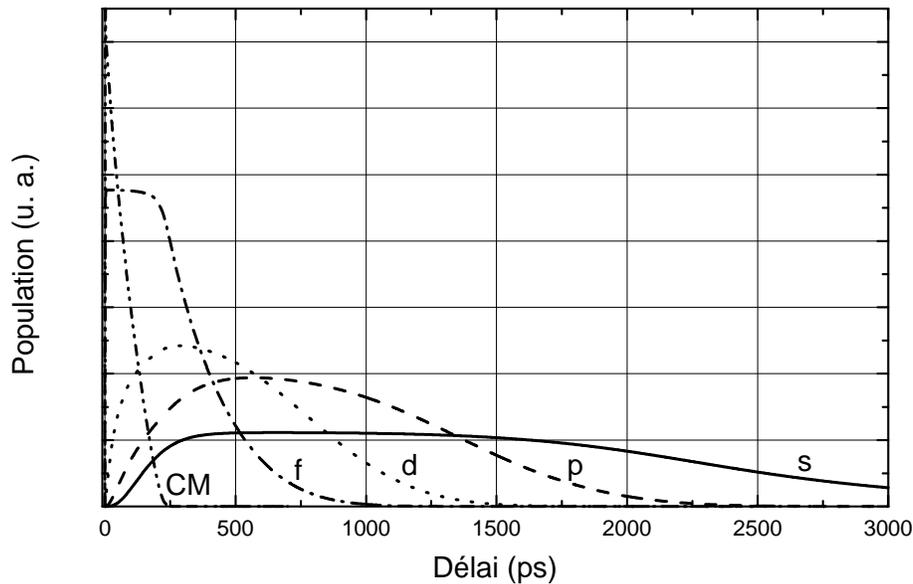


Figure 3.18: Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux ( $s$ ,  $p$ ,  $d$ ,  $f$  et  $CM$ ) du système. On considère un temps de transport dans le GaAs (diffusion) et l'InAs extrêmement rapide.

Initialement, tous les porteurs sont générés dans la couche barrière de GaAs. Comme la capture des porteurs par la couche de mouillage, puis par le niveau de plus haute énergie ( $f$ ) des boîtes est très rapide, le remplissage de ces niveaux est presque instantané (Figure 3.18). Le remplissage des niveaux de plus basse énergie est plus long car il dépend du temps de relaxation interniveaux. La population du niveau  $f$  commence à décroître seulement lorsque la couche de mouillage ne contient plus de porteurs, car la capture des porteurs dans les boîtes est extrêmement efficace.

Le fait d'augmenter le temps de diffusion des porteurs dans le GaAs (de surface) permet d'observer la montée du signal de la couche de mouillage (Figure 3.19). En effet, la diffusion des porteurs dans le GaAs retarde leur capture dans la couche de mouillage. La population du niveau  $f$  devient plus importante que celle de la couche de mouillage car le temps de capture  $CM-f$  est

beaucoup plus rapide que le temps de capture GaAs(surface)-CM (qui est limité par le temps de diffusion).

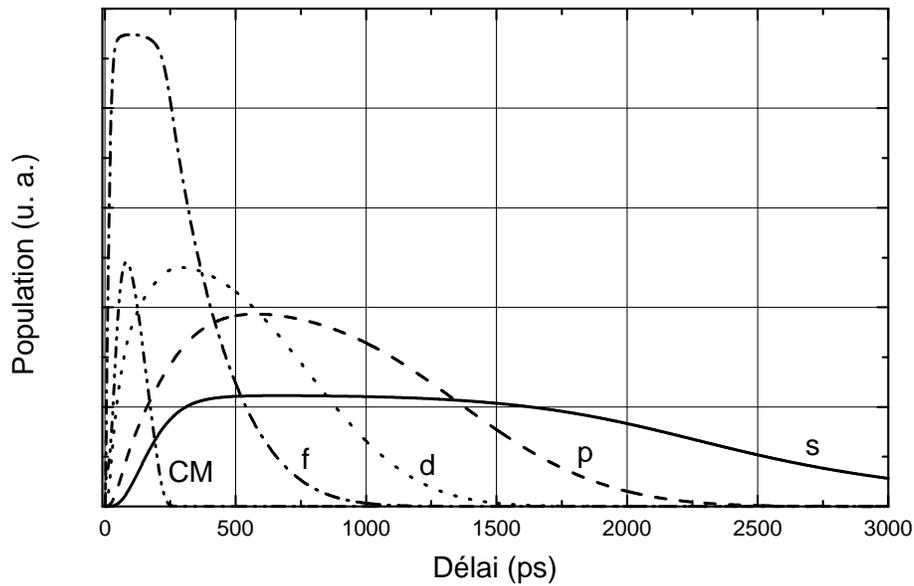


Figure 3.19: Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère un temps de transport de 40 ps dans le GaAs, et extrêmement rapide dans l'InAs.

De plus, si on tient compte du temps de transport des porteurs dans la couche de mouillage, cela augmente sensiblement les temps de montée et diminuent l'intensité de tous les niveaux confinés, mais surtout, cela augmente significativement l'intensité et le temps de décroissance du signal provenant de la couche de mouillage (Figure 3.20). Toutes ces observations peuvent être expliquées par le ralentissement significatif de la capture des porteurs de la couche de mouillage vers les boîtes.

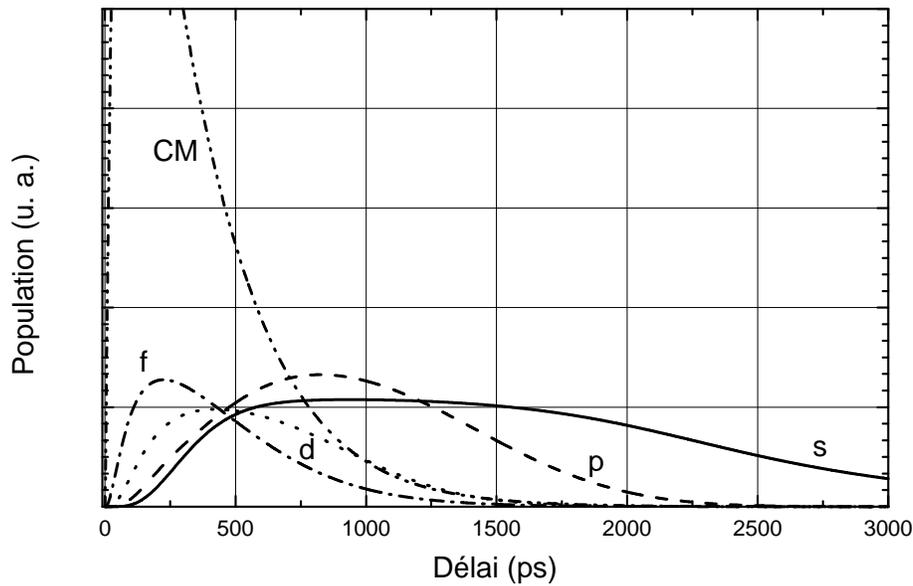


Figure 3.20: Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère un temps de transport dans le GaAs et l'InAs de 40 ps et 400 ps respectivement,  $n_0=20$  porteurs.

Le fait de tenir compte du temps de transport des porteurs dans les barrières permet de mieux reproduire certaines caractéristiques des données expérimentales: temps de montée fini du niveau de plus haute énergie et de la couche de mouillage, forte intensité et temps de décroissance relativement long du signal de la CM. En revanche, le fait que les temps de montée soient plus longs pour les niveaux de plus basse énergie ne correspond pas aux résultats expérimentaux.

- *Capture et relaxation par processus multiphononiques*

Il est tout à fait possible que la relaxation des porteurs ne suive pas un processus séquentiel en cascade, du niveau de plus haute énergie vers le niveau immédiatement inférieur. Ainsi, on peut imaginer que la capture des porteurs puisse se produire des états de barrière vers chacun des niveaux confinés dans les BQs simultanément. De plus, la relaxation interniveaux à partir d'un niveau excité peut faire intervenir non seulement le niveau immédiatement inférieur mais aussi vers tous les autres niveaux de moindre énergie.

Dans un premier temps, on considère que les porteurs sont capturés et relaxent vers le niveau inférieur seulement (Figure 3.21). Dans un second temps, les porteurs de la couche de mouillage sont capturés et relaxent vers tous les niveaux confinés simultanément (Figure 3.22). Et finalement, on considère la capture des porteurs du GaAs, et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure (Figure 3.24 et Figure 3.25).

Le nombre de porteurs moyen est augmenté à 40 de façon à observer un niveau de remplissage suffisant dans les boîtes, car le fait de tenir compte de temps de transport dans les barrières relativement longs diminue la population de porteurs dans les boîtes (voir figures précédentes).

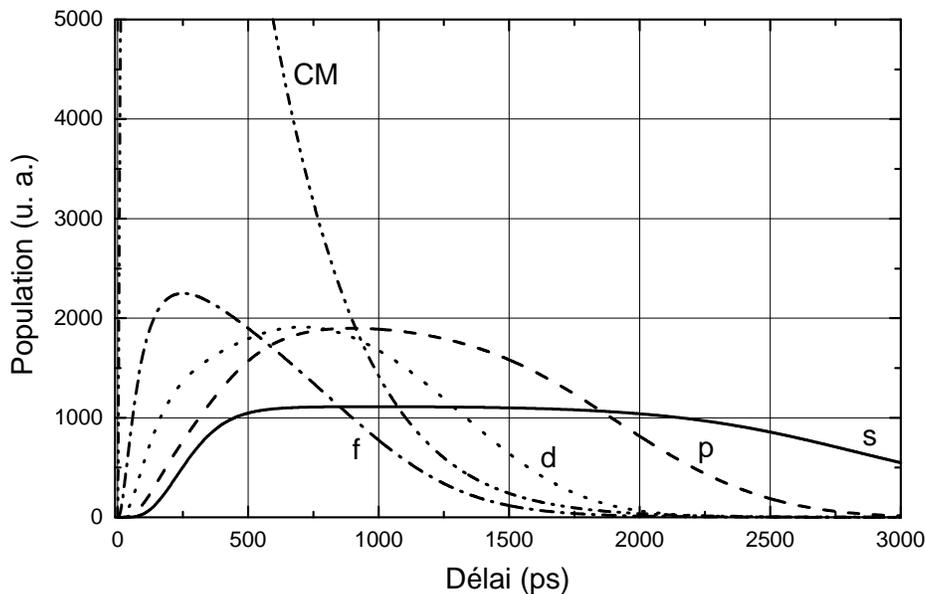


Figure 3.21: Évolution temporelle des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs et la relaxation seulement vers le niveau d'énergie immédiatement inférieur.

Le fait de tenir compte de la capture et de la relaxation des porteurs vers tous les niveaux confinés diminue sensiblement les temps de montée des niveaux de plus basse énergie, en particulier *s* et *p* (comparer la Figure 3.21 et la Figure 3.22). La capture des porteurs par tous les niveaux simultanément permet un remplissage très efficace des niveaux de plus basse énergie, car le temps de capture est beaucoup plus rapide que le temps de relaxation interniveaux. Le temps de montée devient donc plus court pour les niveaux de plus basse énergie, comme cela a été

observé expérimentalement. Cependant, le temps de montée du signal de la couche de mouillage, qui est seulement limité par le temps de diffusion des porteurs dans le GaAs, reste très rapide.

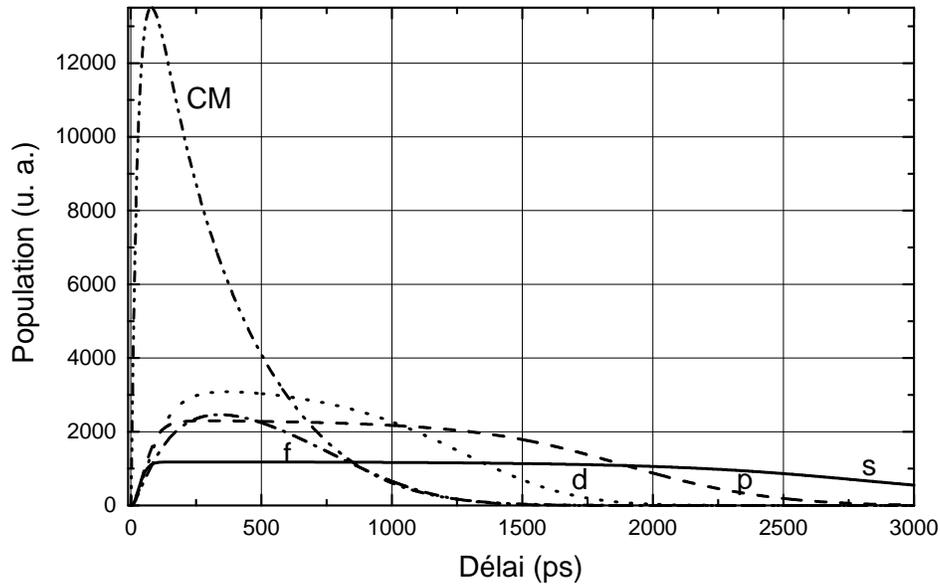


Figure 3.22: Évolution à long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs de la couche de mouillage et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.

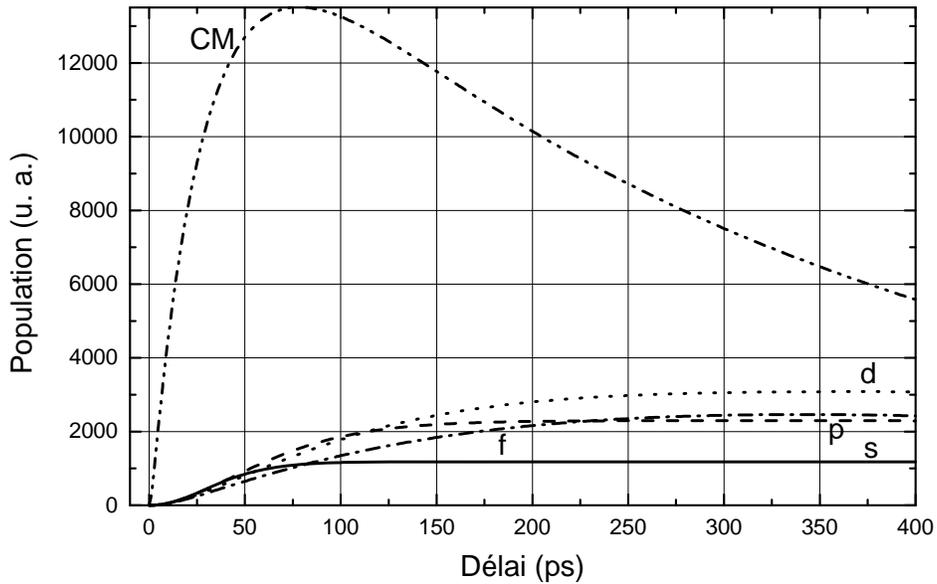


Figure 3.23: Évolution à court temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs de la couche de mouillage et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.

En revanche, si on considère la capture des porteurs du GaAs et leur relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure, alors les temps de montée de tous les niveaux deviennent encore plus courts (Figure 3.24), car la diffusion des porteurs n'est pas ralentie dans la couche de mouillage. Un faible nombre de porteurs peut se trouver dans les états de basse énergie à cause du blocage de Pauli, si bien que ces niveaux saturent plus rapidement que les niveaux à haute énergie.

La superposition des courbes de tous les niveaux à très court temps (Figure 3.25) est due au taux de capture identique pour tous les niveaux. Cette superposition des cinétiques a aussi été observée expérimentalement. Cependant le temps de montée correspondant au remplissage de la couche de mouillage est très long (plus long que le temps de montée du niveau  $f$ , contrairement aux observations expérimentales).

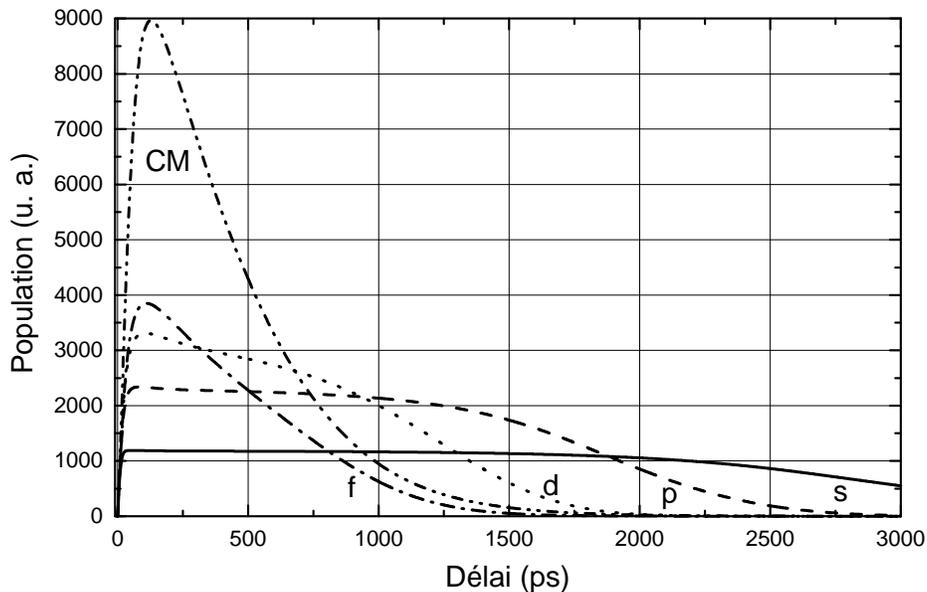


Figure 3.24: Évolution à long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs du GaAs et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.

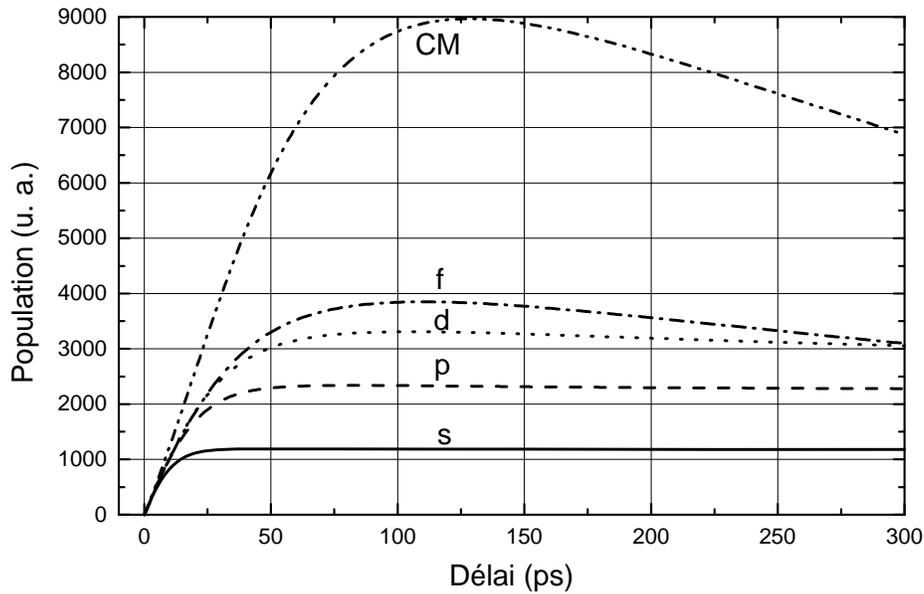


Figure 3.25: Évolution à court temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. Le modèle prend en compte la capture des porteurs du GaAs et la relaxation vers tous les niveaux d'énergie inférieure.

- *Mécanismes de relaxation de type Auger*

Les collisions entre particules peuvent influencer la relaxation des porteurs. Ainsi, on va considérer tour à tour des processus Auger qui se produisent pendant la capture, la relaxation interniveaux et la recombinaison (Figure 3.12). Ces processus peuvent faire intervenir des porteurs des barrières et/ou des porteurs confinés dans les boîtes.

La capture Auger correspond à un processus de capture d'un porteur (électron ou trou) par une BQ résultant de la collision de deux particules initialement dans des états des barrières. Si on considère seulement les collisions entre porteurs du GaAs (barrières), on n'observe aucun changement dans l'allure des cinétiques. En effet, le temps de capture multiphononique GaAs(barrières)-CM est déjà plus rapide que le temps de diffusion des porteurs dans le GaAs de surface, donc c'est le temps de diffusion—et non le temps de capture—qui limite le remplissage des boîtes.

En revanche, le résultat est très différent lorsqu'on considère la capture assistée par des processus Auger entre porteurs de la couche de mouillage (comparer la Figure 3.22 et la Figure 3.26). On observe un fort dépeuplement de la couche de mouillage au profit des états de plus haute énergie des boîtes, ainsi qu'une diminution significative des temps de montée de tous les niveaux confinés ( $s$ ,  $p$ ,  $d$  et  $f$ ). Ces observations peuvent être attribuées à l'efficacité accrue des processus de capture, ce qui favorise le remplissage des niveaux dans les boîtes.

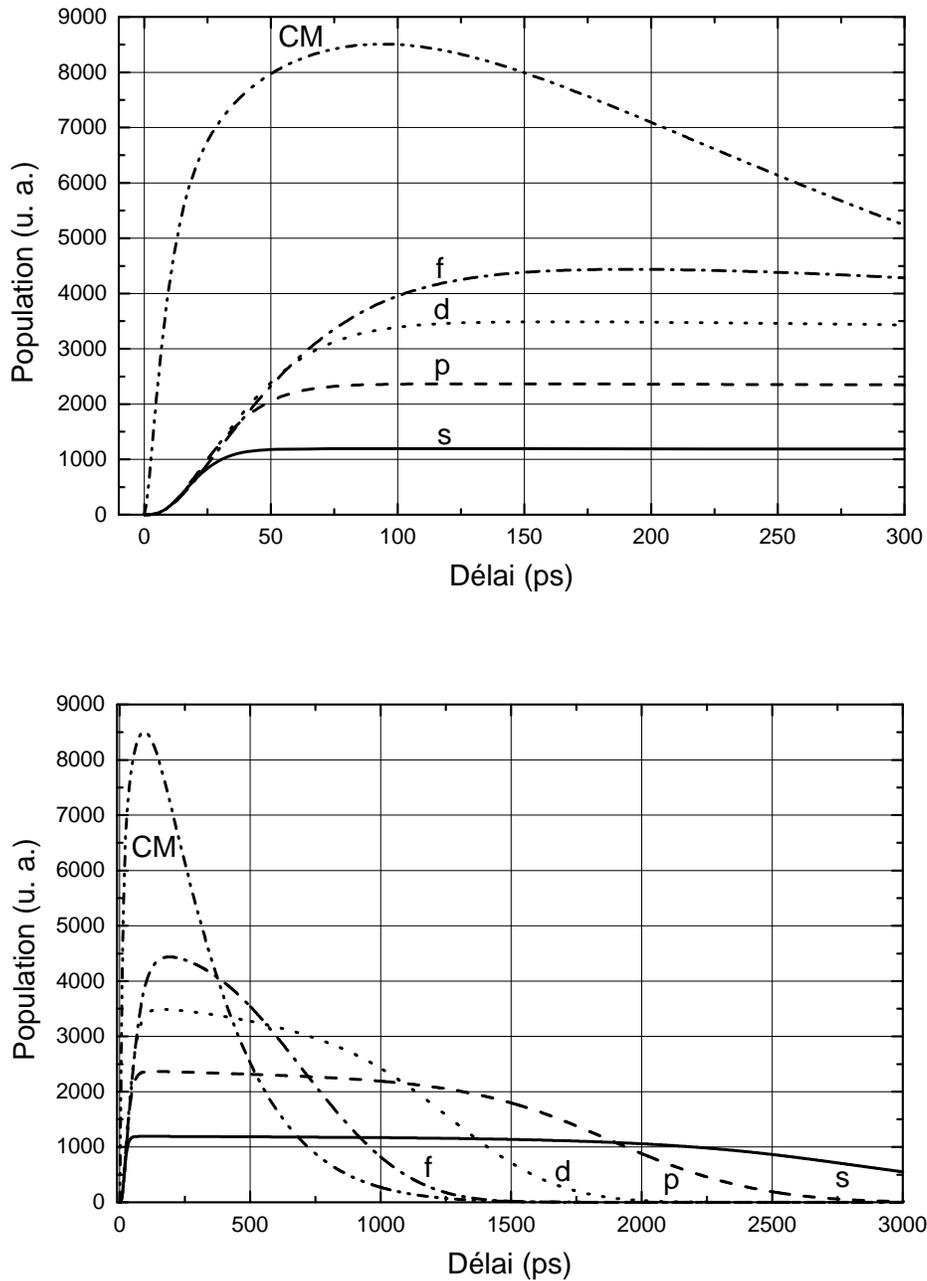


Figure 3.26: Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger intervenant durant la capture de la couche de mouillage vers chaque niveau confiné.

D'autre part, le temps de montée correspondant à la couche de mouillage est plus court que celui des niveaux confinés à haute énergie (niveaux  $d$  et  $f$ ), comme pour les données expérimentales. Les cinétiques obtenues en tenant compte de la capture par effet Auger de la couche de mouillage vers tous les niveaux confinés ressemblent davantage aux résultats de

photoluminescence que les cinétiques obtenues en considérant la capture du GaAs vers tous les niveaux des boîtes.

Nous avons ensuite étudié l'influence de la relaxation interniveaux via les processus Auger sur l'allure des cinétiques. Nous avons considéré deux mécanismes de relaxation: l'un fait intervenir un porteur de la couche de mouillage et un porteur confiné, l'autre fait intervenir deux porteurs confinés au même niveau (voir Figure 3.12 et Figure 3.13). Dans tous les cas, on considère la capture de la couche de mouillage par tous les niveaux du système, ainsi que la présence de mécanismes de capture Auger.

Le fait de tenir compte du processus Auger de relaxation par l'interaction d'un porteur 0D et un porteur 2D modifie la dynamique de remplissage des boîtes (Figure 3.27). Le peuplement des niveaux de plus basse énergie devient plus rapide (niveaux  $s$  et  $p$ ).

Cet effet est probablement dû au fait que le niveau de plus basse énergie correspond à l'état final (suite à la relaxation interniveaux) de tous les porteurs situés à des niveaux d'énergie supérieure. Par conséquent, ces processus Auger facilitent le remplissage des niveaux de plus basse énergie. Le niveau de plus haute énergie (niveau  $f$ ) prend plus de temps à se remplir à cause de la perte systématique de porteurs par ces processus Auger.

Si on tient compte des interactions entre porteurs de même niveau confiné, lors de la relaxation interniveaux, l'effet observé précédemment est moins marqué (Figure 3.28). La population des niveaux de plus basse énergie augmente toujours plus rapidement qu'en l'absence de ces processus (Figure 3.26), mais de façon moins significative que l'augmentation due aux processus de relaxation Auger faisant intervenir des porteurs de la couche de mouillage.

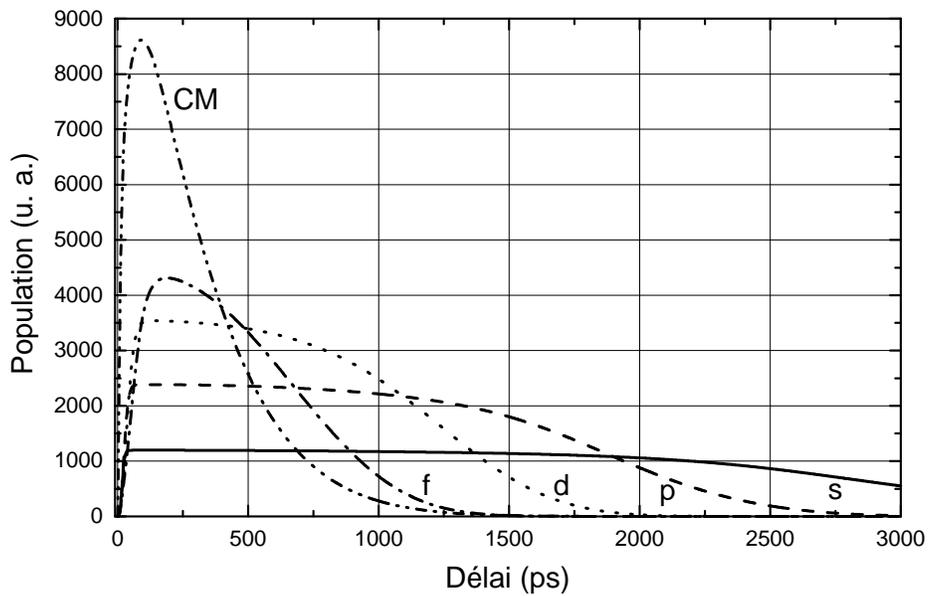
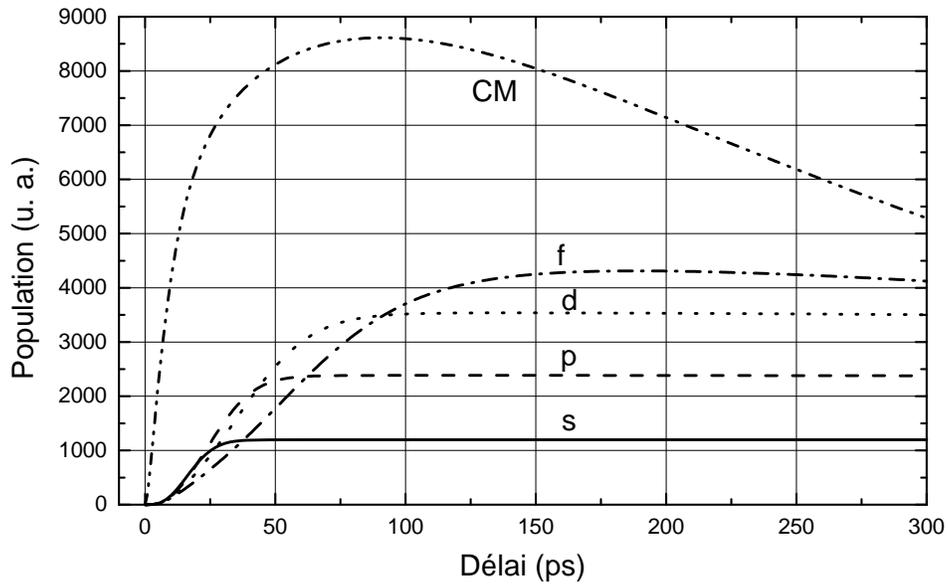


Figure 3.27: Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger durant la capture et la relaxation interniveaux par l'interaction de porteurs 0-D et 2-D.

En revanche, le dépeuplement de la couche de mouillage est plus lent, car ces processus Auger favorisent la fuite des porteurs vers des états à plus haute énergie, hors des boîtes (Figure 3.13). L'efficacité de ce mécanisme de relaxation faisant intervenir des collisions entre porteurs

de même niveau est moins importante que le mécanisme faisant intervenir des porteurs de la couche de mouillage, car le nombre de porteurs dans les niveaux confinés est inférieur au nombre de porteurs dans la CM.

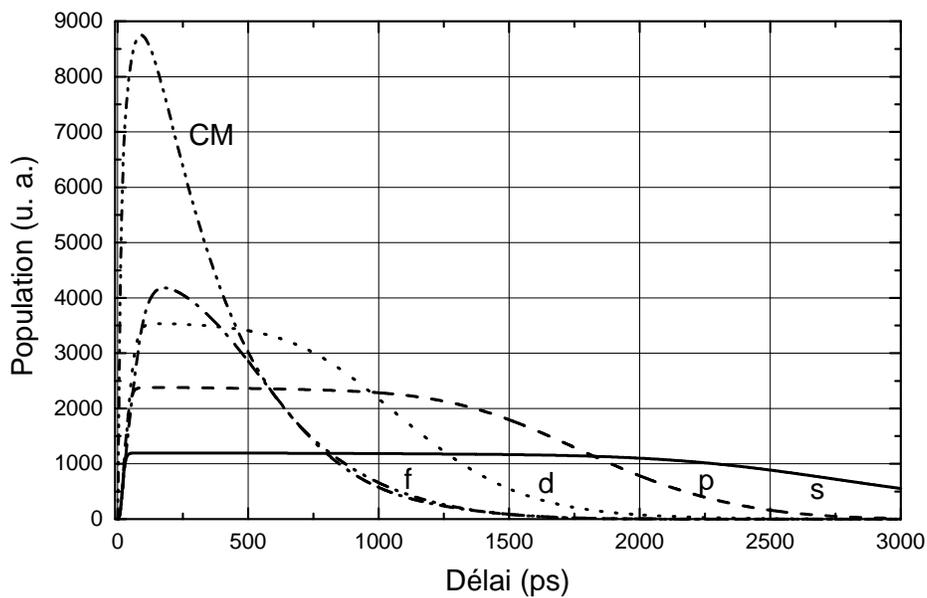
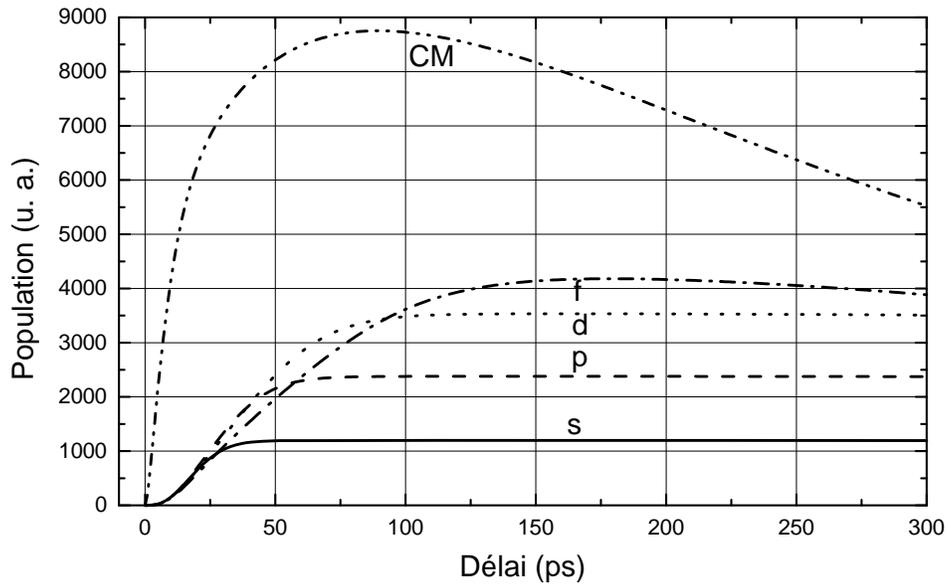


Figure 3.28: Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger durant la capture et la relaxation interniveaux par l'interaction de porteurs confinés au même niveau.

Les mécanismes de relaxation interniveaux de type Auger ne modifient pas de façon très significative la dynamique de la relaxation des porteurs dans les boîtes. Les résultats expérimentaux suggèrent un remplissage simultané de tous les niveaux (courbes superposées à court temps), donc ces mécanismes de type Auger, qui tendent à diminuer le temps de remplissage des niveaux de basse énergie et augmenter celui des niveaux à haute énergie, ne semblent pas jouer de rôle significatif.

Et puis, finalement, des processus de recombinaison de type Auger peuvent aussi se produire et influencer les populations des différents niveaux du système (voir Figure 3.12). On va considérer la présence de ce mécanisme à chaque niveau du système, dans un modèle tenant compte de la capture par processus multi-phononiques et Auger, et de la relaxation des porteurs de la couche de mouillage vers tous les niveaux confinés.

Les simulations effectuées en tenant compte des processus de recombinaison Auger montrent que les temps de montée des niveaux à haute énergie ( $d, f, CM$ ) semblent devenir plus rapides (Figure 3.29). Ce résultat est probablement dû au fait que ces états n'ont pas le temps de saturer: à partir d'un certain taux d'occupation, la population commence rapidement à décroître, à cause de l'efficacité de la recombinaison Auger, ce qui empêche le remplissage complet de ces niveaux. En effet, la population maximale des niveaux à haute énergie est plus faible qu'en l'absence de ces mécanismes (Figure 3.26).

De plus, les temps de décroissance de tous les niveaux deviennent beaucoup plus courts, car ces mécanismes Auger augmentent l'efficacité de la recombinaison. Les plateaux de saturation disparaissent presque complètement, même pour le niveau fondamental, grâce à l'efficacité de ce canal de recombinaison à chaque niveau.

Les mécanismes de type Auger (intervenant lors de la capture, de la relaxation interniveaux ou de la recombinaison) sont des processus non-radiatifs. Autrement dit, leur rôle est seulement de redistribuer les porteurs dans les différents niveaux énergie du système. La capture de type Auger permet d'augmenter la population des niveaux 0D, tandis que la relaxation interniveaux et la recombinaison via des mécanismes Auger diminue cette population au profit des niveaux de barrière.

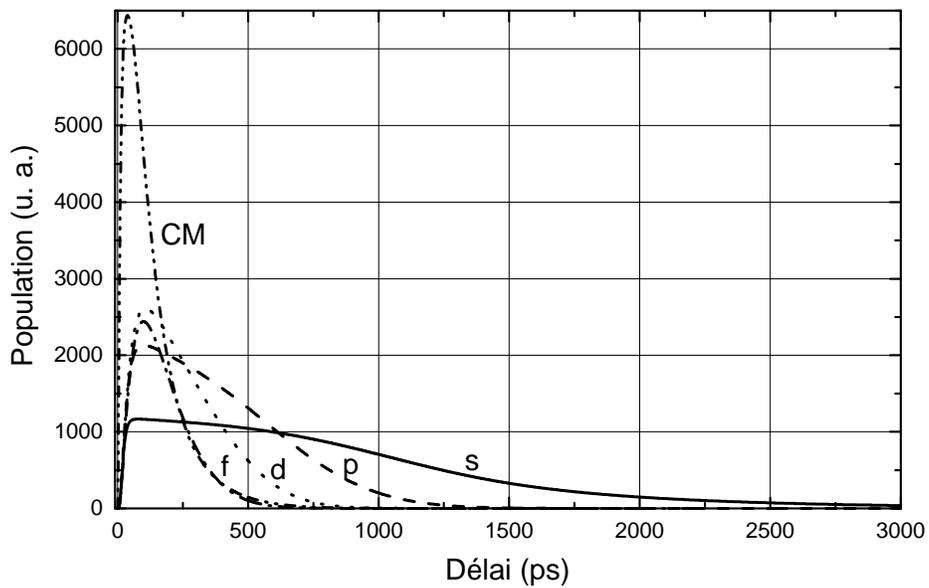
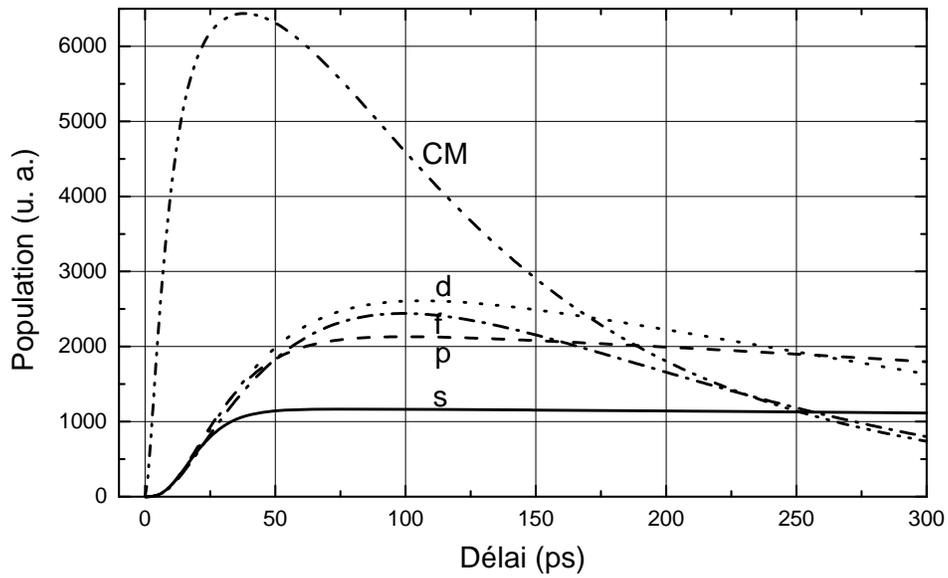


Figure 3.29: Évolution à court temps et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système. On considère les processus Auger durant la capture et la recombinaison.

Les simulations prenant en compte les différents mécanismes de type Auger susceptibles d'intervenir lors de la relaxation des porteurs montrent que pour reproduire les données expérimentales, il est indispensable de considérer la présence de ces processus lors de la capture des porteurs de la couche de mouillage (car ils diminuent les temps de montée de tous les

niveaux). En revanche, les mécanismes Auger ne semblent pas jouer de rôle aussi important lors de la relaxation interniveaux (ils augmentent la disparité entre les temps de montée des différents niveaux: ils diminuent fortement les temps de montée des niveaux de plus basse énergie aux dépens de ceux à plus haute énergie), ou de la recombinaison (ils provoqueraient la disparition des plateaux de saturation des niveaux de basse énergie).

### ***3.5.3 Distribution initiale des porteurs***

- *Type de distribution initiale des porteurs*

Puisque, à priori, le nombre de porteurs varie d'une boîte quantique à l'autre, il est intéressant de déterminer l'influence de l'homogénéité de la répartition initiale des porteurs dans les BQs. Pour cela, on compare la relaxation des porteurs dans le système de BQs dans quatre cas différents: le nombre de porteurs est identique dans chaque BQ, le nombre de porteurs par boîte varie selon une distribution de Poisson, le nombre de porteurs varie selon une distribution de type Gaussienne du nombre de BQ, et le nombre de porteurs suit une distribution exponentielle, comme cela a été décrit au début du chapitre.

Dans les quatre cas, on considère le même modèle de base et les mêmes paramètres. Pour le modèle de distribution gaussienne, la distribution des porteurs est très large (largeur à mi-hauteur de la gaussienne:  $n_o$ , soit 40). Pour la distribution exponentielle, le coefficient d'absorption  $\alpha$  est fixé à  $0.004 \text{ nm}^{-1}$  (ou  $4.10^4 \text{ cm}^{-1}$ ).

D'abord il faut noter que dans le cas d'une distribution de Poisson, on n'observe pas de changement radical de la relaxation des porteurs. L'évolution des populations est en fait peu différente de celle observée lorsque la distribution est homogène. Cependant, quelques observations peuvent être mentionnées en comparant la Figure 3.26 et la Figure 3.30: le nombre de porteurs maximal augmente légèrement dans la couche de mouillage, et diminue dans le niveau  $f$ . Cet effet est similaire à celui qui serait observé suite à une réduction du taux de capture. La variation relative de la population des niveaux à haute énergie devient plus significative lorsque la distribution est très inhomogène (Figure 3.31).

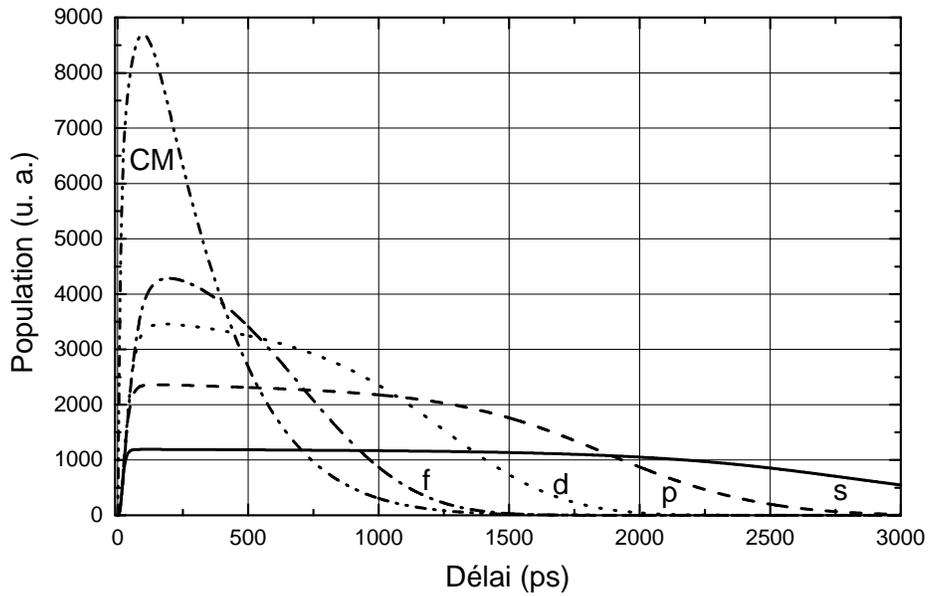
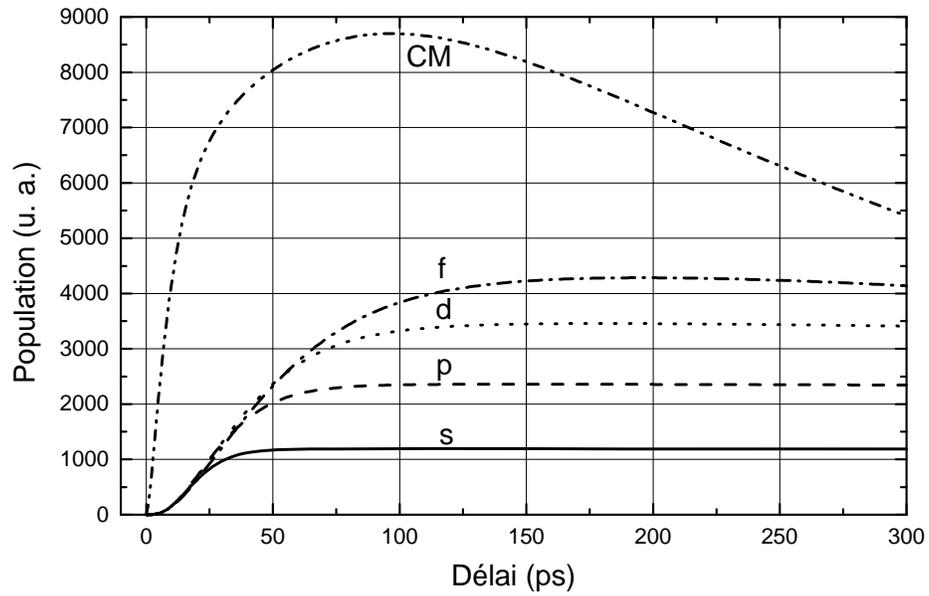


Figure 3.30: Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système, pour une distribution initiale de Poisson des porteurs.

Lorsqu'on considère une distribution Gaussienne du nombre de porteurs, on peut noter les mêmes tendances que précédemment. Lorsqu'on augmente l'inhomogénéité de la distribution de porteurs, le temps de remplissage des niveaux augmente légèrement (Figure 3.31). Puis, le dépeuplement de tous les niveaux commence un peu plus rapidement (plateaux de saturation plus

courts), mais il prend plus de temps (temps de décroissance plus long). L'effet le plus significatif observé est la réduction de la population des niveaux à haute énergie (en particulier les niveaux  $d$  et  $f$ ), associée à une augmentation de la population de la couche de mouillage.

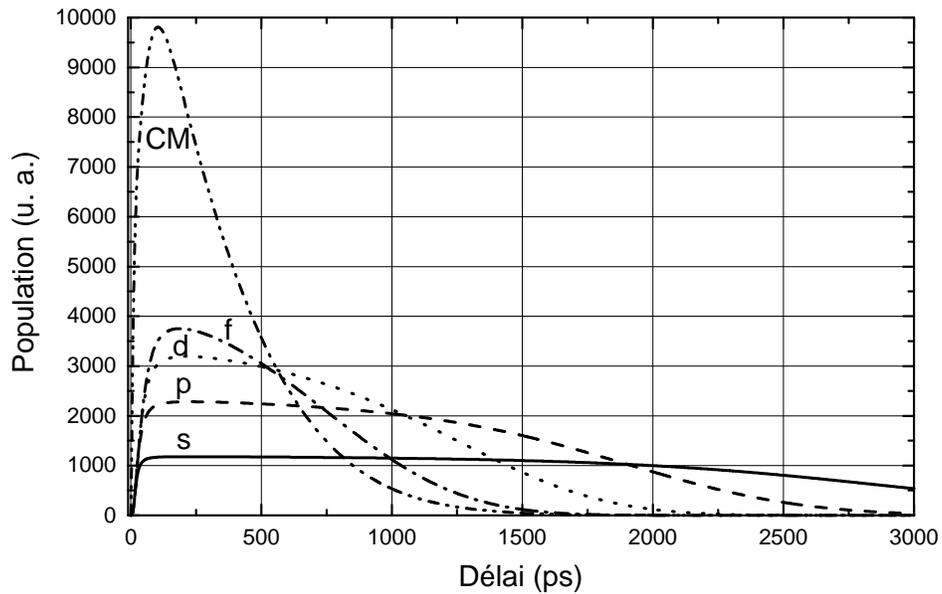
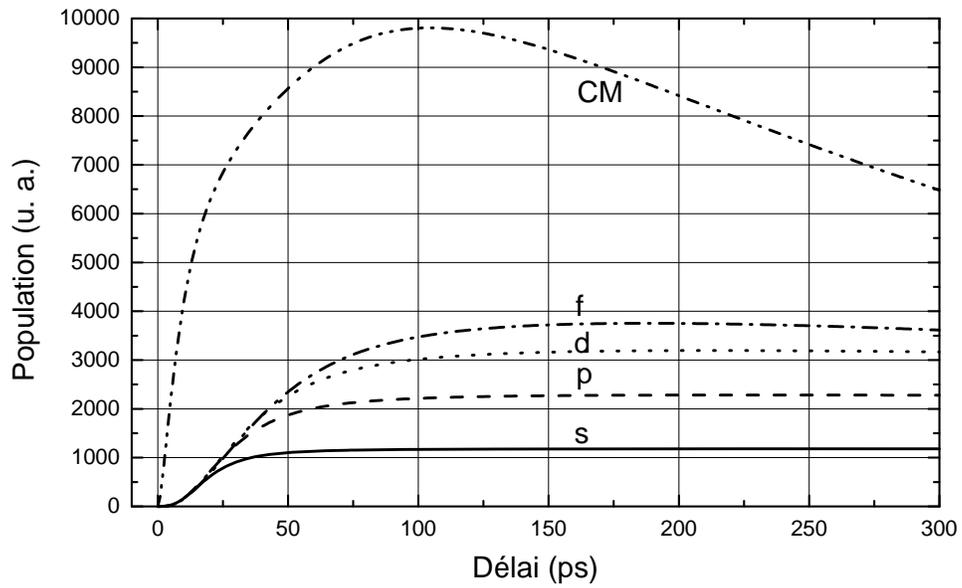


Figure 3.31: Évolution à court temps et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système, pour une distribution initiale Gaussienne des porteurs dans les BQs de largeur  $FWHM = n_o$ .

Dans les boîtes contenant moins de porteurs que la moyenne, la population des niveaux à haute énergie commence rapidement à décroître à cause du faible remplissage de ces boîtes, c'est la raison pour laquelle les plateaux de saturation deviennent plus courts. En revanche, dans les boîtes contenant plus de porteurs que la moyenne, le remplissage puis le dépeuplement des niveaux prend plus de temps. L'excès de porteurs dans un certain nombre de boîtes peut donc expliquer l'augmentation des temps de montée et de décroissance des différents niveaux. La réduction de la population des niveaux  $d$  et  $f$  peut être attribuée à l'effet combiné de l'augmentation du temps de remplissage et de la réduction du temps de saturation (longueur des plateaux): la population de ces niveaux commence à décroître avant d'avoir atteint l'occupation maximale. De plus, la population globale des niveaux à haute énergie qui sont saturés de porteurs lorsque la distribution est homogène, diminue lorsqu'on considère une distribution inhomogène, car un plus petit nombre de boîtes contribuent alors à la population globale de ces niveaux.

Le remplissage de la couche de mouillage commence beaucoup plus tôt que celui des états 0D, si bien que ce niveau a davantage le temps de se remplir. La population de la couche de mouillage augmente avec l'inhomogénéité de la distribution car le nombre de porteurs à haute énergie augmente en conséquence (en fait, c'est le nombre de boîtes ayant un grand nombre de porteurs qui augmente). Le dépeuplement de la couche de mouillage devient sensiblement plus lent à cause des effets de remplissage dans les boîtes ayant un excès de porteurs.

Dans le cas de la distribution exponentielle, on observe les mêmes effets que dans le cas de la distribution gaussienne, mais ils sont beaucoup plus marqués (Figure 3.32).

- La population de tous les niveaux est fortement réduite (surtout celle des niveaux à haute énergie). En effet, pour un échantillon comprenant plusieurs dizaines de couches de boîtes superposées, le nombre de porteurs dans les couches profondes est sensiblement plus faible que dans les couches proches de la surface. Donc, lorsque la distribution est large, le nombre de porteurs par boîte diminue, d'où le plus faible remplissage observé. L'inhomogénéité de la distribution et le taux de remplissage initial des boîtes varient selon la valeur du coefficient d'absorption.
- Le temps de remplissage des niveaux de plus haute énergie semble devenir plus court que pour les niveaux de basse énergie. Ceci est probablement dû à la plus grande population de

boîtes contenant beaucoup de porteurs. L'accélération du dépeuplement de tous les niveaux est probablement dû au plus faible remplissage des boîtes.

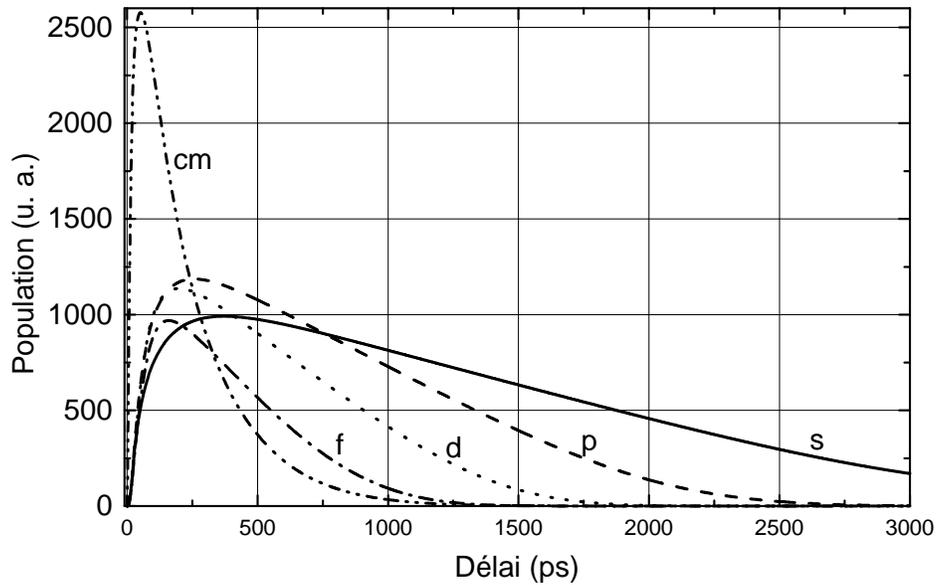
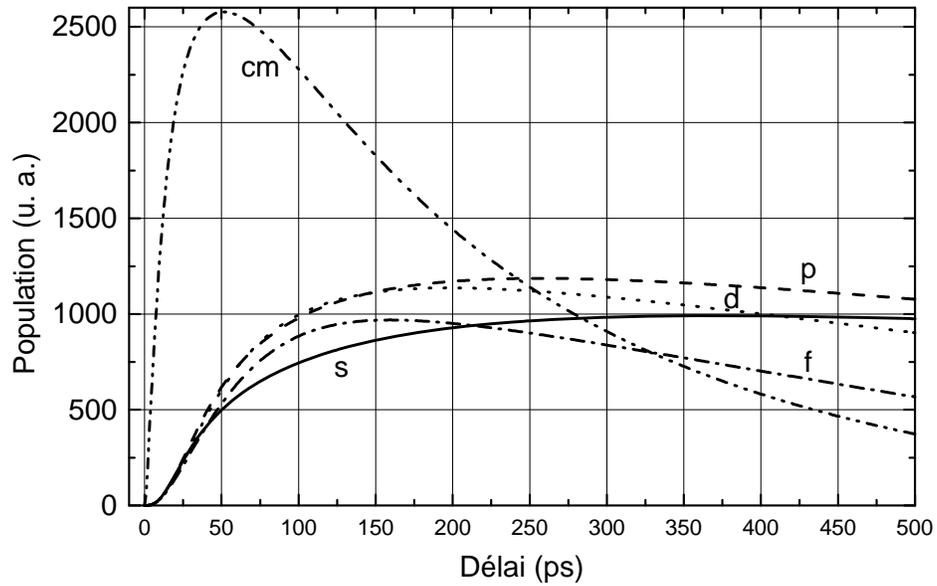


Figure 3.32: Évolution à court et long temps des populations de porteurs dans tous les niveaux du système, pour une distribution exponentielle des porteurs dans les BQs (coefficient d'absorption  $\alpha = 0.004 \text{ nm}^{-1}$ ).

Le fait de tenir compte d'une distribution initiale inhomogène des porteurs dans les boîtes modifie donc la relaxation des porteurs, mais de façon assez similaire à d'autres effets (remplissage des niveaux, taux de capture...). On n'observe pas de comportement caractéristique à cet effet. D'autre part, le fait de tenir compte d'un modèle de base plus ou moins sophistiqué ne modifie pas les conclusions générales tirées de ces simulations.

### ***3.5.4 Modélisation des données expérimentales***

La modélisation des cinétiques obtenues expérimentalement est indispensable pour vérifier l'adéquation de notre modèle. Pour reproduire les données expérimentales, on utilise, dans un premier temps, le modèle de distribution initiale homogène des porteurs dans les boîtes. Ce modèle tient compte du transport dans le GaAs et dans la couche de mouillage, de la capture (du GaAs et de la CM) et de la relaxation multiphononiques vers tous les niveaux confinés, ainsi que de la capture de la couche de mouillage, de la relaxation interniveaux, et de la recombinaison par mécanismes de type Auger.

Les paramètres variables sont: le nombre moyen de porteurs par boîte  $n_0$ , le temps de capture multiphononique du GaAs, le temps de relaxation interniveaux multiphononique, les coefficients de capture et de relaxation Auger, et les amplitudes des différents niveaux. Les valeurs de ces paramètres sont optimisées de façon à minimiser l'écart entre la courbe calculée et la courbe expérimentale (détermination du  $\chi^2$ ), pour chaque niveau confiné. La qualité du lissage est ensuite vérifiée visuellement.

Les valeurs obtenues ne sont pas uniques, car elles correspondent seulement à un minimum de la fonction  $\chi^2$ , qui dépend aussi des paramètres fixés initialement. Les valeurs d'amplitude de chaque niveau ne sont pas fixées, mais sont optimisées par le programme de modélisation pour reproduire au mieux les données expérimentales. En effet, ces valeurs ne sont pas connues, car trop de variables interviennent dont la variation de l'efficacité du dispositif de conversion des fréquences vers le haut en fonction de l'énergie et l'existence d'états à multiparticules qui pourraient modifier l'intensité relative d'un niveau par rapport aux autres.

Le modèle de distribution homogène a été optimisé de façon à reproduire les données expérimentales obtenues à une puissance d'excitation de 20 W/cm<sup>2</sup> et une température de 20 K.

Les résultats de l'optimisation suggèrent que le nombre de porteurs moyen est de 30, le temps de capture de  $8 \times 10^{-3}$  ps, le temps de relaxation interniveaux de 300 ps, et le taux Auger pour la capture de la couche de mouillage et la relaxation interniveaux de  $2 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$  (Figure 3.33, Figure 3.34). Les résultats indiquent que les processus de recombinaison Auger ne jouent pas de rôle significatif (valeur déterminée très proche de zéro).

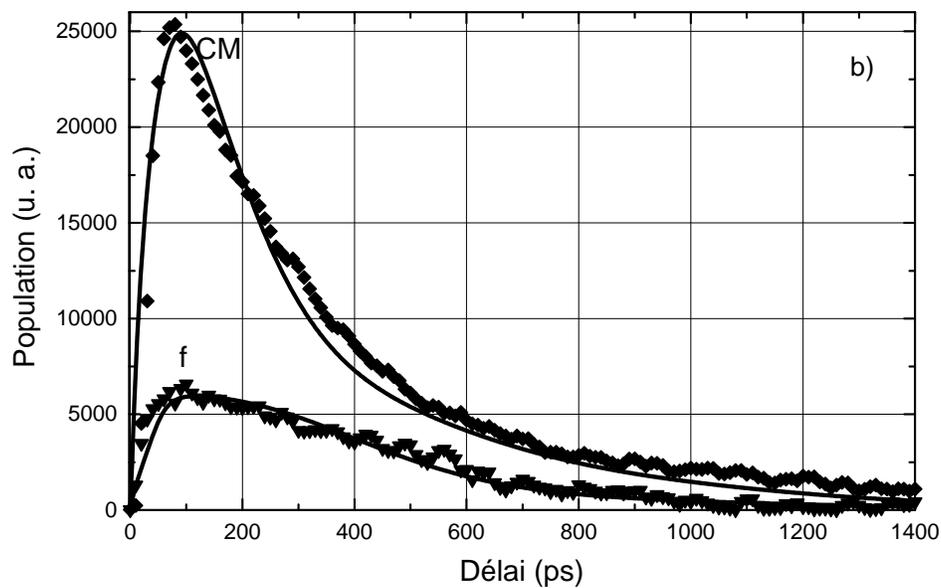
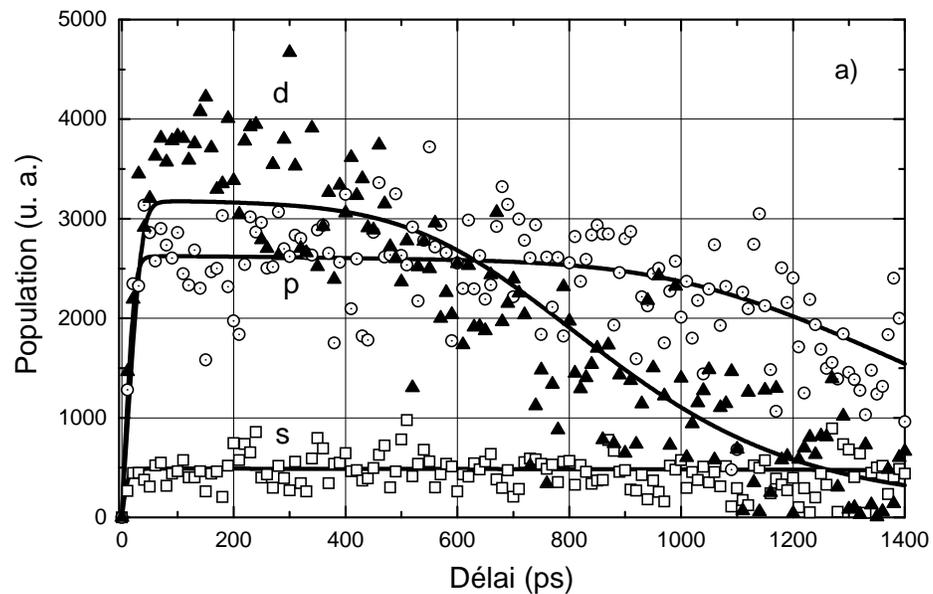


Figure 3.33: Comparaison entre les données expérimentales à  $20 \text{ W/cm}^2$  (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène (ligne continue). Les figures montrent l'évolution à long temps des trois premiers niveaux,  $s$ ,  $p$  et  $d$  en (a), et des niveaux  $f$  et  $CM$  en (b).

Le modèle utilisé permet donc de bien reproduire les cinétiques à long temps pour les niveaux des boîtes (niveaux  $s$ ,  $p$ ,  $d$  et  $f$ ). En revanche, la décroissance du signal de PL de la couche de mouillage est un peu différente de celle déterminée par le modèle.

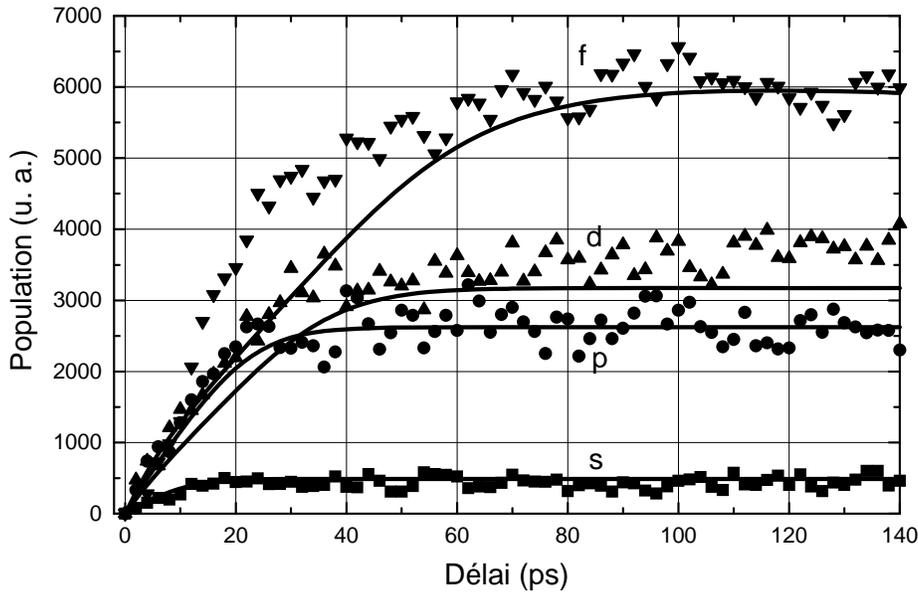
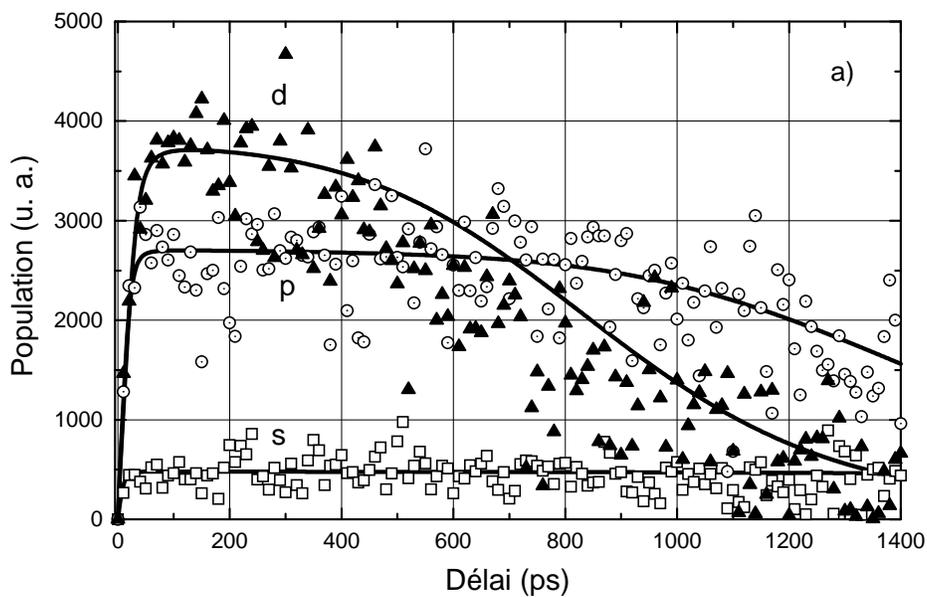


Figure 3.34: Comparaison entre les données expérimentales à  $20 \text{ W/cm}^2$  (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène (ligne continue). Évolution à court temps des quatre niveaux confinés dans les boîtes:  $s$ ,  $p$ ,  $d$  et  $f$ .

Dans la Figure 3.34, il semble se produire une double montée du signal de PL pour le niveau  $f$  (données expérimentales). Cet effet peut être dû à des réflexions sur les faces de l'échantillon et à la ré-absorption par la couche de mouillage.

Les temps de montée des niveaux sont relativement bien reproduits, en particulier pour les niveaux de plus basse énergie. Mais ils semblent un peu plus courts que les données expérimentales des niveaux  $d$  et  $f$ . Le modèle de distribution homogène permet donc de simuler l'évolution de la population des niveaux 0D de façon correcte mais pas parfaite (les temps de montée sont plus ou moins bien reproduits).

Maintenant, si on utilise les mêmes équations et les mêmes valeurs des paramètres que précédemment, en tenant compte cette fois d'une distribution initiale inhomogène du nombre de porteurs dans les boîtes, les courbes de la simulation correspondent mieux aux données expérimentales (Figure 3.35). Dans ce cas, on considère une distribution gaussienne, de largeur  $FWHM = 0.5 \text{ no}$ . Seuls les paramètres d'amplitude des niveaux sont ajustés. Les temps de montée et de décroissance, en particulier pour les niveaux de plus haute énergie, ressemblent un peu mieux aux données (Figure 3.35 et Figure 3.36), mais les modifications ne sont pas très importantes.



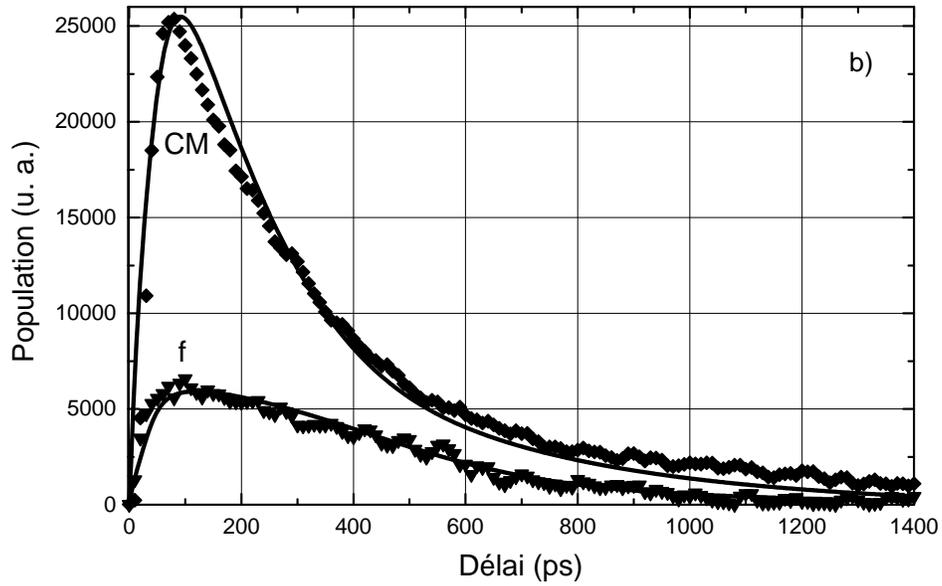


Figure 3.35: Comparaison à long temps entre les données expérimentales à  $20 \text{ W/cm}^2$  (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution gaussienne (ligne continue). Les figures montrent l'évolution des trois premiers niveaux,  $s$ ,  $p$  et  $d$  en (a), et des niveaux  $f$  et  $CM$  en (b). La largeur de la distribution est  $FWHM = 0.5 n_o$ .

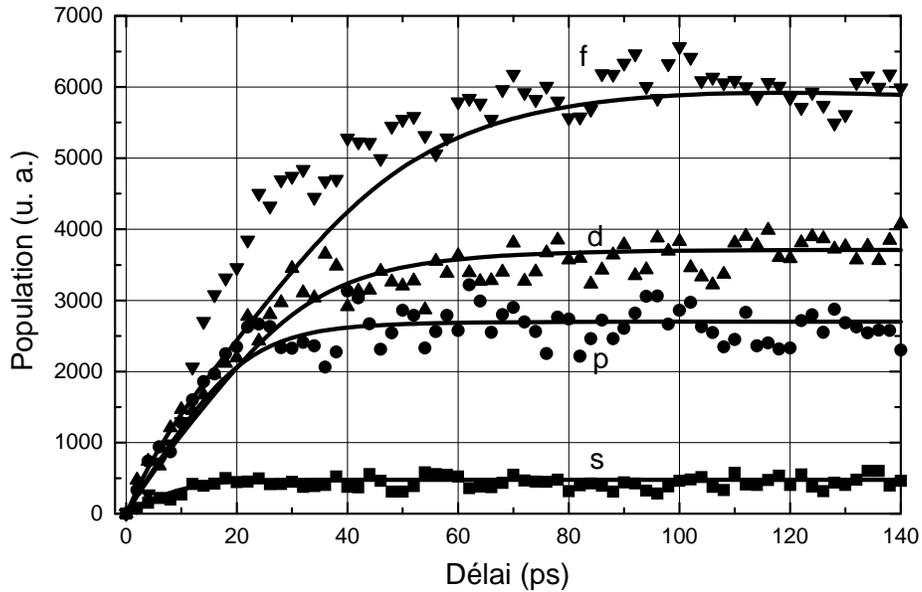
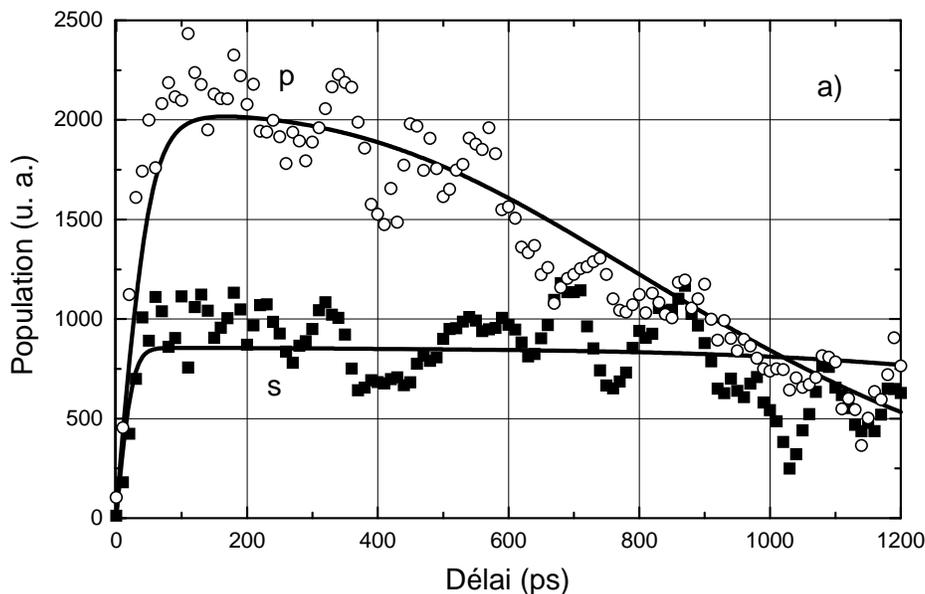


Figure 3.36: Comparaison à court temps entre les données expérimentales à  $20 \text{ W/cm}^2$  (symboles) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution gaussienne (ligne continue). Évolution des quatre niveaux confinés dans les boîtes:  $s$ ,  $p$ ,  $d$  et  $f$ . La largeur de la distribution est  $FWHM = 0.5 n_o$ .

Afin de déterminer les limites d'utilisation de ce modèle, nous avons aussi tenté de reproduire un autre jeu de cinétiques expérimentales obtenues à basse température (20 K) et à basse densité d'excitation ( $4 \text{ W/cm}^2$ ). Le modèle utilisé est le même que précédemment, les paramètres fixés sont identiques. Les amplitudes des différents niveaux, et le nombre de porteurs moyen par boîte ont été optimisés par minimisation de la valeur du  $\chi^2$ .

Les résultats de modélisation évaluent la population initiale moyenne à 14 porteurs par boîte. Cette valeur est assez élevée car on pourrait s'attendre à ce que le nombre de porteurs moyen soit proportionnel à la densité d'excitation, mais il faut considérer les incertitudes de mesure expérimentales, et surtout le fait que ce modèle détermine une solution locale. Le taux de capture et de relaxation Auger est  $3 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Les résultats sont présentés à la Figure 3.37. Les temps de montée et de décroissance sont bien reproduits pour les trois niveaux 0D ( $s$ ,  $p$  et  $d$ ). En revanche, les temps de montée et de décroissance de la courbe simulée associée à la couche de mouillage sont nettement plus courts que ceux observés expérimentalement.

À noter que les oscillations qui semblent apparaître dans les données expérimentales ne sont pas réelles, mais sont liées au moyennage des données.



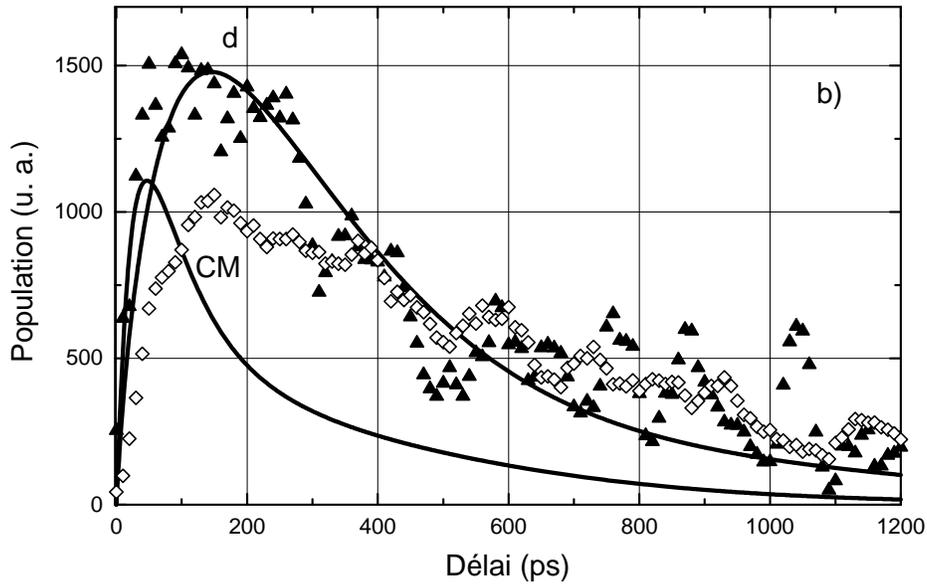
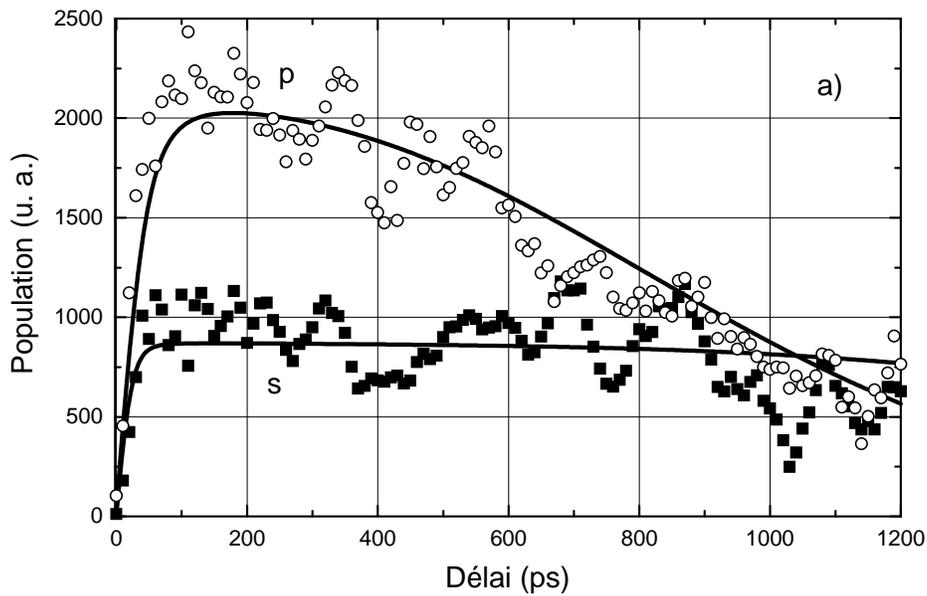


Figure 3.37: Comparaison entre les données expérimentales à basse excitation ( $4 \text{ W/cm}^2$ ) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène. Les figures montrent l'évolution des deux premiers niveaux (a), ainsi que l'évolution du niveau  $d$  et celui de la couche de mouillage (b).

Les résultats des simulations obtenus avec le modèle de distribution gaussienne des porteurs ont aussi été comparés aux cinétiques expérimentales obtenues à faible puissance d'excitation, avec les mêmes paramètres que précédemment. Seules les amplitudes des différents niveaux ont été ajustées. Les résultats sont présentés à la Figure 3.38.



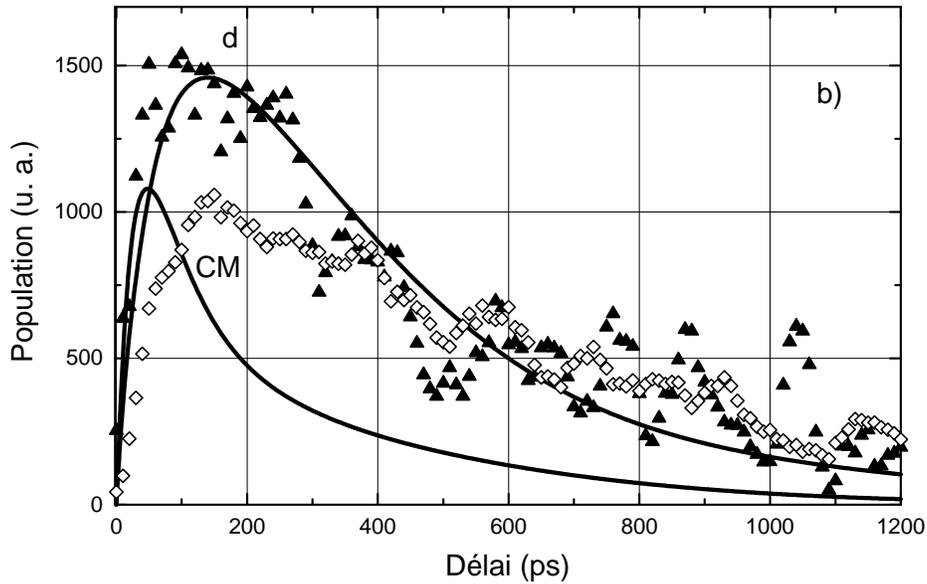


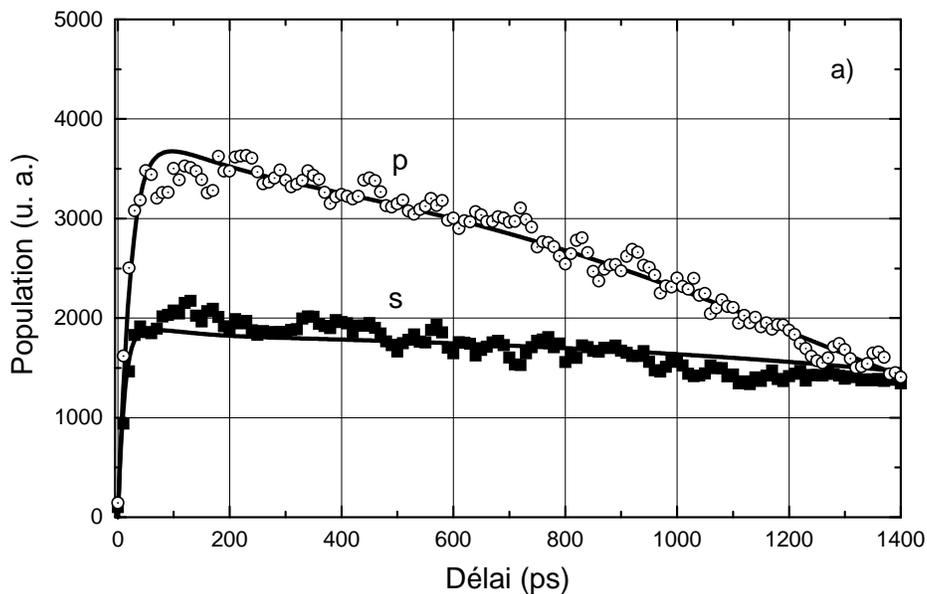
Figure 3.38: Comparaison entre les données expérimentales à basse excitation ( $4 \text{ W/cm}^2$ ) et les simulations obtenues avec le modèle de distribution inhomogène (gaussienne). La largeur de la gaussienne est  $FWHM=0.5 n_0$ . Les figures montrent l'évolution des deux premiers niveaux (a), ainsi que l'évolution des niveaux *d* et de la couche de mouillage (b).

Les résultats sont très semblables à ceux obtenus en considérant une distribution homogène des porteurs. Donc la distribution initiale des porteurs ne semble pas affecter de façon significative la dynamique de relaxation des porteurs dans les boîtes à faible densité d'excitation.

La cinétique correspondant à la couche de mouillage est mal reproduite par le modèle à basse excitation. Comme mentionné dans le chapitre précédent, il est possible que le signal de PL associé à la CM observé soit dû à la recombinaison de porteurs dans des régions de la CM éloignées des boîtes, où la localisation des porteurs serait très importante. Cela n'empêcherait pas une capture relativement efficace des porteurs de la CM vers les états 0D dans les régions proches des boîtes. Il est aussi possible que les mécanismes contribuant au remplissage de la couche de mouillage soient différents de ceux considérés dans notre modèle. Les mécanismes que nous avons pris en compte sont: un long temps de transport dans la CM probablement dû à la présence d'une barrière de potentiel, la saturation des niveaux inférieurs, l'émission thermique prise en compte dans le taux de capture multiphononique, et les processus Auger de relaxation interniveaux entre porteurs de même niveau.

De plus, nous avons aussi tenté de reproduire un autre jeu de cinétiques expérimentales obtenu à plus haute température (90 K) et plus forte excitation ( $20 \text{ W/cm}^2$ ). Le modèle utilisé est le même que précédemment. Les amplitudes des différents niveaux confinés, ainsi que le nombre de porteurs moyen par boîte et le temps caractéristique de la capture sont optimisés par minimisation de la valeur du  $\chi^2$ .

Les résultats de modélisation évaluent la population initiale moyenne à 19 porteurs par boîte et le temps de capture à environ 0.1 ps. Le taux de capture et de relaxation Auger est de  $9 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ . Il est fort possible que l'augmentation importante de ce taux soit due à une contribution significative d'un autre mécanisme (non pris en compte dans le modèle), par exemple la délocalisation des porteurs (barrière d'InGaAs) quand la température et la densité d'excitation augmentent. Les résultats sont présentés à la Figure 3.39. Les temps de montée et de décroissance sont assez bien reproduits pour tous les niveaux 0D, en particulier les niveaux de plus haute énergie.



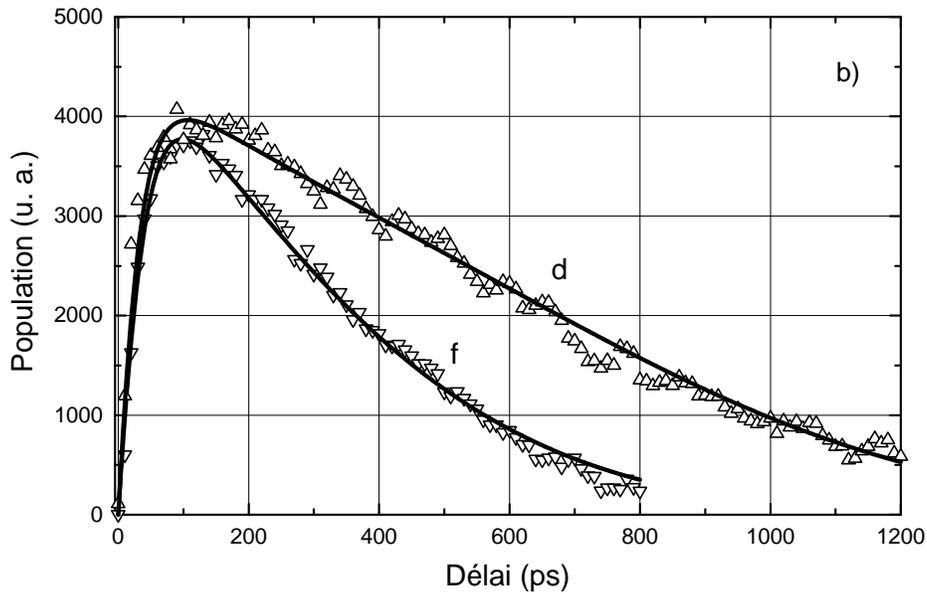


Figure 3.39: Comparaison entre les données expérimentales à haute température (90 K) et forte excitation ( $20 \text{ W/cm}^2$ ), et les simulations obtenues avec le modèle de distribution homogène. Les figures montrent l'évolution des deux premiers niveaux (a), ainsi que l'évolution des niveaux *d* et *f* (b).

En conclusion, les différents mécanismes de relaxation et les valeurs de paramètres utilisées semblent relativement bien reproduire la dynamique de la relaxation des porteurs dans les BQs. Tous les niveaux d'énergie 0D peuvent être modélisés de façon satisfaisante, quel que soit le nombre de porteurs dans les boîtes (ou la puissance d'excitation) et la température de l'échantillon.

Le fait de tenir compte d'une distribution initiale inhomogène du nombre de porteurs dans les boîtes (distribution gaussienne) modifie relativement peu la dynamique de relaxation de l'ensemble des porteurs, en particulier à faible excitation. Cependant, les résultats montrent qu'il peut être important de tenir compte de la répartition inhomogène des porteurs, notamment pour décrire les populations dans les niveaux de plus haute énergie, lorsque des niveaux commencent à saturer.

## 3.6 Conclusions

Les modèles de relaxation développés jusqu'à maintenant permettent de décrire la décroissance des signaux de PL, mais la montée du signal de PL des différents niveaux des BQs n'a pas encore été correctement décrite, à notre connaissance, du fait de la complexité des mécanismes interagissant lors de la relaxation des porteurs. L'élaboration d'un nouveau modèle nous a paru nécessaire afin de mieux identifier les mécanismes responsables de la relaxation de l'énergie des porteurs.

Nos simulations mettent en évidence plusieurs résultats intéressants:

- Le fait de considérer une distribution spatiale initiale inhomogène des porteurs dans les BQs peut modifier l'évolution temporelle de la distribution en énergie des porteurs: les temps de montée, de décroissance, ainsi que l'amplitude relative de chaque niveau peuvent subir des changements plus ou moins significatifs, selon le degré d'occupation des niveaux 0D.
- Pour modéliser la relaxation des porteurs de façon à ce que les simulations reproduisent le mieux possible des résultats expérimentaux, il est important de tenir compte du transport des porteurs dans les barrières (GaAs et CM). La capture des porteurs de la couche de mouillage et du GaAs vers tous les niveaux confinés joue un rôle primordial, ainsi que la relaxation interniveaux vers tous les niveaux d'énergie inférieurs à celui considéré. Lorsque la densité des porteurs est importante, la capture de type Auger de la CM et les mécanismes de relaxation Auger intra-boîte semblent jouer un grand rôle (taux de collisions élevés), contrairement aux processus de recombinaison par effet Auger (taux de collisions très faible).

Cette étude a permis de modéliser de façon très satisfaisante l'évolution des populations de quatre niveaux d'énergie d'un système de boîtes quantiques, dans différentes conditions d'excitation. Le bon accord avec les données expérimentales confirment la validité du modèle que nous avons développé. Les temps de montée et les temps de décroissance des cinétiques sont bien reproduits pour tous les niveaux 0D de trois séries de données. Les effets produits par les principaux mécanismes de relaxation ont aussi pu être clairement identifiés. De plus, pour la première fois, on a pu clairement observer les effets dus à la prise en compte d'une distribution

initiale inhomogène des porteurs dans un ensemble de BQs, en les comparant aux résultats obtenus pour une distribution homogène.

Un programme d'optimisation robuste et plus puissant serait nécessaire pour améliorer encore davantage la modélisation et déterminer plus précisément les valeurs des paramètres. Il faudrait, par exemple, laisser varier un plus grand nombre de paramètres (coefficients Auger, temps de capture et de relaxation entre les différents niveaux, ...). Il faudrait aussi tenir compte de la diffusion des porteurs selon l'axe de croissance. Il serait surtout primordial d'utiliser un programme permettant de déterminer le minimum absolu de la fonction  $\chi^2$  pour modéliser plus précisément les données.

# Chapitre 4

## Synthèse des résultats

Le but de cette étude est d'identifier les principaux mécanismes responsables de la relaxation des porteurs dans des structures à boîtes quantiques. La revue bibliographique montre que, selon les conditions expérimentales, un certain nombre de mécanismes sont susceptibles d'intervenir simultanément, ce qui rend l'analyse de la relaxation très complexe.

Pour tenter de les identifier distinctement et d'évaluer leur importance relative, on se base sur les propriétés particulières de ces mécanismes. En effet, chacun varie de façon spécifique en fonction de la température, de la puissance d'excitation et des paramètres structuraux (séparation interniveaux). Leur domaine d'efficacité et leur dépendance en fonction des conditions expérimentales sont très variables. Ces propriétés peuvent influencer aussi de façon particulière sur les temps de montée et de décroissance des signaux de PL associés aux différents états du système de boîtes quantiques. Tous ces paramètres sont très importants car leur connaissance est indispensable pour tenter d'interpréter les données obtenues expérimentalement.

Les principaux mécanismes susceptibles d'intervenir durant la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques, et qui ont été pris en compte dans cette étude, sont répertoriés dans les tableaux suivants.  $\tau_m$  et  $\tau_d$  représentent respectivement les temps de montée et de décroissance des signaux de PL pour les niveaux de barrière (BA) et les niveaux des boîtes (0D), en particulier les niveaux de basse énergie (BE) et de haute énergie (HE) des boîtes.

Tableau 4.1: Tableau récapitulatif présentant les effets dus aux principaux mécanismes de capture/relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques.

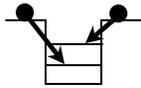
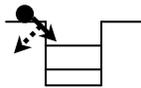
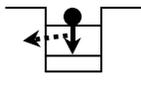
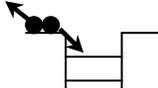
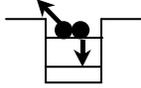
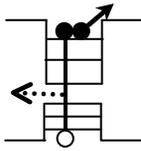
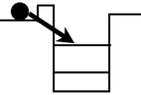
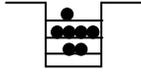
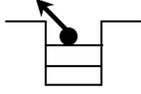
Mécanisme	Domaine d'efficacité	Dépendance	Effets principaux	Schéma descriptif
capture dans tous les niveaux 0D	dépend des échantillons	---	$\tau_d(\text{BA})\square$ , $\tau_m(\text{BE})\square$ $\tau_m(\text{BE}) < \tau_m(\text{HE})$	
capture multi-phononique	à haute température	en température	$\tau_d(\text{BA})\square$ , $\tau_m(\text{HE})\square$ $\tau_d(0D)\square$	
relaxation multi-phononique	à haute température	en température	$\tau_d(\text{HE})\square$ , $\tau_m(\text{BE})\square$ $\tau_d(\text{BE})\square$	
capture de type Auger	à forte excitation	puis. d'excitation et température	$\tau_d(\text{BA})\square$ , $\tau_m(0D)\square$ $\tau_d(0D)\square$	
relaxation de type Auger	à forte excitation	puis. d'excitation et température	$\tau_d(\text{BA})\square$ , $\tau_d(\text{HE})\square$ $\tau_d(\text{BE})\square$ , $\tau_m(0D)\square$	

Tableau 4.2: Tableau récapitulatif présentant les effets dus à différents mécanismes pouvant affecter la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques (suite).

Mécanisme	Domaine d'efficacité	Dépendance	Effets principaux	Schéma descriptif
recombinaison de type Auger	forte excitation	puis. d'excitation température	$\tau_d(\text{BA},0\text{D})\square$ $\tau_m(\text{BA},0\text{D})\square$	
dissociation des excitons	haute température	température	$\tau_d(\text{BA})\square$ , $\tau_m(0\text{D})\square$	
délocalisation des porteurs	haute température	température puis. d'excitation	$\tau_d(\text{BA})\square$ , $\tau_m(0\text{D})\square$	
effet de remplissage ou saturation	forte excitation	puis. d'excitation	$\tau_d(\text{BA},0\text{D})\square$ , $\tau_m(0\text{D})\square$	
ré-émission thermique	haute température	température	$\tau_d(0\text{D})\square$ , $\tau_m(\text{HE})\square$ $\tau_m(\text{BE})\square$	

Afin d'avoir une vue d'ensemble sur les résultats obtenus lors de l'étude expérimentale des boîtes quantiques, et de vérifier la cohérence des interprétations, nos conclusions sont résumées de manière qualitative sous la forme de diagrammes (Figure 4.1 à Figure 4.3).

L'importance relative ou la rapidité des différents processus est représentée par la taille des sphères: plus l'importance du processus est grande et plus la sphère correspondante est grosse. L'influence de la température de l'échantillon  $T$ , de la puissance d'excitation  $P_{exc}$  et de la séparation  $\Delta E$  entre les transitions de PL correspondant au niveau fondamental  $s$  et au premier niveau excité  $p$ , qui est corrélée à la séparation interniveaux, est ainsi résumée pour les différents mécanismes pouvant affecter la relaxation. En effet, comme mentionné précédemment, les différents processus susceptibles d'intervenir lors de la relaxation de l'énergie des porteurs dans

les boîtes quantiques se distinguent par un comportement distinct caractéristique, selon les conditions expérimentales.

Ces résultats sont valables pour les échantillons étudiés (boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs/GaAs) et dans les domaines d'étude, c'est-à-dire  $15 \text{ K} \delta T \delta 150 \text{ K}$ ,  $0.1 \text{ mW} \delta P_{exc} \delta 100 \text{ mW}$  et  $10 \text{ meV} \delta \Delta E \delta 35 \text{ meV}$ .

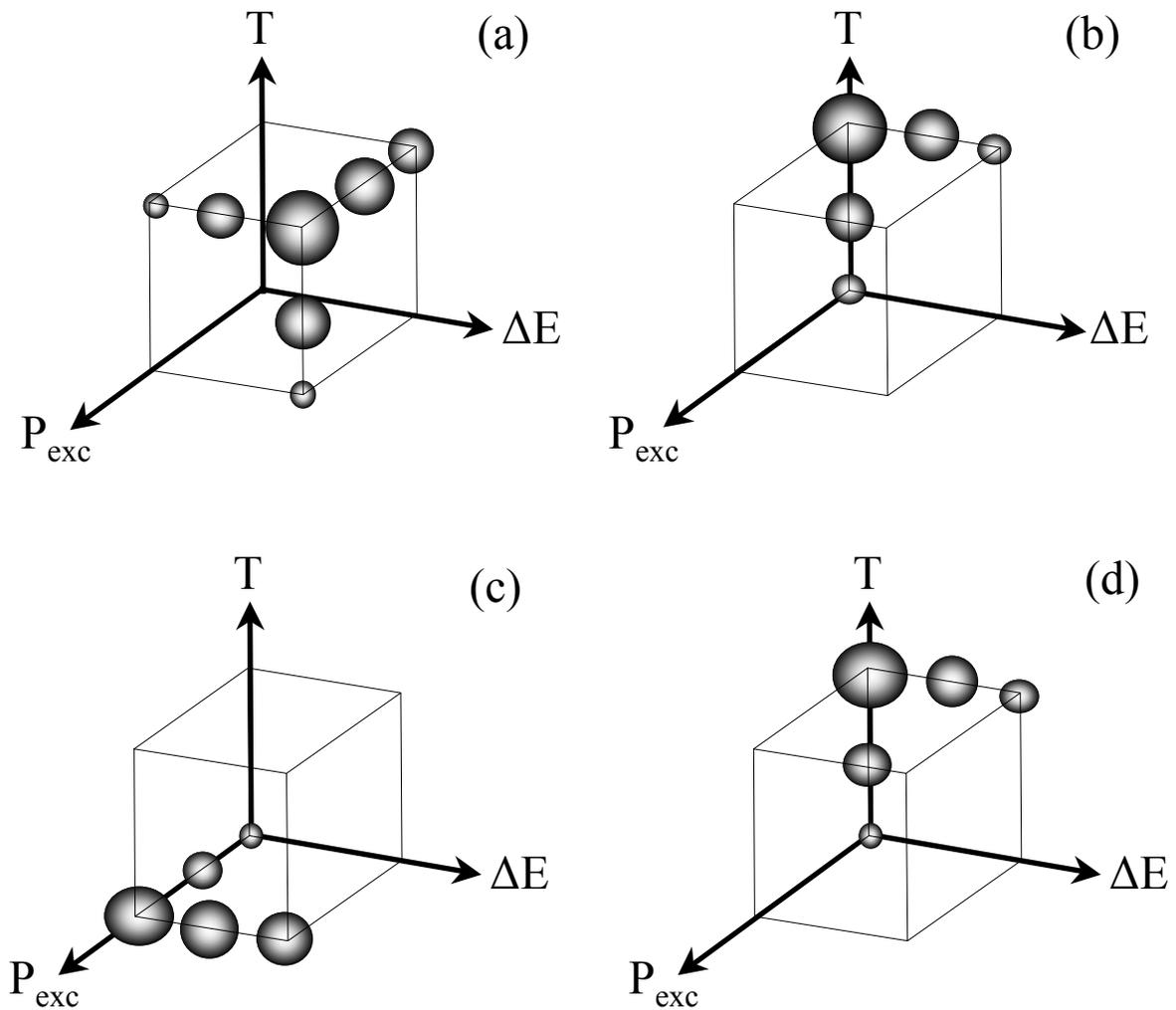


Figure 4.1: Schémas récapitulatifs décrivant la rapidité de la capture via le transport dans les barrières (a), la rapidité de la capture/relaxation multiphononique (b), la rapidité de la capture/relaxation Auger (c), et l'importance de la ré-émission thermique (d), en fonction de la puissance d'excitation  $P_{exc}$ , de la séparation interniveaux  $\Delta E$ , et de la température  $T$ .

Ainsi, la capture via le transport des porteurs dans les barrières est particulièrement rapide à haute température, forte excitation et large espace interniveau, quand les excitons sont dissociés

et qu'un grand nombre de porteurs a suffisamment d'énergie pour surmonter la barrière de potentiel à l'interface BQ/barrière. Les processus multiphononiques et la ré-émission thermique sont surtout rapides à haute température, quand la séparation interniveaux est réduite. Tous les mécanismes de type Auger (mécanismes entre porteurs 2D favorisant la capture, en compétition avec les mécanismes 0D) sont plus importants à forte densité d'excitation quand les collisions entre porteurs sont plus probables.

Maintenant, on peut aussi évaluer la rapidité globale de la relaxation des porteurs (Figure 4.2), selon les conditions expérimentales, et la comparer à la rapidité de la capture via le transport (Figure 4.1a), à la rapidité de la capture/relaxation via la diffusion multiphononique (Figure 4.1b), à la rapidité de la capture/relaxation via les processus Auger (Figure 4.1c), et à l'importance de la ré-émission thermique des porteurs hors des boîtes (Figure 4.1d).

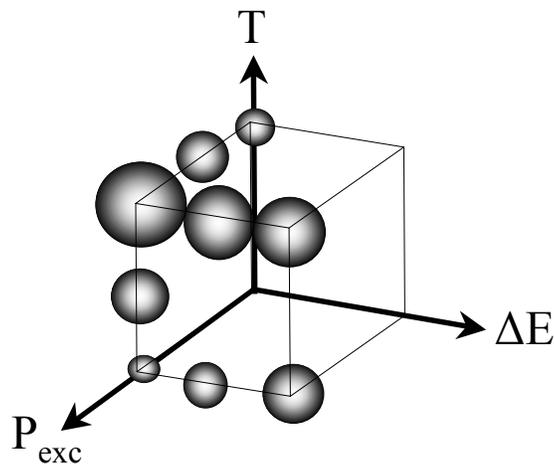


Figure 4.2: Schéma récapitulatif décrivant la rapidité globale de la capture et la relaxation interniveaux, en fonction de la puissance d'excitation  $P_{exc}$ , de la séparation interniveaux  $\Delta E$ , et de la température  $T$ .

La relaxation des porteurs dans les boîtes est très rapide à haute température (grâce à l'efficacité des mécanismes de transport dans les barrières, et éventuellement des processus de capture/relaxation multiphononiques), sous forte excitation (grâce aux mécanismes de transport et de capture Auger), et en particulier lorsque la séparation interniveaux est faible (grâce aux processus de capture/relaxation multiphononiques). À basse température, la relaxation est plus rapide quand l'énergie interniveaux est grande.

**Ainsi, tous les principaux mécanismes de capture/relaxation peuvent contribuer à la rapidité de la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques, pour les échantillons étudiés et dans les conditions expérimentales données.**

Ensuite, pour évaluer l'efficacité lumineuse ou l'intensité de lumière émise par les boîtes par rapport à l'excitation initiale, il faut tenir compte de la rapidité des mécanismes de capture/relaxation et des mécanismes de recombinaison radiatif et non radiatif. On connaît relativement mal les mécanismes de recombinaison, mais il est possible qu'ils soient affectés par la température, la densité d'excitation et l'énergie interniveaux. D'autre part, nos résultats ont montré que la ré-émission thermique pouvait devenir très importante et réduire fortement l'intensité lumineuse à haute température.

On a donc déterminé l'intensité lumineuse globale (caractérisée par l'émission de photons des états 0D) qui résulte de l'excitation des boîtes quantiques (Figure 4.3), et on l'a comparée à la rapidité globale de la capture/relaxation (Figure 4.2). L'intensité lumineuse devrait être maximale quand les processus de capture/relaxation sont très rapides par rapport aux mécanismes de recombinaison radiatifs et non-radiatifs.

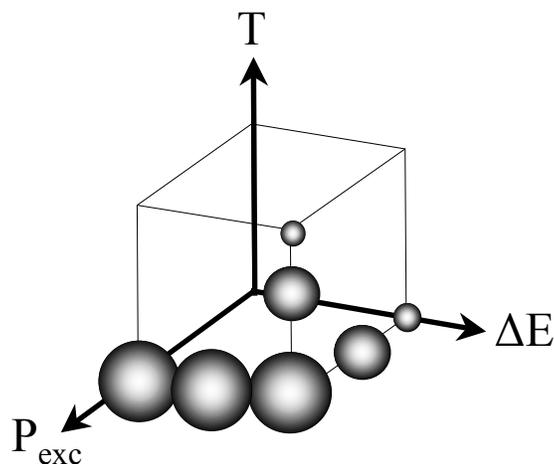


Figure 4.3: Schéma récapitulatif décrivant l'intensité lumineuse globale (caractérisée par l'émission de photons), en fonction de la densité d'excitation  $P_{exc}$ , de la séparation interniveaux  $\Delta E$ , et de la température  $T$ .

L'intensité lumineuse est maximale à basse température (la ré-émission thermique est faible), et sous forte excitation (les mécanismes de capture/relaxation sont rapides). Il est intéressant de noter que l'intensité lumineuse ne semble pas influencée de façon très significative par l'interdiffusion des boîtes (réduction de la séparation interniveaux).

**En conclusion, l'intensité lumineuse des boîtes semble liée à la rapidité des mécanismes de capture/relaxation mais elle est limitée par le taux de ré-émission thermique à haute température.**

Tous les schémas présentés précédemment (Figure 4.1 à Figure 4.3) sont basés sur les résultats expérimentaux obtenus par photoluminescence lors de l'étude de boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs/GaAs. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus par la modélisation des données expérimentales: le transport dans les barrières, ainsi que la capture et la relaxation multiphononique jouent un rôle primordial lors de la relaxation des porteurs. De plus, sous forte excitation, les mécanismes de capture Auger peuvent intervenir de façon significative, mais l'effet de la recombinaison Auger reste négligeable.

D'autre part, il est important de noter que globalement nos résultats concordent bien avec tous ceux qui ont été publiés récemment concernant l'efficacité des processus multiphononiques<sup>94, 104, 107, 109</sup>, l'importance de la ré-émission thermique<sup>90, 95, 132, 133, 150</sup>, l'efficacité de la capture/relaxation par mécanismes de type Auger<sup>94, 117, 125, 142, 147, 151</sup>, l'efficacité du transport/localisation des porteurs<sup>150, 151</sup>, l'efficacité de la recombinaison radiative<sup>4, 30, 51, 96, 108, 117, 142, 146, 147</sup>, et l'efficacité de la recombinaison non-radiative via des mécanismes Auger<sup>90, 99, 117</sup>. Ces études expérimentales ou théoriques concernent aussi un système de boîtes quantiques auto-assemblées d'In(Ga)As/GaAs.

De manière plus globale, l'efficacité de la capture/relaxation<sup>22, 54, 105, 110, 117, 146, 151-153</sup> et l'efficacité lumineuse des boîtes<sup>6, 9, 11, 22, 27, 49, 53, 54, 62, 66, 68, 72, 73, 75, 78, 84, 86, 87, 95, 128, 132, 150, 154-158</sup> sont aussi en très bon accord avec nos résultats.

Mais il faut cependant noter quelques résultats contradictoires rapportés pour le même système de boîtes quantiques. Ainsi, des auteurs observent un temps de recombinaison radiatif constant (0.8 ns-1.5 ns) en fonction de la température, mais dans ces BQ fabriquées par ALS (croissance par alimentation alternée), il existerait un important canal de recombinaison non-radiatif (temps caractéristique évalué à 0.6-1.0 ns)<sup>89</sup>. D'autre part, en considérant une énergie de phonon LO particulière, des auteurs prédisent des processus de relaxation qui deviennent de plus en plus efficaces lorsque la séparation interniveaux augmente (et s'approche de l'énergie du phonon)<sup>107, 109</sup>. Cependant nos résultats sont en accord avec les travaux considérant principalement la relaxation par les phonons LA<sup>94, 104</sup>. Les processus multiphononiques dans les boîtes quantiques pourraient impliquer plusieurs types de phonons, dont le nombre pourrait éventuellement varier selon la séparation interniveaux.

Ce formalisme permet d'expliquer toutes les données expérimentales rapportées dans cette étude. Ces diagrammes peuvent probablement aider à interpréter d'autres résultats expérimentaux obtenus pour un système de boîtes quantiques semblables, dans différentes conditions expérimentales. La généralisation de tous ces résultats pour d'autres systèmes de BQs reste à vérifier par une étude plus étendue, sur un grand nombre d'échantillons. Il est possible que d'autres paramètres de fabrication interviennent et modifient la dynamique des porteurs.

# Conclusion

Au cours de ce travail de doctorat, différents échantillons de boîtes quantiques ayant été plus ou moins interdiffusés (énergie de transition et séparation interniveaux variables) ont été étudiés par photoluminescence, sous excitation continue et pulsée. Globalement, les boîtes quantiques étudiées présentent d'excellentes propriétés optiques (efficacité lumineuse importante et relaxation rapide des porteurs).

Des calculs variationnels combinés à des résultats expérimentaux ont montré que la largeur des raies du signal de photoluminescence émis par des BQs, qui est un facteur important et caractéristique de la qualité des boîtes, est due aux inhomogénéités de la hauteur des boîtes. Ce résultat confirme donc l'importance de bien contrôler la hauteur des boîtes lors de la fabrication, par exemple par la technique de "l'Indium flush".

Par ailleurs, les résultats obtenus par photoluminescence résolue dans le temps ont permis de clarifier le rôle tenu par les différents mécanismes de relaxation et les différents types d'interaction entre porteurs, en fonction des conditions expérimentales. En particulier, on a pu observer que les collisions porteurs-porteurs (effet Auger) jouent un rôle primordial à forte densité d'excitation, en particulier lors de la capture des porteurs. De plus, on a montré qu'après interdiffusion des boîtes quantiques, la localisation des porteurs dans la couche de mouillage est très importante, à basse température, probablement à cause de l'apparition d'une barrière de potentiel d'InGaAs. Les processus multiphononiques et/ou la ré-émission thermique semblent aussi jouer un grand rôle lorsque la séparation interniveaux est faible, à haute température.

La relaxation des porteurs devient en effet extrêmement rapide à haute température, lorsqu'on réduit la séparation interniveaux. Cette observation peut être corrélée à l'efficacité de la capture/relaxation multiphononique. Nos résultats montrent aussi que la capture des porteurs des barrières semble se produire vers tous les niveaux confinés des boîtes simultanément. Un ralentissement de la relaxation a été observé, à très basse température, dans le cas des boîtes quantiques interdiffusées, mais il semble dû à la localisation des porteurs dans les barrières. Ce ralentissement est plus ou moins important selon les échantillons et les conditions expérimentales. Il est donc possible de contrôler la rapidité de la relaxation des porteurs en modifiant les paramètres structuraux ou expérimentaux, ce qui pourrait être un grand avantage pour certaines d'applications.

Un modèle simplifié décrivant la relaxation en cascade des porteurs dans les différents niveaux du système (barrières et boîtes quantiques) a été élaboré. Ce modèle est basé sur les équations d'évolution de la population de porteurs de chaque niveau quantique. Les résultats des simulations mettent en évidence le faible rôle joué par la distribution spatiale initiale des porteurs dans les boîtes lors de la relaxation. Pour modéliser le plus fidèlement possible les données expérimentales, il faut tenir compte de la diffusion et de la localisation des porteurs dans les barrières, ainsi que de la capture et de la relaxation interniveaux vers tous les niveaux d'énergie inférieure simultanément. Les simulations montrent aussi qu'à forte excitation, les processus Auger jouent un rôle très important. Les cinétiques correspondant à quatre niveaux 0D et obtenues dans différentes conditions expérimentales, ont pu être modélisées correctement, confirmant ainsi la validité de notre modèle.

Finalement, on a pu montrer que l'efficacité de la relaxation des porteurs dans les boîtes est régie principalement par les mécanismes de transport dans les barrières, ainsi que par les processus de capture/relaxation multiphononiques et/ou ré-émission thermique, et les collisions Auger sous forte excitation. Quant à l'efficacité lumineuse des boîtes, elle semble liée aux mécanismes de capture/relaxation dans les boîtes, mais limitée par le taux de ré-émission thermique des porteurs hors des boîtes à haute température (la hauteur de la barrière de confinement 0D doit jouer un rôle important). L'effet du "phonon bottleneck" ne semble pas jouer de rôle significatif.

Finalement, pour améliorer encore les connaissances sur la dynamique des porteurs dans les boîtes quantiques, on pourrait réaliser de nouvelles études de la relaxation des porteurs dans des boîtes quantiques uniques en variant les conditions expérimentales et le type de structure. En particulier, il pourrait être intéressant d'étudier plus spécifiquement le transport des porteurs dans la couche de surface, l'effet de la hauteur de la barrière de confinement par rapport à l'énergie interniveaux, le couplage électronique... Il faudrait aussi corréler les données expérimentales et théoriques obtenues pour des boîtes quantiques uniques et de grands ensembles de boîtes, afin de déterminer l'influence des effets à N-corps sur la largeur inhomogène des pics de PL.

Pour développer un modèle capable de bien décrire la dynamique des porteurs dans les boîtes quantiques, il faudrait utiliser une routine Monte Carlo qui puisse simuler la distribution inhomogène des photo-porteurs dans l'échantillon (absorption dans les couches), ainsi qu'un programme d'optimisation très robuste. De plus, il faudrait peut-être tenir compte des effets à N-corps qui sont fortement dépendants de la population dans les boîtes et pourraient sensiblement modifier la distribution énergétique des porteurs. Pour bien modéliser la dynamique des porteurs, il semble donc indispensable de développer un modèle beaucoup plus complexe prenant aussi en compte tous les effets décrits précédemment.

# Description du photomultiplicateur utilisé en photoluminescence

## HAMAMATSU

PHOTOMULTIPLIER TUBES  
R2658  
R2658P (For Photon Counting)

High QE in Near IR Region Due to InGaAs (Cs) Photocathode  
For Spectrophotometers with 185 to 1010 nm range,  
Fluorescence and Laser Applications and Photon Counting (R2658P)  
in the Near Infrared Region, etc.

### FEATURES

- High QE in Near IR Region ..... QE 0.13% at 1  $\mu\text{m}$
- Wide Wavelength Range ..... 185 to 1010 nm
- Low Dark Current ..... 1 nA at 1250 V (Typ.)

The R2658 and the R2658P are 28 mm (1-1/8 inch) diameter side-on photomultiplier tubes using a newly developed InGaAs semiconductor photocathode.

The InGaAs photocathode is sensitive from UV to near IR radiations (as long as over 1010 nm) longer than wavelength limit of GaAs photocathode, and yet offers low dark current. The dark current is 2 orders lower than the commercial S-1 photocathode. Therefore, they are well suited for low light detection in the near IR region including fluorescence lifetime measurements. Time response, gain, and dimensions are identical with the conventional 28 mm (1-1/8 inch) diameter side-on tubes with a GaAs photocathode.

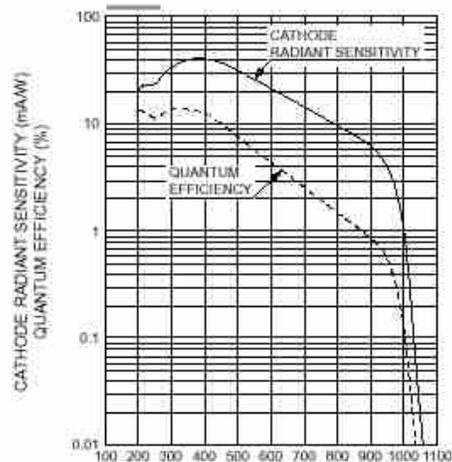
The R2658P is a photon counting version of the R2658 with low dark counts.



### GENERAL

Parameter	Description/Value	Unit
Spectral Response	185 to 1010	nm
Wavelength of Maximum Response	400	nm
Photocathode	Material	InGaAs (Cs)
	Minimum Effective Area	3 x 12
Window Material	UV glass	—
Dynode	Secondary Emitting Surface	Cu-BaO
	Structure	Circular-cage
	Number of Stages	9
Direct Interelectrode Capacitances	Anode to Last Dynode	Approx. 4
	Anode to All Other Electrodes	Approx. 6
Base	11-pin base JEDEC No. B11-88	—
Weight	Approx. 45	g
Suitable Socket (Option)	E878-11A	—
Suitable Socket Assembly (Option)	E717-21	—

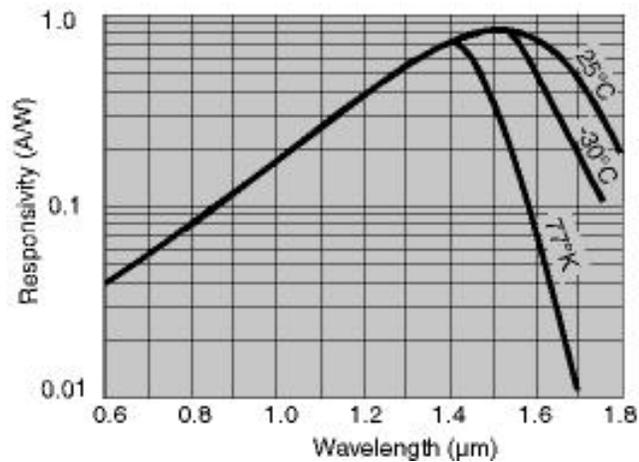
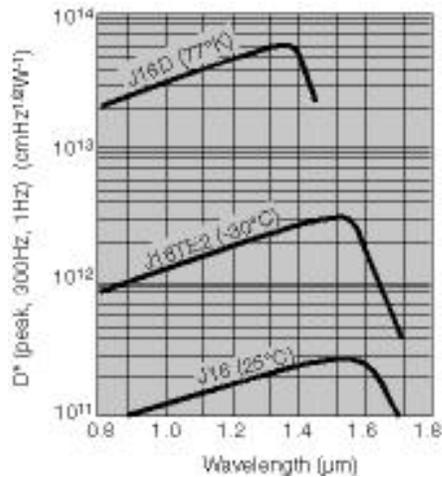
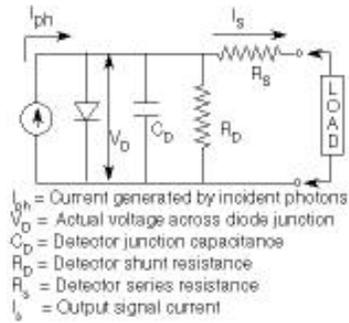
Figure 1: Typical Spectral Response



# Annexe B

# Description du détecteur au Germanium utilisé en photoluminescence

J16 Series detectors are high-quality Germanium photodiodes designed for the 800 to 1800nm wavelength range. For applications where temperature stability of response is important near the cutoff, thermoelectrically cooled detectors are available.



Responsivity: A Ge photodiode generates a current across the p-n or p-i-n junction when photons of sufficient energy are absorbed within the active region. The responsivity (Amps/Watt) is a function of wavelength and detector temperature. Temperature changes have little effect on the detector responsivity at wavelengths below the peak, but can be important at the longer wavelengths.

# Bibliographie

- [1] D. Gammon, E. S. Snow et D. S. Katzer, *Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **67**, 2391 (1995).
- [2] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi et D. Hommel, *Fine structure of biexciton emission in symmetric and asymmetric CdSe/ZnSe single quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1780 (1999).
- [3] D. Bimberg, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, R. Heitz, J. Böhrer, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Luminescence properties of semiconductor quantum dots*, J. Lum. **72**, 34 (1997).
- [4] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **56**, 10435 (1997).
- [5] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen et N. P. Kobayashi, *Vertically self-organized InAs quantum box islands on GaAs(100)*, Phys. Rev. Lett. **75**, 2542 (1995).
- [6] N. N. Ledentsov, V. A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Böhrer, O. Schmidt, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, S. V. Zaitsev, N. Yu. Gordeev, Zh. I. Alferov, A. I. Borovkov, A. O. Kosogov, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Gösele et J. Heydenreich, *Direct formation of vertically coupled quantum dots in Stranski-Krastanow growth*, Phys. Rev. B **54**, 8743 (1996).
- [7] S. Fafard, H. C. Liu, Z. R. Wasilewski, J. P. McCaffrey, M. Spanner, S. Raymond, C. Ni. Allen, K. Hinzer, J. Lapointe, C. Struby, M. Gao, P. Hawrylak, C. Gould, A. Sachrajda et P. Zawadzki, *Quantum dot devices*, soumis (2000).
- [8] P. Castrillo, D. Hessmann, M.-E. Pistol, S. Anand, N. Carlsson, W. Seifert et L. Samuelson, *Band filling at low optical power density in semiconductor dots*, Appl. Phys. Lett. **67**, 1905 (1995).
- [9] L. Landin, M. S. Miller, M.-E. Pistol, C. E. Pryor et L. Samuelson, *Optical studies of individual InAs quantum dots in GaAs: Few-particle effects*, Science **280**, 262 (1998).
- [10] Y. Ebiko, S. Muto, D. Suzuki, S. Itoh, K. Shiramine, T. Haga, Y. Nakata et N. Yokoyama, *Island size scaling in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2650 (1998).
- [11] S. Raymond, K. Hinzer, S. Fafard et J. L. Merz, *Experimental determination of Auger capture coefficients in self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **61**, R16331 (2000).
- [12] S. Fafard, *Near-surface InAs/GaAs quantum dots with sharp electronic shells*, Appl. Phys. Lett. **76**, 2707 (2000).

- [13] N. Perret, D. Morris, L. Franchomme-Fossé, R. Côté, S. Fafard, V. Aimez et J. Beauvais, *Origin of the inhomogeneous broadening and alloy intermixing in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **62**, 5092 (2000).
- [14] R. Nötzel, J. Temmyo et T. Tamamura, *Self-organized growth of strained InGaAs quantum disks*, Nature **369**, 131 (1994).
- [15] P. M. Petroff et S. P. DenBaars, *MBE and MOCVD growth and properties of self-assembling quantum dot arrays in III-V semiconductor structures*, Superlatt. & Microstruc. **15**, 15 (1994).
- [16] S. Fafard, Z. R. Wasilewski, C. N. Allen, D. Picard, M. Spanner, J. P. McCaffrey et P. G. Piva, *Manipulating the energy levels of semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **59**, 15 368 (1999).
- [17] I. Mukhametzhanov, R. Heitz, J. Zeng, P. Chen et A. Madhukar, *Independent manipulation of density and size of stress-driven self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **73**, 1841 (1998).
- [18] C. Lobo, R. Leon, S. Fafard et P. G. Piva, *Intermixing induced changes in the radiative emission from III-V quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **72**, 2850 (1998).
- [19] D. Leonard, K. Pond et P. M. Petroff, *Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs*, Phys. Rev. B **50**, 11687 (1994).
- [20] M. Grundmann, O. Stier et D. Bimberg, *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: strain distribution, optical phonons, and electronic structure*, Phys. Rev. B **52**, 11969 (1995).
- [21] N. P. Kobayashi, T. R. Ramachandran, P. Chen et A. Madhukar, *In situ, atomic force microscope studies of the evolution of InAs three-dimensional islands on GaAs(001)*, Appl. Phys. Lett. **68**, 3299 (1996).
- [22] M. Grundmann, R. Heitz, N. Ledentsov, O. Stier, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Gösele et J. Heydenreich, *Electronic structure and energy relaxation in strained InAs/GaAs quantum pyramids*, Superlatt. & Microstruc. **19**, 81 (1996).
- [23] V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev et D. Bimberg, *Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands*, Phys. Rev. Lett. **75**, 2968 (1995).
- [24] C. Lobo et R. Leon, *InGaAs island shapes and adatom migration behavior on (100), (110), (111), and (311) GaAs surfaces*, J. Appl. Phys. **83**, 4168 (1998).
- [25] A. O. Kosogov, P. Werner, U. Gösele, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, N. A. Bert et Z. I. Alferov, *Structural and optical properties of InAs-GaAs quantum dots subjected to high temperature annealing*, Appl. Phys. Lett. **69**, 3072 (1996).

- [26] S. G. Ayling, J. Beauvais et J. H. Marsh, *Spatial control of quantum well intermixing in GaAs/AlGaAs using a one-step process*, Electron. Lett. **28**, 2240 (1992).
- [27] R. Leon, D. R. M. Williams, J. Krueger, E. R. Weber et M. R. Melloch, *Diffusivity transients and radiative recombination in intermixed  $In_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs$  quantum structures*, Phys. Rev. B **56**, R4336 (1997).
- [28] S. Fafard, Z. R. Wasilewski, C. N. Allen, D. Picard, P. G. Piva et J. P. McCaffrey, *Self-assembled quantum dots: five years later*, Superlatt. & Microstruc. **25**, 87 (1999).
- [29] G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall et J. J. S. Harris, *Vertically aligned and electronically coupled growth induced InAs islands in GaAs*, Phys. Rev. Lett. **76**, 952 (1996).
- [30] R. Heitz, A. Kalburge, Q. Xie, M. Grundmann, P. Chen, A. Hoffmann, A. Madhukar et D. Bimberg, *Excited states and energy relaxation in stacked InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **57**, 9050 (1998).
- [31] M. Sopanen, H. Lipsanen et J. Ahopelto, *Strain-induced quantum dots by self-organized stressors*, Appl. Phys. Lett. **66**, 2364 (1995).
- [32] K. Moriyasu, S. Osako, N. Mori et C. Hamaguchi, *Effect of quantum confinement and lattice relaxation on electronic states in GaAs/In<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As/GaAs quantum dots*, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 3932 (1997).
- [33] J. Y. Marzin, A. Izrael, L. Birotheau, *Optical properties of etched GaAs/GaAlAs quantum wires and dots*, Solid State Elec. **37**, 1091 (1994).
- [34] R. Murray, Science **270**, 1335 (1995).
- [35] K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle et G. Weimann, *Photoluminescence from a single GaAs/AlGaAs quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **69**, 3216 (1992).
- [36] J. Hasen, L. N. Pfeiffer, A. Pinczuk, S. He, K. W. West et B. S. Dennis, *Metamorphosis of a quantum wire into quantum dots*, Nature **390**, 54 (1997).
- [37] G. Schedelbeck, W. Wegscheider, M. Bichler et G. Abstreiter, *Coupled quantum dots fabricated by cleaved edge overgrowth: from artificial atoms to molecules*, Science **278**, 1792 (1997).
- [38] O. Stier, M. Grundmann et D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band  $k.p$  theory*, Phys. Rev. B **59**, 5688 (1999).
- [39] A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard et L. Jacak, *Electronic structure and magneto-optics of self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **54**, 5604 (1996).
- [40] M. Rontani, F. Rossi, F. Manghi et E. Molinari, *Coulomb correlation effects in semiconductor quantum dots: The role of dimensionality*, Phys. Rev. B **59**, 10165 (1999).

- [41] J. Kim, L.-W. Wang et A. Zunger, *Comparison of the electronic structure of InAs/GaAs pyramidal quantum dots with different facet orientations*, Phys. Rev. B **57**, R9408 (1998).
- [42] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Excited states in self-organized InAs/GaAs quantum dots: Theory and experiment*, Appl. Phys. Lett. **68**, 979 (1996).
- [43] A. Ponchet, A. Le Corre, H. L'Haridon, B. Lambert et S. Salaün, *Relationship between self-organization and size of InAs islands on InP(001) grown by gas-source molecular beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **67**, 1850 (1995).
- [44] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, U. Kunze, G. Abstreiter, M. Hagn et P. M. Petroff, *Size distribution of coherently strained InAs quantum dots*, J. Appl. Phys. **84**, 4268 (1998).
- [45] S. Fafard, D. Leonard, J. L. Merz et P. M. Petroff, *Selective excitation of the photoluminescence and the energy levels of ultrasmall InGaAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **65**, 1388 (1994).
- [46] P. Lelong, O. Heller et G. Bastard, *Coulomb interactions in small InAs quantum dots*, Solid-State Elec. **42**, 1251 (1998).
- [47] R. Leon, P. M. Petroff, D. Leonard et S. Fafard, *Spatially resolved visible luminescence of self-assembled semiconductor quantum dots*, Science **267**, 1966 (1995).
- [48] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, V. M. U. J. Heydenreich, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).
- [49] D. Hessman, P. Castrillo, M.-E. Pistol, C. Pryor et L. Samuelson, *Excited states of individual quantum dots studied by photoluminescence spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **69**, 749 (1996).
- [50] M. Notomi, T. Furuta, H. Kamada, J. Temmyo et T. Tamamura, *Microscopic excitation spectroscopy for zero-dimensional quantized states of individual  $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$  quantum dots*, Phys. Rev. B **53**, 15 743 (1996).
- [51] U. Bockelmann, P. Roussignol, A. Filoramo, W. Heller, G. Abstreiter, K. Brunner, G. Böhm et G. Weimann, *Time-resolved spectroscopy of single quantum dots: Fermi gas of excitons?*, Phys. Rev. Lett. **76**, 3622 (1996).
- [52] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, J. Böhrer, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Nature of optical transitions in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **53**, R10 509 (1996).
- [53] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff et G. H. Döhler, *Carrier relaxation and electronic structure in InAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **54**, 11346 (1996).

- [54] K. Mukai, N. Ohtsuka, H. Shoji et M. Sugawara, *Phonon bottleneck in self-formed In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs quantum dots by electroluminescence and time-resolved photoluminescence*, Phys. Rev. B **54**, R5243 (1996).
- [55] M. A. Cusack, P. R. Briddon et M. Jaros, *Electronic structure of InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **54**, R2300 (1996).
- [56] U. Banin, Y. Cao, D. Katz et O. Millo, *Identification of atomic-like electronic states in indium arsenide nanocrystal quantum dots*, Nature **400**, 542 (1999).
- [57] U. Hohenester, R. Di Felice, E. Molinari et F. Rossi, *Optical spectra of nitride quantum dots: Quantum confinement and electron-hole coupling*, Appl. Phys. Lett. **75**, 3449 (1999).
- [58] I. E. Itskevich, M. S. Skolnick, D. J. Mowbray, I. A. Trojan, S. G. Lyapin, L. R. Wilson, M. J. Steer, M. Hopkinson, L. Eaves et P. C. Main, *Excited states and selection rules in self-assembled InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **60**, R2185 (1999).
- [59] P. D. Wang et C. M. S. Torres, *Multiple-phonon relaxation in GaAs-AlGaAs quantum well dots*, J. Appl. Phys. **74**, 5047 (1993).
- [60] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka et Y. Arakawa, *Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4114 (1999).
- [61] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Zhukov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Exciton relaxation in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Surf. Sci. **361/362**, 770 (1996).
- [62] M. J. Steer, D. J. Mowbray, W. R. Tribe, M. S. Skolnick, M. D. Sturge, M. Hopkinson, A. G. Cullis, C. R. Whitehouse et R. Murray, *Electronic energy levels and energy relaxation mechanisms in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **54**, 17738 (1996).
- [63] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer et D. Park, *Homogeneous linewidths in the optical spectrum of a single Gallium Arsenide quantum dot*, Science **273**, 87 (1996).
- [64] S. Fafard et C. N. Allen, *Intermixing in quantum-dot ensembles with sharp adjustable shells*, Appl. Phys. Lett. **75**, 2374 (1999).
- [65] S. Raymond, P. Hawrylak, C. Gould, S. Fafard, A. Sachrajda, M. Potemski, A. Wojs, S. Charbonneau, D. Leonard, P. M. Petroff et J. L. Merz, *Exciton droplets in zero dimensional systems in a magnetic field*, Solid State Comm. **101**, 883 (1997).
- [66] S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, C. Gould, A. Sachrajda, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff et J. L. Merz, *State-filling and magnetophotoluminescence of excited states in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Superlatt. & Microstruc. **21**, 541 (1997).

- [67] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff et S. Huant, *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model*, Phys. Rev. B **58**, 16221 (1998).
- [68] A. Chavez-Pirson, J. Temmyo, H. Kamada, H. Gotoh et H. Ando, *Near-field optical spectroscopy and imaging of single InGaAs/AlGaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **72**, 3494 (1998).
- [69] M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard et A. Forchel, *Hidden symmetries in the energy levels of excitonic "artificial atoms"*, Nature **405**, 923 (2000).
- [70] A. Wojs et P. Hawrylak, *Exciton-exciton interactions in highly excited quantum dots in a magnetic field*, Solid State Comm. **100**, 487 (1996).
- [71] E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, D. Spektor, J. M. Garcia et P. M. Petroff, *Multiexciton spectroscopy of a single self-assembled quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4991 (1998).
- [72] E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, J. M. Garcia et P. M. Petroff, *Carrier-carrier correlations in an optically excited single semiconductor quantum dot*, Phys. Rev. B **61**, 11 009 (2000).
- [73] J. Motohisa, J. J. Baumberg, A. P. Heberle et J. Allam, *Anomalous excitation intensity dependence of photoluminescence from InAs self-assembled quantum dots*, Solid-State Elec. **42**, 1335 (1998).
- [74] P. M. Petroff, K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, A. Lorke et J. Kotthaus, *Size quantization and zero dimensional effects in self assembled semiconductor quantum dots*, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, Part 1, 4068 (1997).
- [75] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, J. Garcia et P. M. Petroff, *Size quantization effects in InAs self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **70**, 1727 (1997).
- [76] A. Patané, M. Grassi Alessi, F. Intonti, A. Polimeni, M. Capizzi, F. Martelli, L. Nasi, L. Lazzarini, G. Salviati, A. Bosacchi et S. Franchi, *Self-aggregated InAs quantum dots in GaAs*, J. Appl. Phys. **83**, 5529 (1998).
- [77] J. Tulkki et A. Heinämäki, *Confinement effect in a quantum well dot induced by an InP stressor*, Phys. Rev. B **52**, 8239 (1995).
- [78] H. Lipsanen, M. Sopanen et J. Ahopelto, *Luminescence from excited states in strain-induced  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  quantum dots*, Phys. Rev. B **51**, 13868 (1995).
- [79] I. Mukhametzhanov, Z. Wei, R. Heitz et A. Madhukar, *Punctuated island growth: An approach to examination and control of quantum dot density, size and shape evolution*, Appl. Phys. Lett. **75**, 85 (1999).
- [80] M. Grassi Alessi, M. Capizzi, A. S. Bhatti, A. Frova, F. Martelli, P. Frigeri, A. Bosacchi et S. Franchi, *Optical properties of InAs quantum dots: Common trends*, Phys. Rev. B **59**, 7620 (1999).

- [81] M. V. Maximov, A. F. Tsatsul'nikov, B. V. Volovik, D. A. Bedarev, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, N. A. Bert, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, I. P. Soshnikov et P. Werner, *Optical and structural properties of InAs quantum dots in a GaAs matrix for a spectral range up to 1.7 $\mu$ m*, Appl. Phys. Lett. **75**, 2347 (1999).
- [82] A. Tackeuchi, Y. Nakata, S. Muto, Y. Sugiyama, T. Usuki, Y. Nishikawa, N. Yokoyama et O. Wada, *Time-resolved study of carrier transfer among InAs/GaAs multi-coupled quantum dots*, Jpn. J. Appl. Phys. **34**, L1439 (1995).
- [83] R. Leon, S. Marcinkevicius, X. Z. Liao, J. Zou et D. J. H. Cockayne et S. Fafard, *Ensemble interactions in strained semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **60**, R8517 (1999).
- [84] L. Brusaferrri, S. Sanguinetti, E. Grilli, M. Guzzi, A. Bignazzi, F. Bogani, L. Carraresi, M. Colocci, A. Bosacchi, P. Frigeri et S. Franchi, *Thermally activated carrier transfer and luminescence line shape in self-organized InAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **69**, 3354 (1996).
- [85] C. Lobo, N. Perret, D. Morris, J. Zhou, D. J. H. Cockayne, M. B. Johnston, M. Gal et R. Leon, *Carrier capture and relaxation in Stranski-Krastanov  $In_xGa_{1-x}/GaAs$  (311)B quantum dots*, Phys. Rev. B **62**, 2737 (2000).
- [86] Z. Y. Xu, Z. D. Lu, X. P. Yang, Z. L. Yuan, B. Z. Zheng, J. Z. Xu, W. K. Ge, Y. Wang, J. Wang et L. L. Chang, *Carrier relaxation and thermal activation of localized excitons in self-organized InAs multilayers grown on GaAs substrates*, Phys. Rev. B **54**, 11 528 (1996).
- [87] S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff et J. L. Merz, *State filling and time-resolved photoluminescence of excited states in  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **54**, 11548 (1996).
- [88] D. Morris, N. Perret et S. Fafard, *Photoexcited carrier dynamics in InAs/GaAs self-assembled quantum dots: influence of the experimental conditions*, accepté dans PRB (2000).
- [89] K. Mukai et M. Sugawara, *Self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots*, Academic Press **60** (1999).
- [90] H. Yu, S. Lycett, C. Roberts et R. Murray, *Time resolved study of self-assembled InAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **69**, 4087 (1996).
- [91] M. Grundmann et D. Bimberg, *Theory of random population for quantum dots*, Phys. Rev. B **55**, 9740 (1997).
- [92] S. Grosse, J. H. H. Sandmann, G. von Plessen, J. Feldmann, H. Lipsanen, M. Sopanen, J. Tulkki et J. Ahopelto, *Carrier relaxation dynamics in quantum dots: scattering mechanisms and state-filling effects*, Phys. Rev. B **55**, 4473 (1997).

- [93] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, F. Scholtz, H. Schweizer, M. H. Pilkuhn, B. Ohnesorge et A. Forchel, *Optical transitions and carrier relaxation in self assembled InAs/GaAs quantum dots*, J. Appl. Phys. **80**, 4019 (1996).
- [94] B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel et Y. Arakawa, *Rapid carrier relaxation in self-assembled InxGal-xAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **54**, 11 532 (1996).
- [95] G. Wang, S. Fafard, D. Leonard, J. E. Bowers, J. L. Merz et P. M. Petroff, *Time-resolved optical characterization of InGaAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **64**, 2815 (1994).
- [96] H. Gotoh, H. Ando et T. Takagahara, *Radiative recombination lifetime of excitons in thin quantum boxes*, J. Appl. Phys. **81**, 1785 (1997).
- [97] D. S. Citrin, *Radiative lifetimes of excitons in semiconductor quantum dots*, Superlatt. & Microstruc. **13**, 303 (1993).
- [98] J. Bellessa, V. Voliotis, R. Grousson, X. L. Wang, M. Ogura et H. Matsuhata, *Quantum effects on radiative lifetimes and relaxation of excitons in semiconductor nanostructures*, Phys. Rev. B **58**, 9933 (1998).
- [99] M. Colocci, A. Vinattieri, L. Lippi, F. Bogani, M. Rosa-Clot, S. Taddei, A. Bosacchi, S. Franchi et P. Frigeri, *Controlled tuning of the radiative lifetime in InAs self-assembled quantum dots through vertical ordering*, Appl. Phys. Lett. **74**, 564 (1999).
- [100] E. Dekel, D. V. Regelman, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld et P. M. Petroff, *Cascade evolution and radiative recombination of quantum dot multiexcitons studied by time-resolved spectroscopy*, Phys. Rev. B **62**, 11 038 (2000).
- [101] H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torrès et C. Weisbuch, *Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum box systems*, Phys. Rev. B **44**, 10945 (1991).
- [102] U. Bockelmann et G. Bastard, *Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases*, Phys. Rev. B **42**, 8947 (1990).
- [103] H. Benisty, *Reduced electron-phonon relaxation rates in quantum-box systems: Theoretical analysis*, Phys. Rev. B **51**, 13281 (1995).
- [104] U. Bockelmann, *Exciton relaxation and radiative recombination in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **48**, 17 637 (1993).
- [105] T. Inoshita et H. Sakaki, *Electron relaxation in a quantum dot: Significance of multiphonon processes*, Phys. Rev. B **46**, 7260 (1992).
- [106] H. Jiang et J. Singh, *Radiative and non-radiative inter-subband transition in self assembled quantum dots*, Physica E **2**, 720 (1998).
- [107] X.-Q. Li, H. Nakayama et Y. Arakawa, *Phonon bottleneck in quantum dots: Role of lifetime of the confined optical phonons*, Phys. Rev. B **59**, 5069 (1999).

- [108] X.-Q. Li et Y. Arakawa, *Anharmonic decay of confined optical phonons in quantum dots*, Phys. Rev. B **57**, 12285 (1998).
- [109] O. Verzelen, R. Ferreira et G. Bastard, *Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **62**, R4809 (2000).
- [110] T. H. Gfroerer, M. D. Sturge, K. Kash, J. A. Yater, A.S. Plaut, P.S. D. Lin, L. T. Florez, J. P. Harbison, S. R. Das et L. Lebrun, *Slow relaxation of excited states in strain-induced quantum dots*, Phys. Rev. B **53**, 16 474 (1996).
- [111] B. K. Ridley, *Hot electrons in low-dimensional structures*, Rep. Prog. Phys. **54**, 169 (1991).
- [112] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J. L. Merz, et P. M. Petroff, *Phonons and radiative recombination in self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **52**, 5752 (1995).
- [113] S. Raymond, S. Fafard, S. Charbonneau, R. Leon, D. Leonard, P. M. Petroff et J. L. Merz, *Photocarrier recombination in  $Al_yIn_{1-y}As/Al_xGa_{1-x}As$  self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **52**, 17238 (1995).
- [114] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev et Z. I. Alferov, *Multiphonon-relaxation processes in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **68**, 361 (1996).
- [115] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître et J. M. Gérard, *Strong electron-phonon coupling regime in quantum dots: Evidence for everlasting resonant polarons*, Phys. Rev. Lett. **83**, 4152 (1999).
- [116] T. S. Sosnowski, T. B. Norris, H. Jiang, J. Singh, K. Kamath et P. Bhattacharya, *Rapid carrier relaxation in  $In_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs$  quantum dots characterized by differential transmission spectroscopy*, Phys. Rev. B **57**, R9423 (1998).
- [117] S. Marcinkevicius et R. Leon, *Carrier capture and escape in  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  quantum dots: Effects of intermixing*, Phys. Rev. B **59**, 4630 (1999).
- [118] A. L. Efros, V. A. Kharchenko et M. Rosen, *Breaking the phonon bottleneck in nanometer quantum dots: Role of Auger-like processes*, Solid State Comm. **93**, 281 (1995).
- [119] U. Bockelmann, W. Heller, A. Filoramo et P. Roussignol, *Microphotoluminescence studies of single quantum dots. I. Time-resolved experiments*, Phys. Rev. B **55**, 4456 (1997).
- [120] U. Bockelmann et T. Egeler, *Electron relaxation in quantum dots by means of Auger processes*, Phys. Rev. B **46**, 15574 (1992).
- [121] A. V. Uskov, J. McInerney, F. Adler, H. Schweizer et M. H. Pilkuhn, *Auger carrier capture kinetics in self-assembled quantum dot structures*, Appl. Phys. Lett. **72**, 58 (1998).

- [122] P. Guyot-Sionnest, M. Shim, C. Matranga et M. Hines, *Intraband relaxation in CdSe quantum dots*, Phys. Rev. B **60**, R2181 (1999).
- [123] R. Ferreira et G. Bastard, *Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **74**, 2818 (1999).
- [124] A. V. Uskov, F. Adler, H. Schweizer et M. H. Pilkuhn, *Auger carrier relaxation in self-assembled quantum dots by collisions with two-dimensional carriers*, J. Appl. Phys. **81**, 7895 (1997).
- [125] D. Morris et N. Perret, *Carrier energy relaxation by means of Auger processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **75**, 3593 (1999).
- [126] A. V. Uskov, J. McInerney, F. Adler, H. Schweizer et M. H. Pilkuh, *Theory of a self-assembled quantum-dot semiconductor laser with Auger carrier capture: Quantum efficiency and non linear gain*, Appl. Phys. Lett. **73**, 1499 (1998).
- [127] P. C. Sercel, *Multiphonon-assisted tunneling through deep levels: A rapid energy-relaxation mechanism in nonideal quantum-dot heterostructures*, Phys. Rev. B **51**, 14532 (1995).
- [128] M.-E. Pistol, P. Castrillo, D. Hessman, J. A. Prieto et L. Samuelson, *Random telegraph noise in photoluminescence from individual self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **59**, 10725 (1999).
- [129] X.-Q. Li et Y. Arakawa, *Ultrafast energy relaxation in quantum dots through defect states: A lattice-relaxation approach*, Phys. Rev. B **56**, 10423 (1997).
- [130] D. F. Schroeter, D. J. Griffiths et P. C. Sercel, *Defect-assisted relaxation in quantum dots at low temperature*, Phys. Rev. B **54**, 1486 (1996).
- [131] R. Leon, G. M. Swift, B. Magness, W. A. Taylor, Y. S. Tang, K. L. Wang, P. Dowd et Y. H. Zhang, *Radiation effects in InGaAs/GaAs quantum dots: is there a phonon bottleneck after all?*, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **642**, J5.9.1 (2001).
- [132] S. Fafard, S. Raymond, G. Wang, R. Leon, D. Leonard, S. Charbonneau, J. L. Merz, P. M. Petroff et J. E. Bowers, *Temperature effects on the radiative recombination in self-assembled quantum dots*, Surf. Sci. **361/362**, 778 (1996).
- [133] W. Yang, R. R. Lowe-Webb, H. Lee et P. C. Sercel, *Effect of carrier emission and retrapping on luminescence time decays in InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **56**, 13314 (1997).
- [134] B. S. Ooi, K. McIlvaney, M. W. Street, A. S. Helmy, S. G. Ayling, A. C. Bryce, J. H. Marsh et J. S. Roberts, *Selective quantum-well intermixing in GaAs-AlGaAs structures using impurity-free vacancy diffusion*, IEEE J. Quant. Elec. **33**, 1784 (1997).
- [135] R. Leon, S. Fafard, P. G. Piva, S. Ruvimov et Z. Liliental-Weber, *Tunable intersublevel transitions in self-forming semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **58**, R4262 (1998).

- [136] N. Perret, D. Morris et R. Leon, *Carrier relaxation in thermal annealed InGaAs/GAAs quantum dots*, Vth International Symposium on Quantum Confinement: Nanostructures, Boston (Novembre 1998).
- [137] S. Fafard, *Conversation*, (2000).
- [138] M. Bayer, T. Gutbrod, A. Forchel, V. D. Kulakovskii, A. Gorbunov, M. Michel, R. Steffen et K. H. Wang, *Exciton complexes in InxGal-xAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **58**, 4740 (1998).
- [139] C. Schüller, K. Keller, G. Biese, E. Ulrichs, L. Rolf, C. Steinebach, D. Heitmann et K. Eberl, *Quasiatomic fine structure and selection rules in quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2673 (1998).
- [140] Y. Furukawa, S. Noda, M. Ishii, A. Wakahara et A. Sakaki, *Stacking number dependence of size distribution of vertically stacked InAs/GaAs quantum dots*, J. Elec. Mat. **28**, 452 (1999).
- [141] A. Endoh, Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Takatsu et N. Yokoyama, *Effect of size fluctuations on the photoluminescence spectral linewidth of closely stacked InAs self-assembled quantum dot structures*, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, Pt. 1, 1085 (1999).
- [142] D. Morris et S. Fafard, *Carrier dynamics in stacked self-assembled InAs/GaAs quantum dots*, Vth International Symposium on Quantum Confinement: Nanostructures, Boston (Novembre 1998).
- [143] N. Perret, D. Morris, S. Fafard, V. Aimez et J. Beauvais, *Phonon bottleneck effect in self-assembled InAs/GaAs quantum dots*, Congrès de l'ACP, Toronto (Juin 2000).
- [144] V. Zwiller, M.-E. Pistol, D. Hessman, R. Cederström, W. Seifert et L. Samuelson, *Time-resolved studies of single semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **59**, 5021 (1999).
- [145] M. Grundmann, R. Heitz, D. Bimberg, J. H. H. Sandmann et J. Feldmann, *Carrier dynamics in quantum dots: modeling with master equations for the transitions between micro-states*, Phys. Stat. Sol. (b) **203**, 121 (1997).
- [146] K. Mukai et M. Sugawara, *Slow carrier relaxation among sublevels in annealed self-formed InGaAs/GaAs quantum dots*, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 5451 (1998).
- [147] M. Brasken, M. Lindberg, M. Sopanen, H. Lipsanen et J. Tulkki, *Temperature dependence of carrier relaxation in strain-induced quantum dots*, Phys. Rev. B **58**, R15993 (1998).
- [148] N. Perret, D. Morris et S. Fafard, *Model for energy relaxation in quantum dots: effects of a non-uniform population of carriers*, International Symposium on Quantum Confinement: Nanostructures, MRS meeting, Boston (Novembre 2000).
- [149] S. Raymond, X. Guo, J. L. Merz et S. Fafard, *Excited-state radiative lifetimes in self-assembled quantum dots obtained from state-filling spectroscopy*, Phys. Rev. B **59**, 7624 (1999).

- [150] L. Zhang, T. F. Boggess, D. G. Deppe, D. L. Huffaker, O. B. Shchekin et C. Cao, *Dynamic response of 1.3- $\mu\text{m}$ -wavelength InGaAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **76**, 1222 (2000).
- [151] S. Marcinkevicius et R. Leon, *Photoexcited carrier transfer in InGaAs quantum dot structures: Dependence on the dot density*, Appl. Phys. Lett. **76**, 2406 (2000).
- [152] T. Inoshita et H. Sakaki, *Multi-phonon relaxation of electrons in a semiconductor quantum dot*, Solid State Elec. **37**, 1175 (1994).
- [153] T. Inoshita et H. Sakaki, *Density of states and phonon-induced relaxation of electrons in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **56**, R4355 (1997).
- [154] R. Leon, C. Lobo, A. Clark, R. Bozek, A. Wyszomolek, A. Kurpiewski et M. Kaminska, *Different paths to tunability in III-V quantum dots*, J. Appl. Phys. **84**, 248 (1998).
- [155] R. Leon, Y. Kim, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou et D. J. H. Cockayne, *Effects of interdiffusion on the luminescence of InGaAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **69**, 1888 (1996).
- [156] U. H. Lee, D. Lee, H. G. Lee, S. K. Noh, J. Y. Leem et H. J. Lee, *Visible photoluminescence from self-assembled InAs quantum dots embedded in AlAs cladding layers*, Appl. Phys. Lett. **74**, 1597 (1999).
- [157] H. Lee, W. Yang, P. C. Sercel, *Temperature and excitation dependence of photoluminescence line shape in InAs/GaAs quantum dot structures*, Phys. Rev. B **55**, 9757 (1997).
- [158] R. Leon et S. Fafard, *Structural and radiative evolution in quantum dots near the In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs Stranski-Krastanow transformation*, Phys. Rev. B **58**, R1726 (1998).