



**HAL**  
open science

# propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP

Charles Cornet

► **To cite this version:**

Charles Cornet. propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP. Physique [physics]. INSA de Rennes, 2006. Français. NNT: . tel-00132644

**HAL Id: tel-00132644**

**<https://theses.hal.science/tel-00132644v1>**

Submitted on 22 Feb 2007

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

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

N° d'ordre : D 06 - 08

# **THESE**

présentée

devant l'Institut National des Sciences Appliquées de Rennes

en vue de l'obtention du

## **DOCTORAT**

Spécialité : Physique

par

**Charles CORNET**

### **Propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP**

Soutenue le 27 juin 2006 devant le Jury composé de :

<b>BREMOND Georges</b>	<i>Professeur (INSA Lyon)</i>	<b>Rapporteur</b>
<b>BOUCAUD Philippe</b>	<i>Directeur de recherche (IEF Paris XI)</i>	<b>Rapporteur</b>
<b>CALVO Vincent</b>	<i>Ingénieur de recherche (CEA – Grenoble)</i>	<b>Examineur</b>
<b>HAYNE Manus</b>	<i>Lecturer (Lancaster University)</i>	<b>Examineur</b>
<b>POHL Udo W.</b>	<i>Privat Dozent Doctor (TU Berlin)</i>	<b>Examineur</b>
<b>EVEN Jacky</b>	<i>Professeur (INSA Rennes)</i>	<b>Directeur de thèse</b>
<b>LABBE Christophe</b>	<i>Maître de conférence (INSA Rennes)</i>	<b>co-Directeur de thèse</b>



# Remerciements

La tradition veut qu'une page de remerciements soit insérée en début de thèse, afin d'offrir la gratitude éternelle du doctorant nouvellement docteur envers ses pairs, pères et mères. Une gratitude pouvant paraître étonnante au premier abord quand on s'imagine le doctorant au creux de l'hiver, seul dans sa salle de manip' climatisée, tous les chercheurs étant partis en congé de Noël depuis fort longtemps, n'ayant plus assez d'argent pour se payer un repas chaud, le salaire du mois étant parti pour payer le café du directeur de laboratoire. Mais NON, le doctorat ce n'est pas ça (ou du moins pas que ça). C'est aussi la somme des efforts de plusieurs personnes dont le but est de concilier les intérêts du laboratoire, les intérêts du doctorant, et parfois même de faire avancer la Science. J'adresse ainsi mes remerciements à S. Loualiche, directeur du laboratoire LENS, pour m'avoir accueilli dans son équipe.

Un grand merci à Jacky Even, directeur de cette thèse, pour le temps qu'il m'a consacré et la disponibilité dont il a fait preuve. Sa perspicacité et ses qualités scientifiques m'ont permis d'éviter de nombreux écueils dans mes travaux de recherche. Enfin, c'est grâce à lui si la langue bretonne et le volley-ball n'ont plus de secrets pour moi, « mat tre !! »...

Un grand merci également à Christophe Labbé, co-directeur « expérimental » de ce travail de thèse. Sans lui, la patience nécessaire aux mesures dynamiques pompe-sonde m'aurait déjà fait faux bond, et je me serai déjà branché sur le circuit de refroidissement du laser, afin de calmer mes nerfs d'avant thèse...

Merci à Philippe Boucaud et Georges Brémond d'avoir accepté d'être rapporteurs de thèse, et pour leur judicieuses remarques à propos de ce manuscrit. Merci également aux autres membres du jury Vincent Calvo, Udo Pohl et Manus Hayne d'avoir fait le déplacement de si loin pour assister à la présentation de ce travail de thèse.

Je tiens à remercier tout particulièrement Manus Hayne et Andrei Schliwa, collaborateurs privilégiés respectivement à Leuven (Belgique) et à Berlin (Allemagne), pour la quantité et la qualité du travail fourni lors de ces collaborations dans le cadre du réseau d'excellence européen Sandie.

Enfin, je tiens à remercier l'ensemble des membres du LENS, professeurs, maitre de conférences, techniciens, doctorants, ingénieurs, etc... pour leur soutien (professionnel ou personnel) tout au long de ces trois années. Une énumération serait trop longue ici, mais véritablement : merci à tous.

Pour finir, merci Astrid pour ta compréhension et ta patience pendant ces trois années de thèse. Merci d'avoir supporté le stress et l'angoisse du doctorant, et merci d'avoir fait semblant de comprendre et d'apprécier mes répétitions de thèse...

# Table des matières

TABLE DES MATIERES.....	3
GLOSSAIRE DES ABREVIATIONS.....	6
INTRODUCTION.....	7
<b>0. BOITES QUANTIQUES : INTERETS, ENJEUX ET ELABORATION.....</b>	<b>13</b>
0.1 BOITES QUANTIQUES : DES ATOMES ARTIFICIELS.....	14
0.1.1 <i>Augmentation du confinement quantique dans les semi-conducteurs et conséquences.....</i>	14
0.1.1.a Le confinement dans les semi-conducteurs III-V .....	14
0.1.1.b Du confinement 3D vers le confinement 0D .....	14
0.1.2 <i>Largeur homogène et inhomogène.....</i>	16
0.1.2.a Largeur homogène.....	16
0.1.2.b Largeur inhomogène.....	16
0.1.3 <i>Potentialité des boites quantiques.....</i>	17
0.1.3.a Le laser à QDs .....	17
0.1.3.b Boites quantiques et accordabilité : amplification et régénération du signal. ....	21
0.1.3.c Boites quantiques uniques .....	22
0.2 ELABORATION DES BOITES QUANTIQUES PAR MBE.....	23
0.2.1 <i>Considérations générales sur la croissance des boites quantiques.....</i>	23
0.2.1.a Le principe général de la formation des boites quantiques .....	23
0.2.1.b Quel matériau pour quelle longueur d'onde ?.....	24
0.2.2 <i>Croissance des boites quantiques InAs/InP par MBE.....</i>	25
0.2.2.a Epitaxie par jets moléculaires.....	25
0.2.2.b Bâti à sources gazeuses.....	26
0.2.2.c La méthode de croissance Stranski-Krastanov .....	27
0.2.2.d Les boites quantiques InAs/InP (100).....	29
0.2.2.e les boites quantiques InAs/InP (311)B .....	29
0.2.2.f La procédure « double cap » pour le contrôle de la longueur d'onde .....	35
<b>1. PROPRIETES ELECTRONIQUES ET OPTIQUES DES BOITES QUANTIQUES : THEORIE....</b>	<b>39</b>
1.1 LE CALCUL $k \cdot p$ POUR LES HETEROSTRUCTURES .....	40
1.1.1 <i>Introduction et principe du calcul.....</i>	40
1.1.1.a La méthode $k \cdot p$ pour les semi-conducteurs massifs .....	40
1.1.1.b Le Hamiltonien $k \cdot p$ huit-bandes.....	42
1.1.1.c Cas des hétérostructures .....	45
1.1.1.d Etapes de calcul .....	45
1.1.2 <i>Les paramètres d'entrée du calcul.....</i>	46
1.1.2.a Calcul des déformations .....	46
1.1.2.b Effet piézoélectrique et brisure de symétrie sur substrat (100) .....	47
1.1.2.c Géométrie et composition.....	49
1.1.3 <i>Les paramètres de sortie du calcul.....</i>	49
1.1.3.a Energies propres et fonctions propres monoélectroniques.....	49
1.1.3.b Dipôles des transitions optiques .....	50
1.1.3.c Effets à N-corps : excitons, biexcitons, trions .....	51
1.2 APPROXIMATION $k \cdot p$ 1 BANDE POUR UNE PREMIERE DESCRIPTION .....	52
1.2.1 <i>Approximation <math>k \cdot p</math> 1 bande.....</i>	52
1.2.1.a Présentation et justification du modèle à 1 bande.....	52
1.2.1.b Principe de l'approximation .....	53
1.2.2 <i>Boites quantiques idéales – coordonnées paraboliques.....</i>	53
1.2.2.a Les coordonnées paraboliques .....	53
1.2.2.b Limitations du modèle : vers une description fine.....	54
1.2.3 <i>Boites quantiques InAs/InP pour le 1.55 <math>\mu m</math>.....</i>	55
1.2.3.a Justification de la géométrie choisie.....	55
1.2.3.b Fonctions d'onde, symétries et niveaux d'énergie.....	56
1.2.4 <i>Boites quantiques InAsSb/InP pour le 2-5 <math>\mu m</math>.....</i>	58
1.2.4.a Position du problème et motivations .....	58
1.2.4.b Raccords de bande pour différents alliages massifs (matériaux barrière) et masses effectives.....	59

1.2.4.c	Boites quantiques InAsSb : effets de confinement .....	62
1.2.4.d	Compétition entre les transitions optiques : un problème .....	64
1.2.4.e	Conclusion.....	65
1.3	STRUCTURE FINE DES BOITES INAS/INP ET INFLUENCE DU SUBSTRAT PAR LA METHODE K•P 8 BANDES	66
1.3.1	<i>Paramètres d'entrée du calcul : choix de la structure</i> .....	66
1.3.1.a	Motivations et cadre général de l'étude .....	66
1.3.1.b	Géométrie des boites choisies.....	67
1.3.1.c	Calcul des contraintes et déformations .....	70
1.3.1.d	Calcul du champ piézo-électrique.....	70
1.3.1.e	Propriétés générales du potentiel de confinement dans le système InAs/InP.....	73
1.3.2	<i>Propriétés optiques des boites quantiques : validation du modèle</i> .....	74
1.3.2.a	Fonctions d'onde monoélectroniques .....	74
1.3.2.b	Confrontation à l'expérience - validation du modèle.....	75
1.3.2.c	Spectres d'absorption excitonique .....	77
1.3.3	<i>Influence de l'orientation du substrat sur les propriétés optiques des boites quantiques</i> .....	79
1.3.3.a	Transitions excitoniques fondamentales sur (311)B et (100).....	79
1.3.3.b	Spectres d'absorption des boites sur (311)B et (100) .....	83
1.3.3.c	Discussion : effets des symétries .....	86
1.3.4	<i>Structure fine : excitons, biexcitons et trions</i> .....	87
2.	<b>PROPRIETES ELECTRONIQUES ET OPTIQUES DES BOITES QUANTIQUES : MESURES... 91</b>	
2.1	TECHNIQUES EXPERIMENTALES .....	92
2.1.1	<i>Emission/Absorption dans les semiconducteurs : généralités</i> .....	92
2.1.1.a	Généralités sur la luminescence des boites quantiques .....	92
2.1.1.b	Généralités sur l'absorption des boites quantiques .....	92
2.1.2	<i>Mesure d'absorption par spectroscopie FTIR</i> .....	93
2.1.2.a	L'appareil de mesure FTIR.....	93
2.1.2.b	Problèmes expérimentaux.....	94
2.1.3	<i>Expériences de photoluminescence réalisées au LENS</i> .....	95
2.1.3.a	Luminescence basse puissance, et transition fondamentale de boite quantique.....	95
2.1.3.b	Luminescence polarisée forte puissance, et transitions excitées de boite quantique.....	96
2.1.4	<i>Expériences de magnéto-photoluminescence réalisées à la KU Leuven</i> .....	97
2.1.4.a	Influence d'un champ magnétique sur un électron dans une boite quantique.....	97
2.1.4.b	Influence d'un champ magnétique sur un exciton dans une boite quantique : modèle excitonique.....	98
2.1.4.c	Magnéto-photoluminescence : montage expérimental.....	100
2.2	MESURE DU COEFFICIENT D'ABSORPTION DES BOITES QUANTIQUES PAR SPECTROSCOPIE FTIR .....	102
2.2.1	<i>Contexte de l'étude et travaux préliminaires</i> .....	102
2.2.1.a	Motivations.....	102
2.2.1.b	Travaux préliminaires et choix de l'échantillon.....	103
2.2.2	<i>Mesures brutes et simulation des effets de cavité</i> .....	104
2.2.2.a	Mesures brutes de 4 K à 293 K.....	104
2.2.2.b	Simulation des effets de cavité .....	106
2.2.2.c	Spectres d'absorption des boites quantiques après traitement numérique .....	108
2.2.3	<i>Le coefficient d'absorption des boites quantiques</i> .....	109
2.2.3.a	Influence de la température .....	109
2.2.3.b	Mesure du coefficient d'absorption .....	111
2.2.3.c	Lien entre absorption optique et nombre d'atomes actifs .....	113
2.2.3.d	Conclusion.....	113
2.3	INFLUENCE DU RECOUVREMENT DES BOITES QUANTIQUES ETUDIE PAR MAGNETO-PHOTOLUMINESCENCE	114
2.3.1	<i>Magnéto-photoluminescence sur des boites InAs/InP, ou InAs/alliage quaternaire</i> .....	114
2.3.1.a	Motivations et cadre général de l'étude .....	114
2.3.1.b	Echantillons étudiés.....	115
2.3.1.c	Mesures sous champ magnétique .....	116
2.3.1.d	Interprétation .....	118
2.3.2	<i>Effets du confinement latéral sur les propriétés optiques</i> .....	119
2.3.2.a	Etats excités et confinement latéral .....	119
2.3.2.b	Conséquences pour les lasers à boites quantique : Discussion .....	120
2.3.3	<i>Conclusions et perspectives : confirmation par X-STM</i> .....	121
2.3.3.a	Conclusions .....	121
2.3.3.b	Confirmation par X-STM .....	122
3.	<b>LE COUPLAGE LATERAL DE BOITES QUANTIQUES ET SES CONSEQUENCES ..... 125</b>	
3.1	CROISSANCE DE BOITES QUANTIQUES HAUTES DENSITES : AUTO-ORGANISATION.....	126

3.1.1	<i>Vers les hautes densités</i> .....	126
3.1.2	<i>Auto-organisation</i> .....	126
3.1.2.a	Mise en évidence de l'auto-organisation .....	126
3.1.2.b	Topologie du réseau de boîtes quantiques et interprétation .....	128
3.2	DESCRIPTION THEORIQUE DU COUPLAGE ENTRE BOITES QUANTIQUES, IMPORTANCE DE LA COUCHE DE MOUILLAGE.....	130
3.2.1	<i>Contexte de l'étude</i> .....	130
3.2.1.a	Motivations et position du problème .....	130
3.2.1.b	Etat de l'art sur le sujet .....	131
3.2.2	<i>Principe du calcul dans l'espace réciproque</i> .....	132
3.2.2.a	Equation de Schrödinger pour la bande de conduction.....	132
3.2.2.b	Utilisation d'un réseau périodique.....	133
3.2.2.c	Application à un réseau hexagonal de boîtes cylindriques .....	134
3.2.3	<i>Principaux résultats sur le couplage</i> .....	136
3.2.3.a	Effet du couplage sur les états de boîte quantique .....	136
3.2.3.b	Effet du couplage sur les états de couche de mouillage.....	139
3.2.4	<i>Application à des réseaux réels de boîtes quantiques</i> .....	141
3.3	MISE EN EVIDENCE EXPERIMENTALE, CONSEQUENCES SUR LA REDISTRIBUTION DES PORTEURS.....	143
3.3.1	<i>Le couplage latéral des boîtes quantiques par l'expérience</i> .....	143
3.3.1.a	Motivations et cadre général de l'étude .....	143
3.3.1.b	La magnéto-photoluminescence et le couplage .....	144
3.3.1.c	Photoluminescence sous haute puissance d'excitation .....	146
3.3.2	<i>Conséquences du couplage latéral sur la redistribution des porteurs de charge</i> .....	148
3.3.2.a	Etude expérimentale de la largeur spectrale de l'émission laser.....	148
3.3.3	<i>Discussion</i> .....	153
3.3.3.a	Largeur inhomogène et recouvrement des fonctions d'onde .....	153
3.3.3.b	Effet sur les courants de seuil lasers .....	154
3.3.3.c	Les boîtes quantiques couplées dans les composants .....	156
<b>4.</b>	<b>DYNAMIQUE DES TRANSITIONS OPTIQUES INTERBANDES DANS LES BOITES QUANTIQUES.....</b>	<b>159</b>
4.1	LA DYNAMIQUE DES TRANSITIONS DANS LES BOITES QUANTIQUES : POSITION DU PROBLEME.....	160
4.1.1	<i>Aspects dynamiques des composants optoélectroniques</i> .....	160
4.1.1.a	Généralités.....	160
4.1.1.b	Remplissage des boîtes : effets multiexcitoniques.....	161
4.1.2	<i>Simulation des effets de dynamique dans les composants</i> .....	163
4.1.2.a	Modèle de paires à 5 réservoirs .....	163
4.1.2.b	Equations dynamiques, et composants laser.....	164
4.2	DISPOSITIF EXPERIMENTAL POMPE-SONDE EN TRANSMISSION .....	166
4.2.1	<i>Principe de la mesure</i> .....	166
4.2.2	<i>Montage expérimental</i> .....	168
4.2.2.a	Description de l'expérience .....	168
4.2.2.b	Difficultés expérimentales .....	169
4.3	DETERMINATION DES DUREES DE VIE DE L'EXCITON ET DU BIEXCITON DANS LES BOITES QUANTIQUES INAS/INP .....	170
4.3.1	<i>Cadre général de l'étude, définition de l'échantillon</i> .....	170
4.3.1.a	Motivations et cadre général de l'étude .....	170
4.3.1.b	Echantillons étudiés.....	171
4.3.2	<i>Mesures en photoluminescence et en pompe-sonde</i> .....	171
4.3.2.a	Mesures préliminaires de photoluminescence .....	171
4.3.2.b	Transmission différentielle de 72 plans de boîtes quantiques.....	172
4.3.3	<i>Interprétation : durée de vie excitonique et biexcitonique</i> .....	174
	<b>CONCLUSION .....</b>	<b>179</b>
	<b>ANNEXES .....</b>	<b>183</b>
	<b>ANNEXE A : EQUATIONS D'EVOLUTION .....</b>	<b>184</b>
	<b>ANNEXE B : PUBLICATIONS .....</b>	<b>186</b>
	<b>ANNEXE C : BIBLIOGRAPHIE.....</b>	<b>187</b>



# Glossaire des abréviations

AFM (Atomic Force Microscopy) = Microscope à force atomique  
CB (Conduction Band) = Bande de conduction  
CD (Compact Disk) = Disque compact  
CI (Configuration Interaction) = Interaction de configuration  
CM (Continuum Mechanical model) = modèle mécanique continu de contraintes  
D.O. = Densité Optique  
DC = Double Cap  
DOS (Density Of State) = Densité d'état en énergie  
DTR (Differential Transmission Ratio) = Transmission différentielle  
DVD = Digital Versatile Disk  
EP (Empirical Pseudo-potential) = pseudo-potentiels empiriques  
ES (Excited State) = Etat excité  
FPCE (Fabry-Pérot Cavity Effects) = Effets de cavité Fabry-Pérot  
FT (Fourier Transform) = Transformée de Fourier  
FTIR (Fourier Transform Infra Red Spectroscopy) = Spectroscopie infra-rouge par transformée de Fourier  
GS (Ground State) = Etat fondamental  
HH (Heavy Hole) = trou lourd  
IVBA (Inter Valence Band Absorption) = Absorption intra-bande de valence  
LENS = Laboratoire d'Etude des Nanostructures à Semiconducteurs  
LH (Light Hole) = trou léger  
MBE (Molecular Beam Epitaxy) = Epitaxie par jets moléculaires  
MC (Mono-Couche) = monocouche atomique  
ML (Mono-Layer) = monocouche atomique  
PL = Photoluminescence  
Q1.18 = alliage quaternaire  $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$   
QD (Quantum Dot) = Boîte quantique  
QDD (Quantum Dot Density) = Densité surfacique de boîtes quantiques  
QW (Quantum Well) = Puits quantique  
RHEED = Reflection High Energy Electronic Diffraction  
SK (Stranski-Krastanov) = mode de croissance utilisé dans ce travail  
SO = Spin-Orbite  
SS (Stocke Shift) = décalage vers les hautes énergies  
TEM (Transmission Electron Microscopy) = Microscopie à transmission électronique  
UHV (Ultra High Vacuum) = Ultra-vide  
VB (Valence Band) = Bande de valence  
VCSELs (Vertical Cavity Surface Emitting Lasers) = Lasers à cavité verticale  
WDM (Wavelength Division Multiplexing) = Multiplexage en longueur d'onde  
WL (Wetting Layer) = Couche de mouillage  
WLaiQD (Wetting Layer assisted inter-QD coupling) = couplage inter-boîtes assisté par la couche de mouillage  
X = Exciton  
X-STM (Cross-Sectional Scanning Tunneling Microscopy) = Microscopie à effet tunnel par la tranche  
XX = Biexciton

---

# INTRODUCTION

---

## *Le développement des communications au XX<sup>ème</sup> siècle*

A l'aube du XX<sup>ème</sup> siècle, le monde occidental sort de la révolution industrielle et s'apprête à vivre une autre profonde mutation, à l'échelle mondiale cette fois-ci : la révolution des technologies du transport (transport des biens, des personnes et des informations...). Ce grand bouleversement a ainsi entraîné le raccourcissement des distances et des durées entre les différents points du globe terrestre.

Hormis les faits marquants parfois cités lorsqu'il est question du XX<sup>ème</sup> siècle, que sont dans le désordre les deux guerres mondiales, les dictatures, la bombe atomique, l'informatique, le progrès social, la décolonisation ou plus spécifiquement les quatre articles fondateurs d'Einstein, il est également possible d'avoir un autre regard sur cette période. En essayant de rester objectif, la situation au début du siècle dernier peut être décrite ainsi : un monde bipolaire (je pense ici à l'Europe et aux Etats-unis, principaux centres d'influence économique et culturels durant cette période) de 1.5 milliards d'individus (en 1900), dans lequel les idées et les échanges entre les nations sont, par la force des choses, extrêmement lents et parfois même biaisés. Les peuples ont alors peu de moyens de communications, si ce n'est à petite échelle.

A présent, la société de l'an 2000 avec ses 6.1 milliards d'individus, est largement multipolaire (Les centres d'influence culturels et économiques se sont nettement répartis vers l'Asie, ou encore l'Amérique centrale). L'internet, et tous les moyens d'informations dont nous disposons ont profondément changé notre manière de vivre et d'appréhender le monde. Ainsi, Paris est à quelques heures de New York, Sydney juste à côté de Hanoi, et Rennes la proche banlieue de Paris. En se basant sur ce constat, il est bien évident que pour cette société qui reçoit et échange tant d'informations, la simple utilisation du télégraphe et son débit de 1 phrase par seconde lorsque l'opérateur était en forme, au début du siècle, paraît complètement

révolue. L'augmentation de la quantité d'informations échangées, du débit des télécommunications est donc au centre des préoccupations en ce début de XXI<sup>ème</sup> siècle.

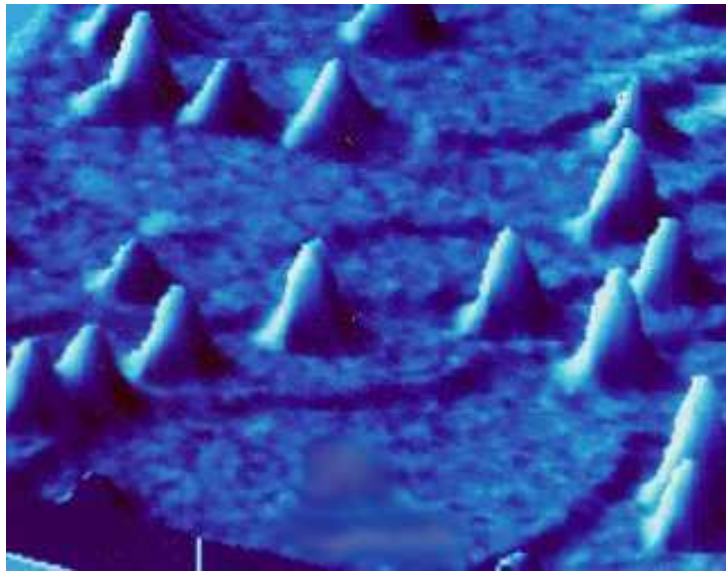
*Le passage de l'électrique au tout optique pour augmenter le débit*

Au courant du XIX<sup>ème</sup> siècle, le signal était donc transmis de manière électrique, i.e. au moyen d'un courant d'électrons à travers un fil métallique la plupart du temps. Il a très vite été compris par les scientifiques, que la propagation des électrons dans la matière, qu'elle soit organisée (cristalline) ou non, était plus lente et entraînait plus de pertes d'énergie que la propagation des ondes électromagnétiques (photons) dans le vide ou dans un milieu quelconque. Ces recherches ont abouti à la première transmission hertzienne (ondes radio) réalisée par Marconi (1874-1939), prix Nobel de 1909. Ainsi ont été développés, dans le courant du XX<sup>ème</sup> siècle, deux moyens de transmettre l'information : (a) les émissions d'ondes radio : les ondes électromagnétiques à partir d'une antenne permettent de transmettre une même information à de nombreuses personnes, mais possèdent un champ d'action restreint, et entraînent des pertes conséquentes. (b) La propagation guidée, notamment par les fibres optiques : ces câbles en silice permettent de guider la lumière (ondes électromagnétiques), et de transporter un signal sur de longues distances, avec assez peu de pertes, et de forts débits. De plus, la destination de l'information est préalablement choisie à l'envoi du signal. Depuis peu, les transmissions satellites ont également été développées. Elles sont soumises aux mêmes types de contraintes que lors de la transmission des données par émission radio. Ainsi, afin d'accélérer les transmissions des informations et les volumes transportés, la technologie de ce début de XXI<sup>ème</sup> siècle se tourne vers le développement de composants « tout-optiques », capables de traiter le signal optique, de le générer, le régénérer, le moduler, le démoduler, l'amplifier. Il est évident que ces technologies doivent également être développées dans un souci constant d'économie. En effet, moins de 15 % de la population mondiale disposent de plus de 75 % des richesses mondiales, il est nécessaire autant d'un point de vue éthique qu'économique, de développer des produits pouvant être accessibles à tous les autres. Le souci de miniaturisation et d'intégration fait également partie des objectifs des travaux de recherche de ce début de siècle (toujours plus petit, toujours plus puissant !).

*Une solution : les composés à base de semi-conducteurs III-V*

Afin de relever le défi imposé par ces contraintes socio-économiques, des alliages semi-conducteurs III-V ont ainsi été utilisés pour la première fois dans les années 1970 pour la réalisation des premiers composants optoélectroniques (lasers, photodétecteurs, modulateurs,

amplificateurs) dans la foulée des composants électroniques, comme l'a montré le prix Nobel 1973 : Leo Esaki (1925-...). Cette date marque d'ailleurs le début du développement du transport de l'information par fibres optiques. Les semi-conducteurs utilisés dans ces composants sont obtenus par des dépôts de couche d'atomes les uns sur les autres (« feuillets d'atomes »), c'est le procédé d'épitaxie. L'amélioration de ce procédé a permis de déposer des couches atomiques très minces (puits quantiques) de semi-conducteurs de quelques nanomètres de hauteurs (1 nanomètre = 1 millionième du diamètre d'un cheveu). Ces puits quantiques ont déjà montré d'étonnantes qualités du fait du confinement électronique lié à leur faible épaisseur. Ils sont maintenant couramment utilisés dans les diodes laser des lecteurs et graveurs de CD et DVD, ou pour la transmission d'informations par fibre optique. Les propriétés des composants optoélectroniques ayant ainsi été améliorées par le confinement électronique dans les puits quantiques, de plus récentes études ont porté sur l'épitaxie de boîtes quantiques (illustrée ci-dessous), objets dont la dimension est de quelques nanomètres dans toutes les directions de l'espace.



*Photographie par microscope de boîtes quantiques : ces boîtes de 5 nm de hauteur et 30 nm de diamètre peuvent émettre et absorber de la lumière.*

*Les boîtes quantiques : utiles pour les télécommunications, mais pas seulement...*

De telles boîtes quantiques à base de semi-conducteurs sont d'un intérêt potentiel considérable pour les applications optoélectroniques. En effet, ces boîtes peuvent émettre et absorber de la lumière comme des atomes avec en plus l'avantage d'émettre une lumière dont on peut contrôler la longueur d'onde. Tous comme les atomes, il est ainsi possible de réaliser des lasers, ou différents composants optiques, à partir de tels émetteurs de lumières. A titre de

comparaison, un laser classique a une dimension typique de plusieurs cm alors qu'un laser à boîtes quantiques et plus généralement à semi-conducteurs a une dimension de quelques mm. Il est toutefois nécessaire de choisir le système de matériaux utilisés pour la croissance des boîtes quantiques en fonction des applications visées. En effet, les fibres optiques en silice utilisées pour les télécommunications optiques ne laissent passer sans trop d'atténuation que deux couleurs, ou « longueurs d'onde » de la lumière : 1.3  $\mu\text{m}$ , ou 1.55  $\mu\text{m}$ . Les boîtes quantiques « épitaxiées » avec comme matériau de référence (substrat), un alliage Gallium/Arsenic : le GaAs, sont les plus communément utilisées. En particulier, les boîtes quantiques d'Arsenure d'Indium : InAs/GaAs (où InAs est le matériau dans la boîte quantique, et GaAs le matériau de référence à l'extérieur de la boîte) permettent d'atteindre la longueur d'onde de 1.3  $\mu\text{m}$ . L'utilisation potentielle de telles boîtes a maintenant été étendue à d'autres applications, comme la cryptographie quantique ou encore le développement du calcul quantique (posant ainsi les bases de la nouvelle génération d'ordinateurs quantiques dans un futur à priori lointain). Cependant, ces boîtes ne permettent pas d'atteindre la longueur d'onde de 1.55  $\mu\text{m}$ . L'utilisation du substrat de type Indium/Phosphore : InP au lieu du substrat GaAs est alors une solution envisagée pour étendre les longueurs d'onde d'émission autour de 1.55  $\mu\text{m}$ . Les boîtes InAs/InP sont donc le sujet de ce travail de thèse. Nous verrons également comment ces boîtes quantiques peuvent être utilisées et étendues à d'autres applications, comme la détection de gaz, la chirurgie laser, ou encore les télécommunications en espace libre.

*Les boîtes quantiques sur substrat InP, présentation du travail de thèse*

L'objet de cette thèse est d'explorer tant d'un point de vue théorique qu'expérimental les propriétés optiques et électroniques des boîtes quantiques InAs/InP. Il s'agit plus précisément de mesurer, analyser, calculer et comprendre l'évolution de certaines constantes fondamentales dans ces boîtes quantiques, en fonction de la variation de certains paramètres (nature du substrat, des couches de recouvrement, composition des boîtes quantiques, hauteur des boîtes quantiques, etc...). Ce manuscrit de thèse comporte cinq chapitres :

Le chapitre 0 est une introduction plus détaillée aux boîtes quantiques. Il expose les enjeux, et les potentialités des boîtes quantiques, et le procédé de fabrication par épitaxie (préambule nécessaire pour la compréhension de la suite de ce travail de thèse...).

Le chapitre 1 présente une étude théorique des boîtes quantiques. La méthode de calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  est tout d'abord expliquée. Cette méthode est utilisée de manière approchée pour

décrire de manière théorique comment des boîtes quantiques InAs/InP peuvent émettre à 1.55  $\mu\text{m}$ , et comment l'incorporation d'antimoine pourrait permettre d'atteindre des longueurs d'onde entre 2 et 3.5  $\mu\text{m}$ . Cette méthode est ensuite appliquée de manière beaucoup plus précise afin d'établir la structure électronique fine des boîtes quantiques InAs/InP pour deux types de substrats différents.

Le chapitre 2 présente les mesures optiques de constantes fondamentales dans les boîtes quantiques. Après avoir présenté les techniques expérimentales utilisées (magnéto-photoluminescence, spectroscopie infra-rouge par transformée de Fourier, photoluminescence), le coefficient d'absorption des boîtes quantiques est déterminé, ainsi que le rayon de Bohr de l'exciton, sa masse effective réduite et son énergie de liaison. L'influence des matériaux de recouvrement des boîtes quantiques sur le confinement électronique est alors étudiée.

Le chapitre 3 présente une étude complète du couplage électronique latéral entre boîtes quantiques. Après avoir montré que sous certaines conditions de croissance, les boîtes quantiques peuvent s'organiser dans le plan en très forte densité, une nouvelle méthode de calcul dans l'espace réciproque est développée afin de montrer que pour de tels réseaux de boîtes quantiques, le couplage électronique latéral doit être considéré. Un faisceau d'arguments expérimentaux (magnéto-photoluminescence, photoluminescence, électroluminescence) sont ensuite utilisés pour mettre en évidence ce couplage latéral, et discuter de l'impact que pourrait avoir ce couplage sur la redistribution des porteurs dans les composants à boîtes quantiques.

Enfin, le Chapitre 4 présente les mesures des temps de vie de l'exciton et du biexciton réalisées par une technique de mesure pompe-sonde résonante en transmission. Après avoir présenté les motivations nous poussant à faire cette étude, et la technique expérimentale utilisée, les mesures dynamiques des temps de vie radiatifs de l'exciton et du biexciton sont détaillées.



---

# CHAPITRE 0

---

## 0. Boites quantiques : intérêts, enjeux et élaboration

Nous présentons dans cette partie des considérations générales sur les nanostructures à semiconducteurs. Une première partie met en évidence l'intérêt d'utiliser des boites quantiques plutôt que des puits quantiques dans les composants optoélectroniques, et montre que l'augmentation du confinement améliore certaines caractéristiques des composants. Les potentialités des boites quantiques sont ensuite explorées, ainsi que leur limitations. Une deuxième partie montre comment la contrainte technologique en longueur d'onde (1.55  $\mu\text{m}$ ) relative aux fibres optiques utilisées dans les télécommunications, nous amène au choix du matériau InAs/InP pour les boites quantiques. Nous détaillerons dans cette partie les procédés d'épitaxie par MBE utilisés afin d'atteindre ces longueurs d'onde (technique dite du double cap en particulier).



## 0.1 Boîtes quantiques : des atomes artificiels

Cette partie décrit l'intérêt d'utiliser des boîtes quantiques dans les composants optoélectroniques à base de semi-conducteurs. Nous étudierons les conséquences de l'augmentation du confinement (passage des puits quantiques aux boîtes quantiques) dans les semi-conducteurs. Nous dresserons ensuite un rapide inventaire des différentes applications envisageables avec les boîtes quantiques.

### 0.1.1 Augmentation du confinement quantique dans les semi-conducteurs et conséquences

#### 0.1.1.a *Le confinement dans les semi-conducteurs III-V*

Les hétérostructures à base de semiconducteurs III-V avec un gap direct, comme l'InAs, le GaAs, et l'InP sont des constituants clés des composants optoélectroniques, comme les diodes, ou les barrettes lasers utilisées dans les lecteurs de CD ou DVD, et dans les réseaux de télécommunications par fibre optique sur lesquels l'internet est basé. Les alliages III-V cités précédemment sont souvent préférés à d'autres alliages III-V ou II-VI, ou aux semiconducteurs du groupe IV (comme le silicium, ou l'alliage SiGe) qui ont un gap indirect, à cause de la force de leurs transitions optiques. Les nanostructures à semi-conducteurs formées à partir de matériaux en désaccord de maille sur un substrat font actuellement l'objet de recherches intenses. Ainsi, la croissance d'InAs fortement contraint sur substrat GaAs ou InP donne lieu à la formation de boîtes de dimension nanométriques. L'InAs a par ailleurs l'avantage de posséder une petite énergie de gap. Les nanostructures d'InAs peuvent donc présenter un fort potentiel de confinement électronique en association avec de nombreux semi-conducteurs III-V, comme le GaAs, ou l'InP. Dans ces nanostructures, les porteurs de charge sont alors suffisamment confinés pour permettre la quantification des niveaux d'énergie du système. La technique de croissance par auto-assemblage permet de plus d'obtenir jusqu'à 10 milliards de boîtes quantiques par centimètre carré, avec un haut degré d'homogénéité, en une seule étape.[Arakawa84]

#### 0.1.1.b *Du confinement 3D vers le confinement 0D*

L'effet du confinement des porteurs peut se résumer en première approximation à une modification des propriétés électroniques de la structure, ce qui a des conséquences sur les performances des composants réalisés.[Chuang95] [Bimberg98] [Zory93] Dans le cas d'un matériau massif (3D), la densité d'états (DOS) représentée sur la figure 0-1 s'exprime selon :  $\rho_{3d}(E) \propto (E-E_g)^{1/2}$  où  $E_g$  est l'énergie de bande interdite (gap) du matériau considéré.

Dans le cas d'un puits quantique (QW) (matériau déposé en couche 2D), un confinement électronique est introduit suivant une direction (Oz par exemple). Une discrétisation des niveaux d'énergie ( $E_{n,z}$ ) est associée à ce confinement. La DOS pour ce système (figure 0-1) est :  $\rho_{2D}(E) \propto H[E-(E_g+E_{n,z})]$  où H est la fonction de Heavyside,  $E_{n,z}$  les niveaux discrétisés. Dans le cas d'un fil quantique, le confinement électronique intervient dans deux directions de l'espace.

Le confinement électronique suivant les trois directions de l'espace (matériau 0D) définit une boîte quantique (QD). Une discrétisation complète des niveaux d'énergie du semi-conducteur (massif à l'origine) est obtenue, et les QDs sont alors apparentés à des "atomes artificiels". La DOS est donnée par (figure 0-1) :  $\rho_{0D} \propto \delta(E-(E_g + E_{n,x} + E_{n,y} + E_{n,z}))$

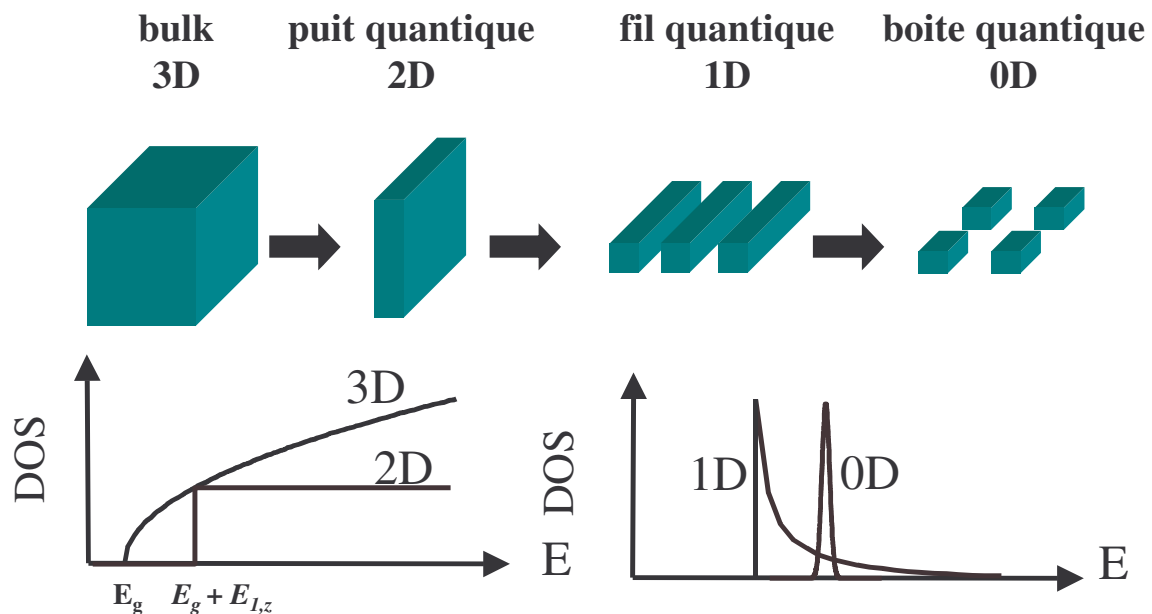


Figure 0-1 : Schéma de la densité d'états en énergie (DOS) 3D, 2D, 1D et 0D.

La réduction de la dimensionnalité de la DOS peut s'accompagner de performances intéressantes pour les composants optoélectroniques existants mais peut aussi offrir aussi des applications nouvelles. Toutefois, le choix des matériaux (gap, paramètre de maille, ...) impose un certain nombre de contraintes. Les propriétés optiques des QDs dépendent des semi-conducteurs qui les constituent. Il convient alors de choisir de façon judicieuse le système de matériaux, de façon à privilégier par exemple une émission lumineuse des QDs aux longueurs d'onde des télécommunications optiques (1.3  $\mu\text{m}$ , 1.55  $\mu\text{m}$ ), dans le domaine du visible (0.4  $\mu\text{m}$  à 0.8  $\mu\text{m}$ ), ou encore dans le domaine du moyen infra-rouge (2 - 5  $\mu\text{m}$ ).

## 0.1.2 Largeur homogène et inhomogène

### 0.1.2.a Largeur homogène

Les atomes possèdent une densité d'états constituée de pics de Dirac de largeurs homogènes  $\Gamma(T)$  de quelques micro-eV. [Cohen73] [Diu89]

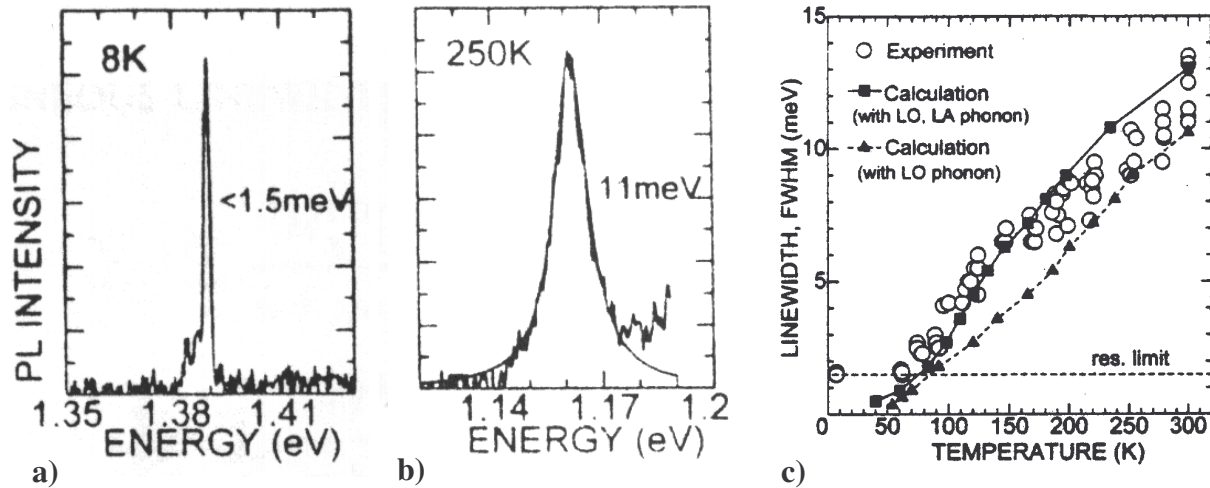


Figure 0-2 : a) et b) Spectres de photoluminescence d'une boîte quantique unique réalisés par des techniques de microscopie à champ proche (SNOM) à différentes températures, et c) évolution de la largeur à mi-hauteur de ce signal de luminescence en fonction de la température. [Matsuda01]

Des études de micro-photoluminescence et de microscopie en champ proche (SNOM) sur des boîtes quantiques uniques ont révélé des largeurs de raies homogènes de quelques centaines de micro-eV à basse température, [Matsuda00] [Matsuda01] s'élargissant jusqu'à quelques meV à température ambiante (figure 0-2). Cet élargissement homogène important à haute température [Bayer02] est une première limitation dans l'analogie entre boîtes quantiques et atomes artificiels.

### 0.1.2.b Largeur inhomogène

Dans la plupart des cas, les différentes techniques de croissance ne peuvent éviter une certaine dispersion en taille des boîtes. Il apparaît alors d'importantes *largeurs inhomogènes*. [Gérard99] [Grundman95b] [Marzin94] La détection de la photoluminescence d'un nombre croissant de boîtes (par augmentation de la taille du méso) révèle cette inhomogénéité (figure 0-3). Cet effet propre aux boîtes quantiques, lié cette fois-ci à leur dispersion en taille, contrarie les chances d'obtenir des propriétés atomiques à l'échelle du dispositif optoélectronique.

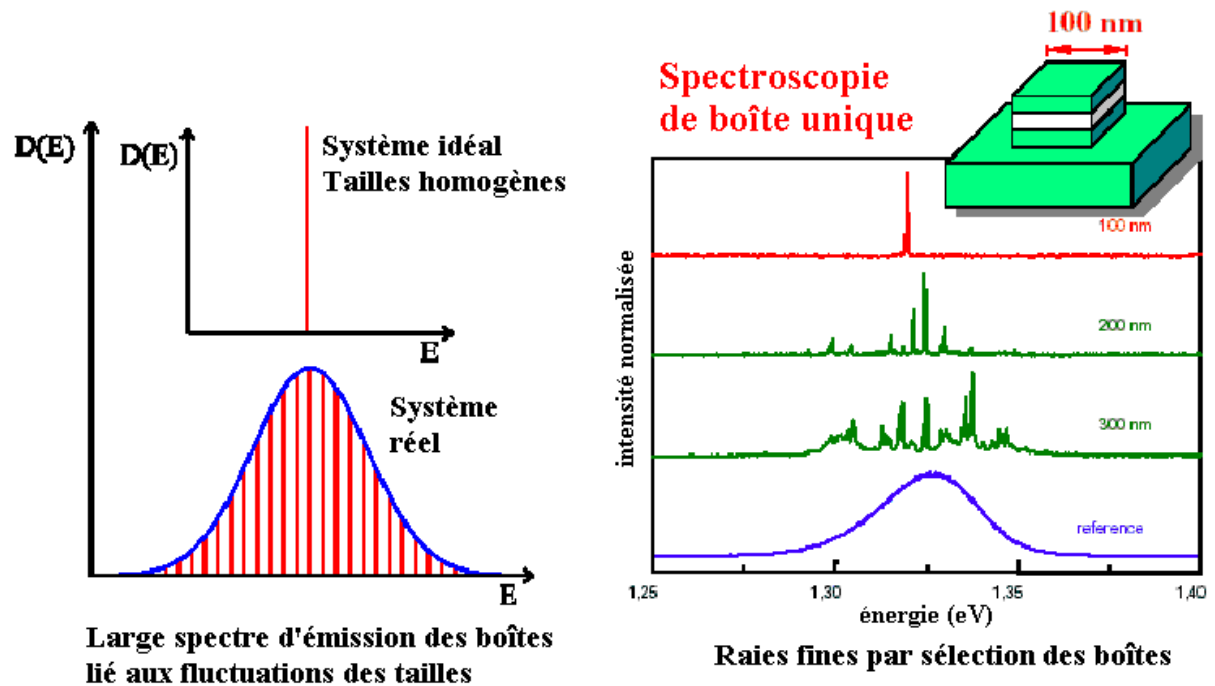


Figure 0-3 : Spectres de photoluminescence réalisés sur un nombre variable de boîtes quantiques (jusqu'à une boîte unique), mettant en évidence l'influence de la dispersion en taille des boîtes sur la largeur du spectre obtenu [Marzin94].

### 0.1.3 Potentialité des boîtes quantiques

Nous allons, à travers cette partie, décrire quelques propriétés intéressantes qui pourraient résulter de l'utilisation des QDs comme zone active d'un composant. En particulier, on développera le cas du laser à boîtes quantiques, puis, sous forme de rapide inventaire, d'autres applications pour lesquelles les boîtes quantiques seraient prometteuses. La distinction entre les lasers « edge », c'est-à-dire émettant par la tranche, et les lasers de type « VCSEL » émettant verticalement, ne sera pas détaillée ici.

#### 0.1.3.a Le laser à QDs

Rappelons que la nature de la zone active (ici les QDs) est un élément essentiel pour le fonctionnement du laser. Les paramètres caractérisant un laser sont :

*La densité de courant de seuil de transparence  $j_{th}$*  : détermine la densité de porteurs nécessaire pour atteindre la transparence

*le gain spectral  $g(\nu)$*  : détermine le gain en fonction de la fréquence optique envisagée dans la structure laser.

*le gain différentiel  $dg/dn$*  : détermine la variation de gain associé à une variation du nombre de porteurs injectés

le chirp  $\alpha_H$  : traduit la variation de l'indice (élargissement spectral de la raie laser) lors d'une modulation de la densité de porteurs injectés.

Nous allons développer ces quelques points, en montrant tout l'intérêt d'utiliser les QDs comme zone active d'un laser.

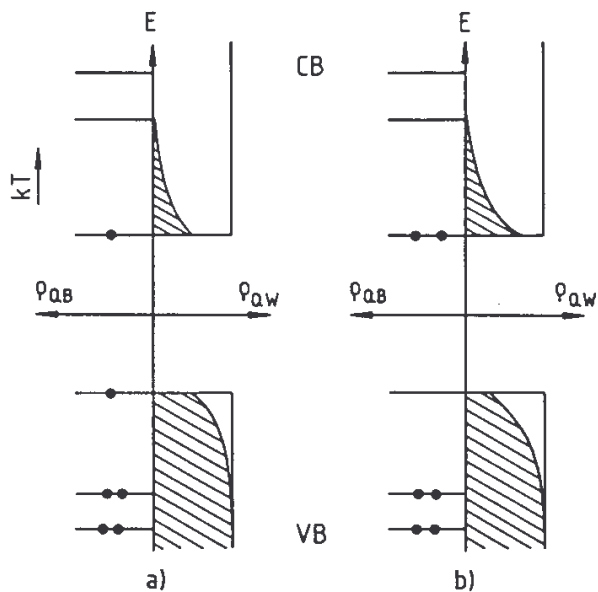
- Le courant de seuil de transparence  $j_{th}$ :

Avant de rentrer dans les détails de cette partie, il est nécessaire de bien distinguer (a) le seuil de transparence (donné par la condition de Bernard-Durafour :  $E_{Fn} - E_{Fp} > E_g$ , où  $E_F$  représentent les énergies de Fermi pour les électrons et les trous, et  $E_g$  le gap du matériau. Dans cette situation, le gain est nul) et (b) le seuil laser (seuil d'émission laser, quand le gain compense exactement les pertes optiques). Dans toute la suite du manuscrit, la dénomination « courant de seuil » fera référence au courant de seuil de transparence, l'effet des pertes optiques n'étant pas étudié ici.

Comme nous l'avons cité auparavant, les structures de plus basse dimensionnalité ont permis d'obtenir des composants optoélectroniques plus performants. Nous pouvons par exemple citer le cas des puits quantiques (QW), qui ont permis d'abaisser d'un facteur 4 à 5 le courant de seuil des diodes lasers par rapports aux lasers à semiconducteurs massifs. Les QDs, de part leur analogie avec un atome apportent un nouvel espoir pour atteindre des courants de seuil encore plus faibles.

La figure 0-4, [Gérard95] compare le remplissage des bandes d'une structure caractérisée par une DOS en pics de Dirac (QDs), avec une structure caractérisée par une DOS en "marche d'escalier" (QWs). Le seuil de transparence représenté par la figure 0-4 (a), est atteint en principe avec une seule paire électron-trou pour les QDs, alors qu'un plus grand nombre de porteurs est nécessaire pour les QWs.

Cette approche simple montre que l'on s'attend à avoir un courant de seuil plus faible pour les laser à QDs que pour les lasers à QWs. Au delà de la transparence (figure 0-2 (b)), l'ensemble des paires électrons-trous créées dans les QDs se retrouvent en bas de bande, alors que dans le cas des QWs elles se répartissent sur une bande d'énergie et ne participent pas toutes directement au gain fondamental du laser. Le gain différentiel des QDs est alors beaucoup plus important. Au cours des dernières années, l'abaissement des courants de seuil laser a été au centre des préoccupations de notre laboratoire,[CaroffAPL05] et cet aspect sera abordé dans la suite de ce travail de thèse (chapitres 2, 3 et 4).



*Figure 0-4 : Densité d'états de la bande de conduction (CB) et de la bande de valence (VB) pour le système 2D idéal ( $\rho_{QW}$ ) et le système 0D idéal ( $\rho_{QD}$ ), et densité d'états occupés (zones hachurées et points noirs (électrons)) au seuil de transparence ( a ), et au delà du seuil ( b ) (d'après [Gérard95])*

Un autre aspect fondamental lié au courant de seuil, est la notion de température caractéristique, appelée " $T_0$ ". Ce " $T_0$ " détermine les variations en température du courant de seuil suivant la loi empirique ( $j_{th} = j_{th0} \cdot \exp(T/T_0)$ ). Il est préférable d'avoir un  $T_0$  le plus grand possible, pour réduire la sensibilité du laser en température. Certains paramètres physiques influençant le coefficient  $T_0$  seront étudiés dans le chapitre 2 de ce travail de thèse. Des prédictions théoriques d'Arakawa et al. [Arakawa84] avaient montrées dès 1984 que l'abaissement de la dimensionnalité d'un système devrait permettre de réduire la sensibilité du courant de seuil à la température. Les QDs se comportent en principe comme un "piège tridimensionnel" pour les porteurs et on s'attend donc à avoir des variations faibles du courant de seuil en température. Ce phénomène doit être en principe d'autant plus marqué que la différence d'énergie entre le niveau fondamental et le premier état excité est grande par rapport à  $kT$ .

- Le gain spectral  $g(\nu)$  :

On peut définir le gain spectral comme étant l'ensemble des états en énergie disponibles qui vont permettre d'avoir du gain dans une structure. Ainsi, la DOS va jouer un rôle important, puisque la "forme" du gain spectral va être fortement dépendante de la DOS et de la densité de porteurs injectés. Ainsi, pour une même densité de porteurs, on obtient des gains

plus importants ( le gain est alors « concentré » à une longueur d'onde donnée ) pour des structures de plus basse dimensionnalité (QD par exemple).

Toutefois, il est difficile d'obtenir des boîtes de mêmes dimensions. Il faut tenir compte de la largeur inhomogène. Celle ci se traduit par une DOS effective, caractérisée par une gaussienne relative à chaque transition.[Bimberg98] Dans ce cas, le gain spectral apparaît plus large, et aussi d'amplitude plus faible. Certaines discussions des chapitres 2 et 3 aborderont ce phénomène.

- Le gain différentiel :

Le gain différentiel est un paramètre fondamental, puisqu'il permet de déterminer les limites de modulation d'un laser. Effectivement, ce paramètre détermine le "temps de réponse" de la structure à une excitation. Plus ce gain différentiel est important (plus le gain varie vite avec la densité de porteurs), plus vite la structure répond à toute excitation, permettant ainsi de moduler directement le laser à de hautes fréquences. Ce gain différentiel, dans les boîtes quantiques, est lié aux temps caractéristiques du système (temps des transitions interbandes et intrabandes) qui sont souvent mal connus dans un tel système. La détermination de ces temps caractéristiques fera l'objet du chapitre 4.

- Le chirp :

Un autre paramètre important lorsque l'on désire moduler un laser est l'amplitude du chirp (ou paramètre de Henry  $\alpha_H$ ), qui se manifeste par une modification de la longueur d'onde d'émission lors de la modulation en courant, [Bimberg98] [Zori93] suivant :

$$\Delta\nu \Delta t = \frac{2\ln(2)}{\pi} \sqrt{1 + \alpha_H^2} , \text{ avec } \Delta\nu = \frac{c\Delta\lambda}{\lambda^2}$$

Où  $\Delta\lambda$  est la largeur spectrale de l'impulsion laser, et  $\Delta t$  la durée de l'impulsion laser.

Cet effet est relié au couplage entre la partie réel ( $n_r$ ) et imaginaire ( $n_i$ ) de l'indice de réfraction du milieu. Ainsi, une variation du gain (suite à une variation de l'injection) conduit à une variation de l'indice de réfraction, ce qui modifie la phase du mode optique de la cavité et de la même façon, la longueur d'onde d'émission. L'expression du paramètre de Henry est la suivante :

$$\alpha_H = \frac{\partial n_r / \partial N}{\partial n_i / \partial N}$$

Ainsi, un chirp nul permet de moduler "librement" le laser sans une variation néfaste de la longueur d'onde d'émission.

La figure 0-5 représente les spectres d'absorption et de variation d'indice calculée (via la transformée de Kramers-Krönig) pour une structure à QDs (0D) et une structure à QWs (2D). On peut ainsi remarquer que selon la "forme" du spectre d'absorption, on va avoir une variation d'indice ( $n_r$ ) nulle ou non nulle à la longueur d'onde d'émission laser au maximum de gain. Ainsi, dans le cas des QWs, on observe systématiquement un chirp non nul. Dans les QDs, pour un spectre d'absorption idéal symétrique, on s'attend à observer un chirp proche de zéro. Ainsi, une trop grande proximité entre l'état fondamental et les premiers états excités de boîtes quantiques peut jouer un rôle néfaste dans les boîtes quantiques réelles. Ce problème sera abordé à travers l'étude de la structure électronique dans les chapitres 1 et 2.

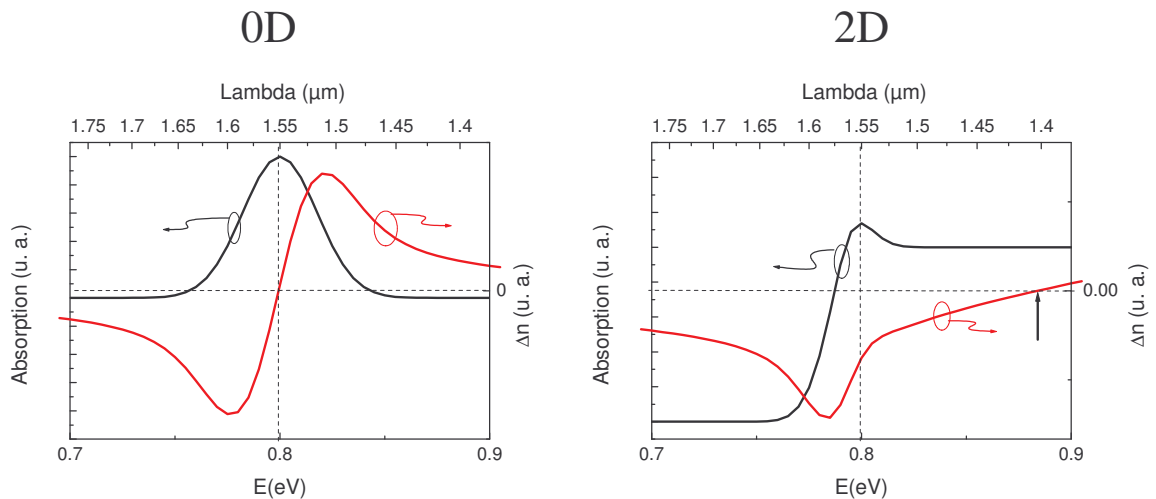


Figure 0-5: Spectre d'absorption et variation d'indice ( $\Delta n$ ) calculée pour des structures 0D et 2D.[ParanthoenTh01]

### 0.1.3.b Boîtes quantiques et accordabilité : amplification et régénération du signal.

L'effet de distribution inhomogène (et donc de gain large) discuté préalablement peut aussi avoir un effet bénéfique, à condition que ce paramètre soit bien contrôlé. En effet, les propriétés décrites précédemment pour les lasers peuvent être étendues à d'autres types de composants. L'utilisation d'un laser à boîtes quantiques accordable comme source (télécom, par exemple) peut devenir intéressant, afin d'obtenir un composant actif sur la plus grande fenêtre possible de longueur d'onde (et pouvant donc encoder l'information non plus uniquement par multiplexage temporel, mais également par multiplexage en longueur d'onde). Or, le gain spectral des boîtes quantiques est large, du fait de la dispersion



inhomogène.[Akiyama05] Cette propriété est par exemple utilisable pour réaliser, via un système de sélection de mode (cavité externe, ...), un laser accordable dans une grande gamme de longueur d'onde. Une telle source serait alors adaptée pour une utilisation en WDM (Wavelength Division Multiplexing), permettant ainsi la sélection d'une longueur d'onde sur une large plage, l'augmentation de la capacité d'une ligne de transmission, et la reconfiguration de réseau. La forte largeur spectrale du gain peut être également exploitée dans tous les composants optiques présents dans une chaîne de transmission de type télécom et notamment dans les amplificateurs optiques (qui pourraient ainsi amplifier simultanément plusieurs longueurs d'onde) ou les absorbants saturables (qui pourraient de la même façon régénérer simultanément plusieurs longueurs d'onde). Enfin, de récentes recherches ont également proposé d'utiliser de telles boîtes quantiques sur substrat InP pour fabriquer des photo-détecteurs à bande large. [Zhang05]

#### *0.1.3.c Boîtes quantiques uniques*

Nous avons jusqu'ici insisté sur les applications de type télécom, basées sur les lasers à boîtes quantiques, et le traitement du signal qui lui est associé. Un autre domaine de recherche est actuellement en cours de développement, et montre déjà des résultats spectaculaires : l'utilisation de boîtes quantiques uniques pour la cryptographie quantique, ou le calcul quantique.

En effet, la principale motivation pour le développement d'une source à photons uniques est leur application potentielle à la distribution de clés quantiques. Plusieurs protocoles de cryptographie quantique existent, utilisant soit des sources de photons uniques, ou des sources de paires de photons intriqués. Le codage peut se faire sur la polarisation, la phase ou même la fréquence du photon. Ainsi, le protocole de cryptographie quantique le plus simple, défini par Bennett et al. [Bennett84] repose sur le fait qu'il est impossible de déterminer l'état de polarisation d'un photon en réalisant une seule mesure, si on ne connaît pas la base dans laquelle il a été préparé. Le détail des explications concernant la cryptographie quantique est présenté dans le travail de thèse de E. Moreau. [Moreau02] Les boîtes quantiques permettent l'émission de photons véritablement uniques, en comparaison avec les lasers atténués utilisés actuellement comme sources de photons uniques, qui émettent « en moyenne » un photon par impulsion, ce qui change toute la physique du problème. Pour cette application, la connaissance très précise de la structure électronique est nécessaire. Cette étude fera l'objet des chapitres 1 et 2.

Les sources de photons uniques pourraient également être utilisées pour réaliser un ordinateur quantique. Cette application potentielle repose notamment sur une proposition récente de E. Knill et al. [Knill01]. Ces auteurs montrent que des calculs quantiques peuvent être effectués uniquement à partir d'éléments d'optique linéaire : Sources optiques à un photon, lames séparatrices, modificateurs de phase, photodétecteurs, etc... Sans rentrer dans le détail de cette application, l'idée principale est d'utiliser l'état à  $n$  photons ( $n = 0, 1$ ) dans le mode optique  $l_m$  :  $|n\rangle_{l_m}$  comme bit quantique, c'est-à-dire comme entité de calcul, et de réaliser avec ces bits des opérations logiques similaires à celle réalisées dans les ordinateurs actuels. Là encore, la connaissance de la structure électronique précise des boîtes quantiques (détaillée dans les chapitres 1 et 2) est primordiale.

*Dans cette partie, les enjeux, intérêts, potentialités et les principales applications des boîtes quantiques ont été présentés, en essayant de mettre en évidence l'avantage qu'il peut y avoir à les utiliser dans des composants optoélectroniques. Toutefois, ces applications sont soumises à des contraintes strictes sur la longueur d'onde utilisée, et sur les signatures optiques des boîtes quantiques. La partie suivante présente ainsi le principe de croissance des boîtes quantiques, et explique comment choisir le matériau adapté à l'application voulue.*

## 0.2 Elaboration des boîtes quantiques par MBE

*La partie suivante présente les principaux résultats de croissance des boîtes quantiques obtenus au début de ma thèse au laboratoire. Les connaissances en terme de croissance de boîtes quantiques ont fortement évoluées depuis le début de ce travail de thèse grâce aux travaux de P. Caroff et al., [CaroffTh05] et ne sont pas toutes présentées ici car certaines font partie intégrante de l'étude menée dans ce travail de thèse (cf. chapitre 3 sur le couplage latéral de boîtes quantiques).*

### 0.2.1 Considérations générales sur la croissance des boîtes quantiques

#### 0.2.1.a *Le principe général de la formation des boîtes quantiques*

Le principe de l'épitaxie est d'assurer la continuité du réseau cristallin d'un matériau A déposé sur un matériau B. De ce fait le paramètre essentiel est la valeur des paramètres de mailles des espèces présentes. Si le désaccord paramétrique est nul, on réalise alors la croissance de couches en accord de maille. La "carte du ciel" sur la figure 0-6, présente la

variation de la bande d'énergie interdite de plusieurs semi-conducteurs III-V suivant leur paramètre de maille.

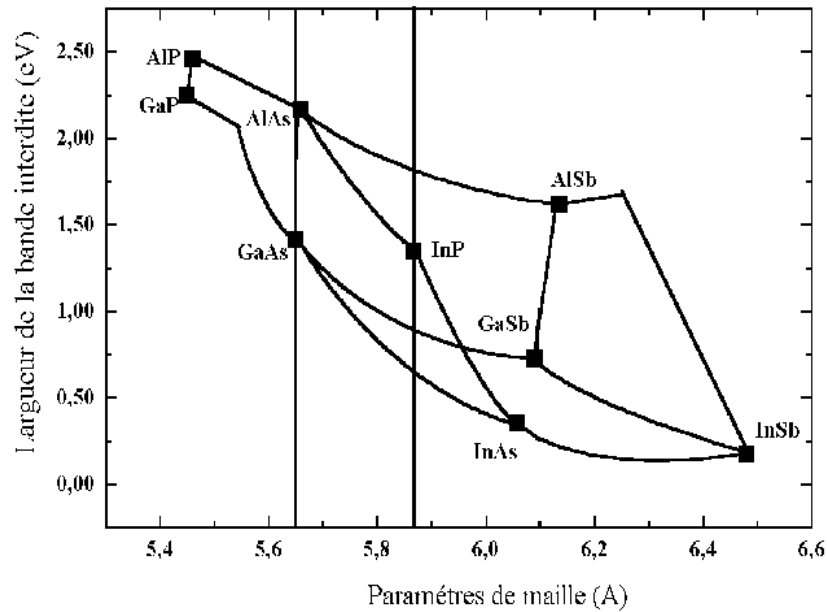


Figure 0-6: "Carte du ciel" représentant le gap direct des matériaux suivant leur paramètre de maille

Plusieurs filières de matériaux sont disponibles suivant les substrats. Ainsi, on peut faire croître sur InP toute une famille de matériaux :  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ,  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_y\text{P}_{1-y}$ , en accord de maille, ou avec de faibles désaccords.

S'il existe un désaccord de maille, l'effet de la contrainte modifie le gap du matériau contraint. Celui-ci augmente s'il est en compression et diminue s'il est en tension. La déformation du réseau entraîne une accumulation d'énergie élastique, qui dépend du désaccord et de l'épaisseur  $h$  du matériau déposé. Cette énergie élastique emmagasinée est limitée. Si elle est trop importante ( $h > h_c$  (épaisseur critique)), la couche contrainte se relaxe, soit en formant un réseau de dislocations, soit par une croissance tridimensionnelle.

Pour obtenir des boîtes quantiques, il convient de réaliser de petits volumes, avec des dimensions inférieures à quelques dizaines de nanomètres.[Bimberg98] En favorisant la croissance tridimensionnelle d'une couche contrainte en compression sous la forme de petits agrégats cohérents (sans dislocations) de matériaux, on obtient ainsi les boîtes quantiques.

### 0.2.1.b Quel matériau pour quelle longueur d'onde ?

Dans le cadre des télécommunications optiques, les fibres optiques possèdent un minimum d'atténuation à  $1,55 \mu\text{m}$ , longueur d'onde qui tout naturellement est devenue la longueur d'onde de transmission longue distance. Afin de déterminer les matériaux les plus adaptés à la

formation des QDs, pour une émission à 1.55  $\mu\text{m}$ , on peut se référer à la "carte du ciel", représentée sur la figure 0-6.

On peut constater que dans le système InAs/GaAs, le fort désaccord de maille (7%), est favorable à la formation de boîtes quantiques. Cependant, les résultats parus dans la littérature [Bimberg99] [Sugawara99] montrent que les faibles dimensions de ces boîtes (reliées au fort désaccord paramétrique) conduisent à un important confinement des porteurs, et à une énergie de transition des boîtes vers 1 eV (1.24  $\mu\text{m}$ ). Il apparaît difficile de diminuer cette énergie pour atteindre 1.55  $\mu\text{m}$ .

Dans le système InAs/InP, en revanche, le désaccord est nettement plus faible (3.2%), et une énergie de transition autour de 0.8 eV (1.55  $\mu\text{m}$ ) peut être atteinte. De plus, l'utilisation de substrats InP a l'avantage d'être déjà bien connu par l'industrie des télécommunications optiques, puisque l'ensemble des composants utilisés sont réalisés sur ce type de substrat. Ainsi, la formation de QDs dans le système InAs/InP est un candidat potentiel pour une émission à 1.55  $\mu\text{m}$ .

A partir de la figure 0-6, on peut également se rendre compte qu'en incorporant du Sb dans l'InAs, il est possible de former un alliage ternaire de type  $\text{InAs}_x\text{Sb}_{1-x}$ , sur substrat InP, présentant un désaccord de paramètre de maille plus élevé et une diminution du gap du matériau. Ceci doit permettre d'atteindre des énergies de transition plus basses, et donc des longueurs d'onde allant au-delà de 2  $\mu\text{m}$ . Ces longueurs d'onde, comprises entre 2 et 5  $\mu\text{m}$  délimitent ce que l'on appelle le moyen infra-rouge, et sont associées à de nombreuses applications, dont la détection de gaz (polluants en particulier), la transmission en espace libre ou la chirurgie laser.[Joullié03]

## 0.2.2 Croissance des boîtes quantiques InAs/InP par MBE

Nous présentons dans cette partie les boîtes quantiques (QDs) InAs/InP(311)B élaborées au laboratoire. Une description de la méthode de croissance des boîtes quantiques et du bâti du laboratoire précède un rapide état de l'art de la croissance de QDs InAs/InP(100). Nous évoquons ensuite les motivations et les avantages de l'utilisation d'un substrat InP orienté selon [311]B, et nous présentons les principaux résultats obtenus au laboratoire concernant la croissance des QDs InAs/InP(311)B.

### 0.2.2.a Epitaxie par jets moléculaires

L'épitaxie consiste à faire croître une couche monocristalline d'un matériau sur un substrat également monocristallin. L'épitaxie dite « *par jets moléculaires* » est une technique de

croissance sous ultravide (environ  $10^{-10}$  Torr) dans laquelle des flux atomiques ou moléculaires, issus de sources solides ou gazeuses, interagissent sur le substrat. Ces sources émettent les éléments atomiques ou moléculaires soit par craquage thermique (environ  $1000^{\circ}\text{C}$ ) de précurseurs gazeux (par exemple de l'Arsine  $\text{AsH}_3$  ou de la Phosphine  $\text{PH}_3$ , qui se décomposent en  $\text{As}_2$  et  $\text{P}_2$ ), soit par sublimation de sources solides chauffées par effet Joule. L'ultravide régnant dans le bâti permet un libre parcours moyen des espèces atomiques supérieur à la distance source-substrat, d'où le terme de « *jet moléculaire* ». Cette technique permet une très bonne maîtrise des interfaces, des compositions et des épaisseurs à l'échelle de la monocouche, soit environ 0.3 nm dans le cas de la croissance sur substrat InP.

Le principe de la croissance d'un alliage III-V repose sur la méthode dite des « *trois températures* ». La température de sublimation des éléments III ( $T_{\text{III}}$ ) étant supérieure à celle des éléments V ( $T_{\text{V}}$ ), la température du substrat ( $T_{\text{sub}}$ ) est fixée entre  $T_{\text{V}}$  et  $T_{\text{III}}$ . En arrivant sur le substrat, les éléments III se condensent alors avec une ré-évaporation pratiquement nulle. Les éléments V, quant à eux, ne peuvent se fixer sur la surface qu'en présence d'éléments III. C'est donc le flux d'éléments III qui contrôle la vitesse de la croissance, pendant que le flux d'éléments V est maintenu en excès afin d'assurer la stoechiométrie du composé III-V. La pression de vapeur saturante des éléments V étant très supérieure à celle des éléments III, l'excès d'élément V est réévaporé.

Les principaux avantages de l'épithaxie par jets moléculaires sont :

- Une faible vitesse de croissance (de l'ordre de 1 monocouche par seconde pour l'InP).
- Une interruption rapide des flux permettant la réalisation d'interfaces abruptes.
- Une croissance hors de l'équilibre thermodynamique, permettant la croissance de nombreux alliages métastables.

#### 0.2.2.b Bâti à sources gazeuses

La figure 0-7 représente le bâti RIBER 2300 qui équipe le LENS-UMR FOTON de l'INSA de Rennes. Il possède des sources de Gallium (Ga), Indium (In), Arsenic (As), et Phosphore (P) pour la réalisation des ternaires et quaternaires III-V, ainsi que des sources de dopants : Silicium (Si) pour le dopage n, Béryllium (Be) pour le dopage p et Fer (Fe) pour les centres profonds (matériaux semi-isolants). Ce bâti est hybride dans la mesure où les sources d'éléments V sont des sources gazeuses d'Arsine et de Phosphine, et les sources d'éléments III et de dopants sont solides.

L'ultravide ( $10^{-10}$  Torr) est maintenu dans le bâti par un double système de pompage : pompe cryogénique et pompe turbo-moléculaire. Différents sas permettent l'introduction et le transfert des échantillons dans la chambre d'épitaxie en évitant de la remettre à l'air libre. Le substrat est placé au centre de la chambre, face aux différentes cellules. Il est fixé sur un support tournant afin d'obtenir des couches les plus homogènes possible. Selon les éléments atomiques désirés, les cellules d'évaporation (sources solides) sont obturées ou non par des caches mécaniques tandis que pour les sources gazeuses, l'obturation est assurée par des vannes pneumatiques. La température du substrat est mesurée par un thermocouple en contact avec l'arrière du porte-substrat, et par un pyromètre optique visant la surface de l'échantillon. La surface de croissance peut être caractérisée *in-situ* par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED), grâce à un canon à électrons et un écran fluorescent.

La qualité des couches épitaxiées, en terme de propriétés électriques et optiques, est fortement liée au dopage résiduel, généralement de type n (de l'ordre de  $10^{15}$  cm<sup>-3</sup>). Ce dopage est lui-même lié à l'atmosphère résiduelle de la chambre. Pour cette raison, la chambre est entourée de panneaux froids remplis d'azote liquide afin de piéger les impuretés.

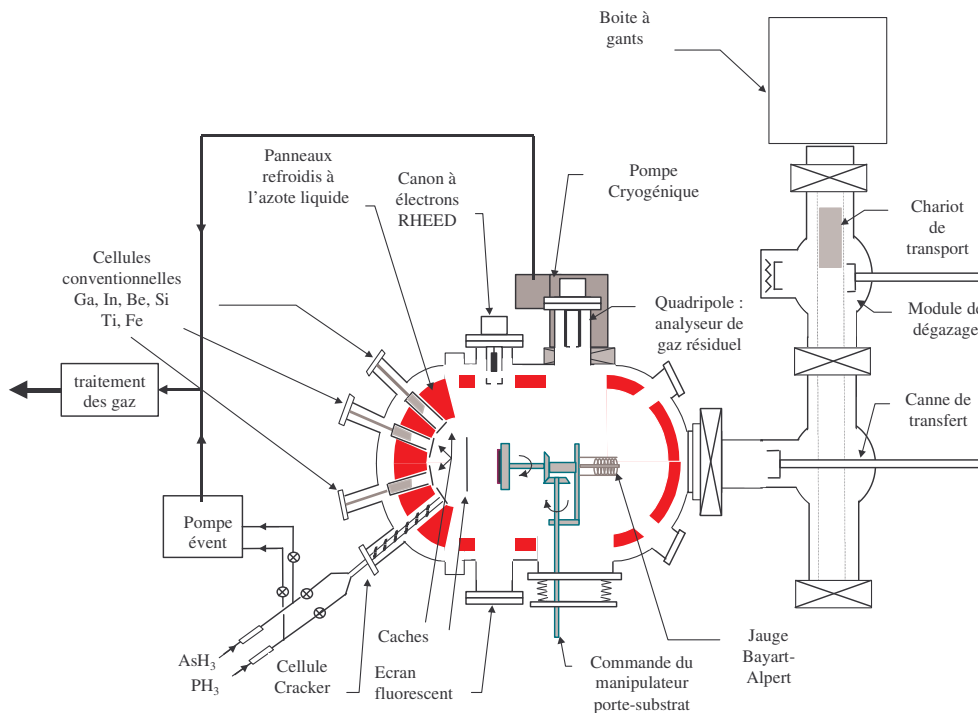


Figure 0-7 : Schéma du bâti d'épitaxie GSMBE RIBER 2300 qui équipe le laboratoire de l'INSA.

### 0.2.2.c La méthode de croissance Stranski-Krastanov

La réalisation de boîtes quantiques par le mode de croissance Stranski-Krastanov (SK), schématisée par la figure 0-8, consiste à déposer un matériau présentant un désaccord

paramétrique plus ou moins important avec le substrat. La croissance est bidimensionnelle (2D) dans les premiers stades du dépôt avec une accumulation de l'énergie élastique de la couche 2D (due à la déformation tétragonale). Celle-ci est appelée *couche pseudomorphique*. Au-delà d'une épaisseur critique, l'énergie accumulée entraîne la relaxation élastique du matériau déposé par la formation spontanée de « boîtes » de tailles quantiques, exemptes de défauts structuraux (boîtes quantiques *cohérentes*). Lorsque la croissance des boîtes se poursuit, une relaxation plastique apparaît, au-delà d'une dimension critique, créant des dislocations au bord des boîtes : ces boîtes quantiques sont alors *incohérentes*.

En dessous d'une épaisseur critique de matériau déposé, les termes d'énergie de surface sont dominants (dans le mode de croissance Stranski-Krastanov) : la couche 2D est stable. L'énergie élastique emmagasinée dans la couche 2D augmente ensuite de façon linéaire avec l'épaisseur de matériau déposé. Au-delà d'une épaisseur critique, le système minimise son énergie totale par formation de boîtes quantiques 3D ( $E_{2D} > E_{\text{îlot}}$ ) permettant une relaxation de la contrainte sur les bords des QDs. La formation des QDs s'effectue néanmoins au prix d'une augmentation de la surface.

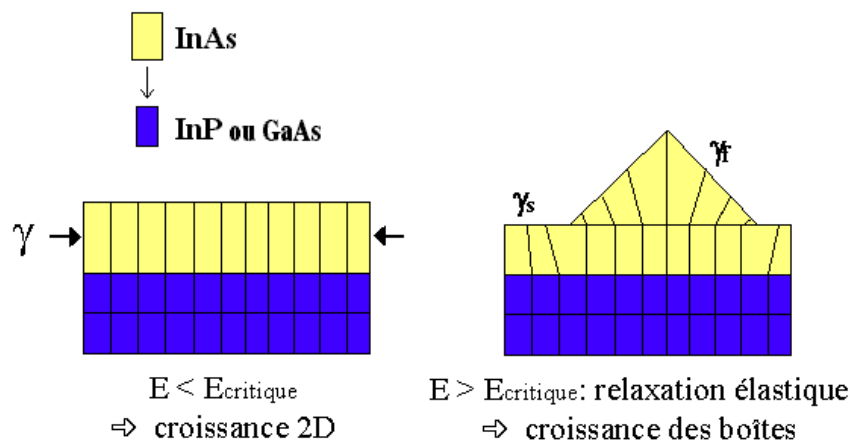


Figure 0-8 : Principe de la croissance de boîtes quantiques par la méthode de Stranski-Krastanov.

Former des boîtes se révèle donc être une compétition entre la diminution de l'énergie élastique emmagasinée dans le matériau contraint (favorable à la formation de boîtes), et l'augmentation de l'énergie de surface. Ces boîtes sont généralement constitués de facettes dont les directions cristallines correspondent à des plans atomiques de faibles indices ( $\{001\}$ ,  $\{011\}$ ,  $\{111\}$ ,...), et dont la formation est peu coûteuse en énergie de surface (par la formation de facettes stables sur les bords de la boîte).

#### 0.2.2.d Les boîtes quantiques InAs/InP (100)

Les études de croissance des boîtes quantiques InAs/InP (100) ont montré la dynamique lente et difficile de formation de ces boîtes en comparaison avec le système InAs/GaAs. Sur substrat InP, le faible désaccord paramétrique entre la couche et le substrat nécessite un recuit sous flux d'arsenic afin d'activer le passage 2D/3D. Les premières études ont montré que l'obtention de QDs 3D fortement dispersées en taille passait préalablement par la formation de plateaux 2D. Cette évolution fut clairement visible en photoluminescence continue. [Carlin92] [Ponchet96] Ces résultats tendent à montrer que la taille moyenne des boîtes quantiques diminue avec la quantité d'InAs déposée au profit d'une augmentation de la densité.

Les études de l'influence des conditions de croissance et de l'empilement de plusieurs plans de couches InAs sur substrat d'InP (100) montrent que la relaxation élastique conduit fréquemment à la formation de fils ou bâtonnets quantiques alignés suivant la direction [0 1 - 1]. [Miska04] [Fossard04] [Létoublon04] [Gendry04] Ces fils quantiques sont intéressants à étudier, et notamment du point de vue de la sensibilité à la polarisation qu'ils engendrent, mais ne rentrent pas dans le cadre de cette thèse.

Afin d'introduire un confinement optique dans les structures lasers à boîtes quantiques, un alliage quaternaire a été développé: le  $\text{Ga}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$  (Q1.18). Cet alliage émet à la longueur d'onde de 1.18  $\mu\text{m}$ , et sera utilisé dans toute la suite de l'étude, sur les différents substrats. Cet alliage constitue le matériau barrière pour les boîtes quantiques. La croissance de fils quantique InAs a été démontré sur un tel alliage pour un substrat InP (100). [Schwertberger02] [Lelarge05] Le travail mené sur les boîtes quantiques InAs/Q1.18/InP (100) a permis de caractériser des boîtes de 70 nm de diamètre et de 15 nm de hauteur (avant encapsulation, c'est-à-dire avant la croissance de la couche d'InP finale), néanmoins fortement dispersées en taille ( $\pm 50\%$ ) [Fréchengues98]. Nous retiendrons finalement que les structures élaborées sur Q1.18/InP(100) sont moins dispersées en taille que celles obtenues sur InP(100). L'élaboration des boîtes quantiques InAs/Q1.18/InP(100) est également plus reproductible.

#### 0.2.2.e les boîtes quantiques InAs/InP (311)B

Nous allons voir dans cette partie, comment, en introduisant le modèle de Tersoff pour les boîtes quantiques, il est démontré que l'utilisation d'un substrat (311)B permet une nucléation préférentielle de ces boîtes plutôt que sur substrat (100). La formation des boîtes quantiques résulte d'une compétition entre la diminution de l'énergie de la couche 2D, par relaxation de la



contrainte accumulée, et l'augmentation de l'énergie de surface du système. Différents modèles théoriques, s'appuyant sur le mode de croissance Stranski-Krastanov, ont été développés afin de formaliser cette transformation. Le modèle de l'instabilité de Grinfeld [Asaro89] [Grilhé93] [Grinfeld86] se révèle être insuffisant pour expliquer le phénomène en tenant compte de tous les paramètres pertinents du problème (dépendance de l'orientation de substrat, morphologie des boîtes, prise en compte de l'influence des marches atomiques, etc...).

Le modèle de Tersoff, [Müller96] [Tersoff93] [Tersoff94] plus complet, est, dans son principe, assez comparable au modèle de nucléation-croissance à partir d'une phase vapeur. Son point fort réside dans la prise en compte de la relaxation d'une partie de l'énergie élastique par les surfaces libres de la boîte et par la déformation du substrat. Il prédit alors, pour une forme de boîte donnée, l'existence d'une barrière énergétique  $E_S$  et d'un volume critique  $V_C$ , au-delà desquels il y a formation de boîtes quantiques stables. L'énergie totale du système s'exprime par :  $E = E_{élas} + E_{surf}$ ,  $E_{surf}$  et  $E_{élas}$  étant respectivement l'énergie de surface et l'énergie élastique.

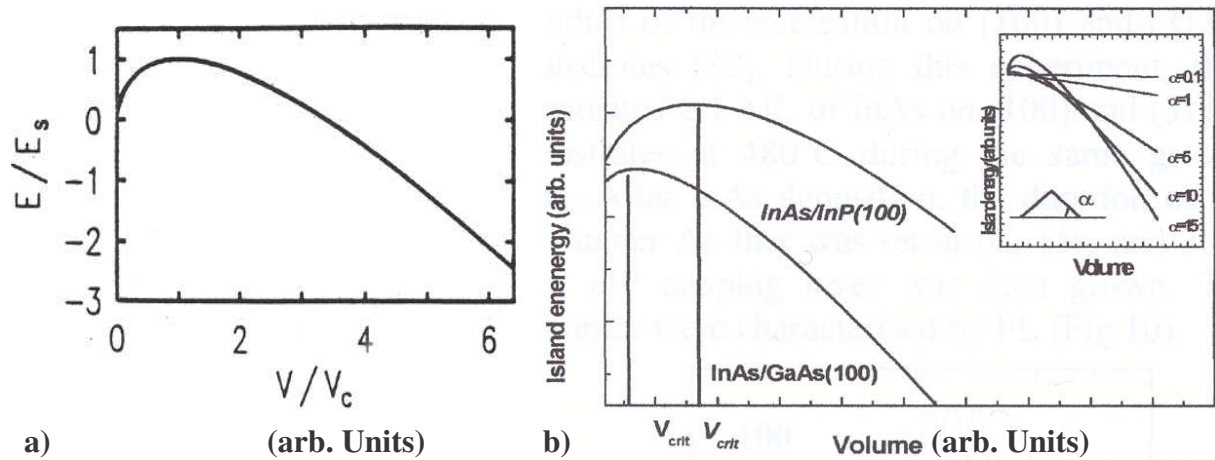


Figure 0-9 : a) Diagramme d'énergie de formation de l'îlot en fonction de son volume d'après Tersoff et al. [Tersoff94]. L'énergie et le volume sont normalisés respectivement à l'énergie d'activation ( $E_{activ}$ ) et au volume critique ( $V_C$ ), b) diagrammes précédents appliqués aux systèmes InAs/InP et InAs/GaAs.

L'énergie totale de formation de l'îlot passe dans ce modèle par un maximum appelé énergie d'activation ( $E_{activ}$ ), correspondant à un volume critique  $V_C$  au-delà duquel se forme une boîte quantique stable (figure 0-9). L'énergie de surface  $E_{surf}$ , l'énergie élastique  $E_{élas}$ , l'énergie d'activation  $E_{activ}$  et le volume critique  $V_C$  s'expriment en fonction du désaccord

paramétrique  $\frac{\Delta a}{a}$  et de la densité d'énergie surfacique  $\Gamma$  de la structure selon les lois d'échelles :

$$E_{\text{élas}} \propto V \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^2 \qquad E_{\text{activ}} \propto \Gamma^3 \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^{-4}$$

$$E_{\text{surf}} \propto \Gamma V^{2/3} \qquad V_c \propto \Gamma^3 \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^{-6}$$

où  $V$  est le volume de la boîte quantique considérée. Ces relations sont définies pour une géométrie de boîte fixée, de volume variable, et une densité d'énergie de surface  $\Gamma$  constante.

Sur substrat GaAs (100), le désaccord paramétrique initial de 7% permet un passage 2D/3D rapide et brutal. Sur substrat InP (100), et en vertu des lois d'échelles précédemment citées, le faible désaccord paramétrique (3.2%) conduit à une augmentation importante du volume critique et de l'énergie d'activation de formation de boîtes quantiques stables.

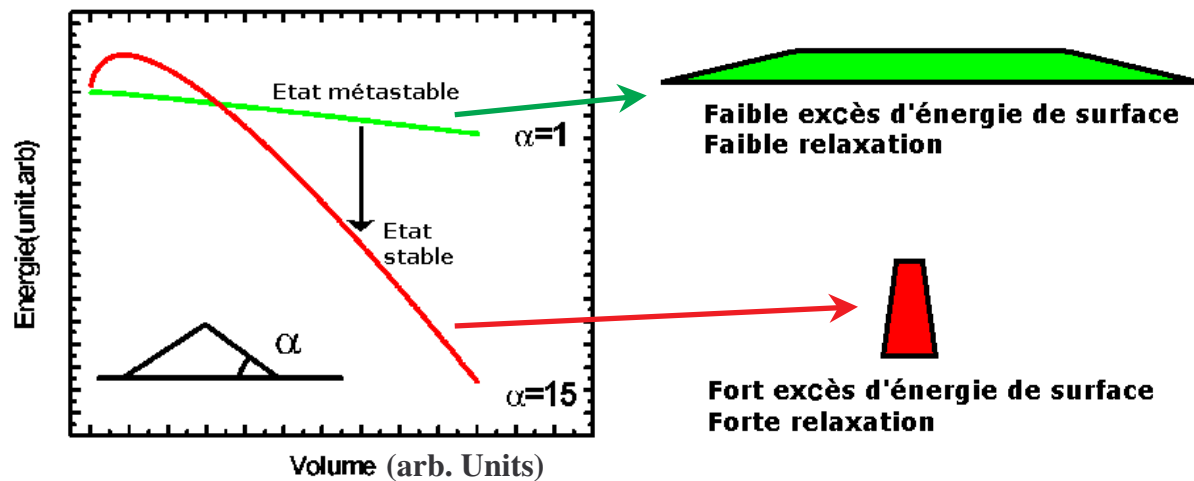


Figure 0-10 : (a) Diagramme d'énergie de formation de l'îlot en fonction de son volume d'après Tersoff et al. [Tersoff94] pour deux boîtes quantiques d'angles à la base  $\alpha = 1$  et  $\alpha = 15$ . Le diagramme montre l'existence d'une plus grande énergie d'activation nécessaire à la formation de boîtes quantiques de hauteur élevée (b).

L'énergie totale à fournir au système pour former une boîte quantique stable est alors plus importante, ce qui rend plus difficile la formation de boîtes d'InAs sur substrat InP(100). Ce point est illustré sur la figure 0-10 (b). Le passage d'une croissance 2D à une croissance 3D observé pour le système InAs/InP (100), par recuit sous flux d'arsenic a été interprété d'après le modèle de Tersoff. Les diagrammes  $E(V)$  de formation de boîtes quantiques coniques sont présentés sur la figure 0-10 en fonction de leur volume pour deux valeurs d'angle à la base  $\alpha$ .

Dans les premiers stades du dépôt, les boîtes quantiques stables sont plates et de forme allongée (proche de plateaux 2D). Elles correspondent à la situation  $\alpha = 1$ . Le recuit sous flux d’Arsenic après le dépôt d’InAs permet, en suivant la courbe  $\alpha = 1$ , de passer la barrière énergétique que forme la courbe  $\alpha = 15$ . La structure, en état d’équilibre métastable, relaxe ensuite vers la courbe d’équilibre stable  $\alpha = 15$ . Cette interprétation concilie avantageusement le modèle de Tersoff avec les différentes observations expérimentales observées dans ce système. [Miska03] Cette procédure, quoique efficace, aboutit à une forte dispersion en taille des boîtes quantiques, et à une densité surfacique assez faible.

Pour se rapprocher d’un comportement équivalent à celui du système InAs/GaAs, la solution consiste, d’après les diagrammes  $E(V)$  précédents, à diminuer le terme d’énergie de surface dans les boîtes InAs/InP. Cela est rendu possible en utilisant un substrat d’InP (311)B, dont l’énergie nominale de surface est supérieure à celle du substrat d’InP (100). Sur InP (311)B, les boîtes quantiques ont tendance à former des facettes de bas indices présentant des densités d’énergie de surface plus faible, et donnant une énergie de surface totale inférieure à celle obtenue pour des boîtes sur InP (100) :  $\gamma_s^{(311)} > \gamma_s^{(100)}$

La figure 0-11 montre à titre de comparaison l’évolution des diagrammes  $E(V)$  de formation des boîtes InAs sur substrat InP (100) et InP (311)B à partir du modèle de Tersoff. Nous y observons directement l’influence de l’énergie de surface qui facilite le passage 2D/3D de l’InAs sur InP(311)B. Nous obtenons alors  $V_c^{(311)} < V_c^{(100)}$  et  $E_{activ}^{(311)} < E_{activ}^{(100)}$ .

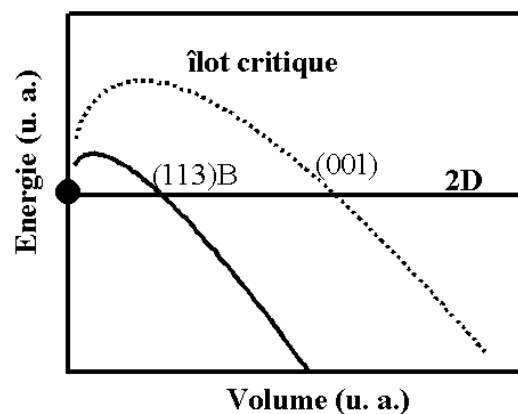


Figure 0-11 : Diagramme d’énergie de formation d’une boîte quantique en fonction de son volume d’après Tersoff et al. [Tersoff94] pour des boîtes InAs/InP(100) et InAs/InP(311)B. Le diagramme montre un volume critique et une énergie d’activation pour les boîtes InAs/InP(311)B inférieurs à ceux des boîtes InAs/InP(100).

La nucléation étant favorisée sur InP(311)B, les boîtes quantiques obtenues pour un dépôt de 2.1 monocouches (MCs) d'InAs sont à la fois plus denses ( $5.10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ), de dimensions réduites (35 nm de diamètre pour une hauteur de 8 nm avant encapsulation), et moins dispersées en taille (figure 0-12). L'influence de différents paramètres de croissance (quantité déposée d'InAs, température de croissance, vitesse de dépôt, temps d'arrêt de croissance, flux d'As<sub>2</sub>,...) sur la morphologie des boîtes et leur distribution en taille a ainsi été étudiée. Les tendances observées dans le système InAs/GaAs sont en général retrouvées. La quantité d'InAs déposée nous permet de contrôler la densité des boîtes (de 1.5 à  $10.10^{10} \text{ îlots.cm}^{-2}$ ), tout en réduisant leur taille moyenne (de 10 à 7 nm pour la hauteur et de 45 à 25 nm pour le diamètre) pour des dépôts d'InAs variant de 0.2 à 3.5 monocouches (figures 0-13 (a) et (b)).

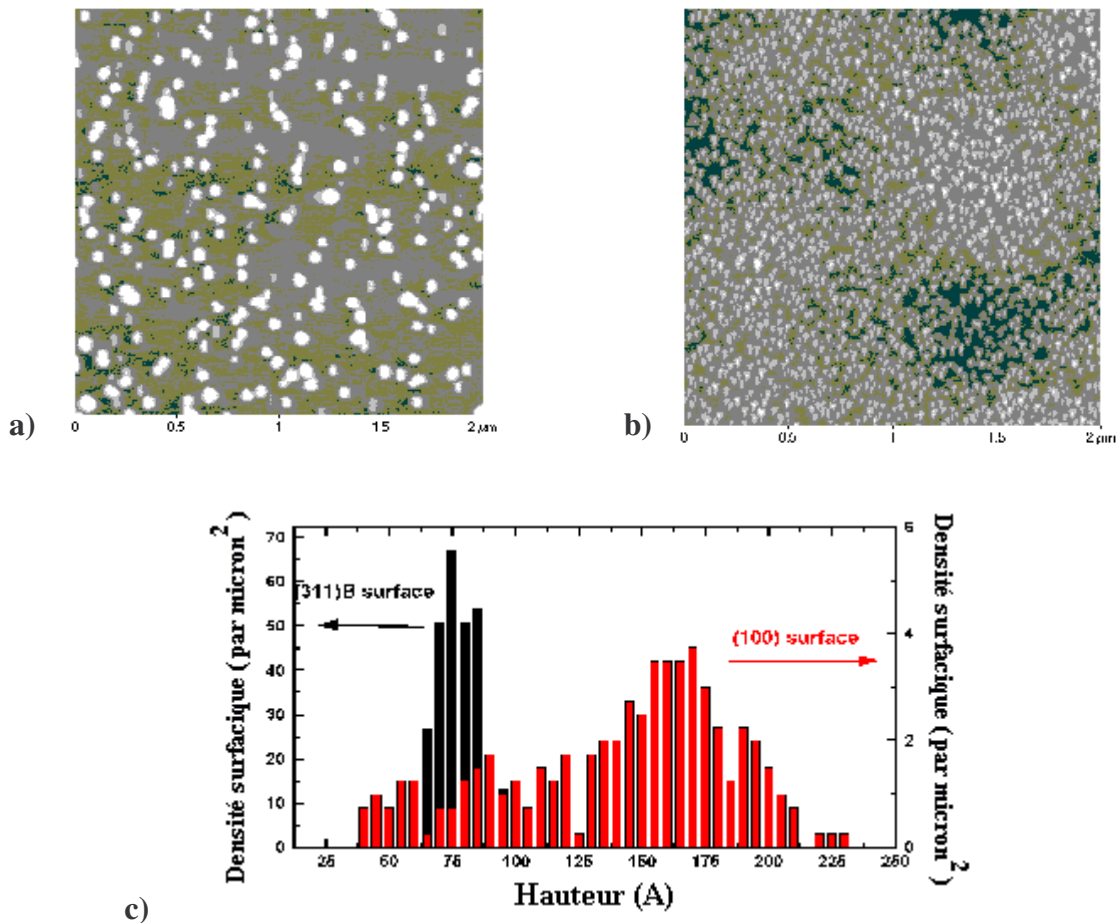


Figure 0-12 : Images obtenues par AFM a) de boîtes InAs/Q1.18/InP(100) et b) InAs/Q1.18/InP (311)B. c) Histogrammes des hauteurs de boîtes formées sur InP(100) (rouge) et InP (311)B (noir), d'après [Fréchengues99].

La diminution du flux d'As a permis, de la même façon, et plus récemment, de réduire la taille des boîtes quantiques tout en augmentant leur densité surfacique. Un chapitre entier

(chapitre 3 sur le couplage latéral) de cette thèse sera consacré à la croissance, et la caractérisation de ces boîtes quantiques à très haute densités, jusqu'à  $1.6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , et l'aspect croissance de ces boîtes quantiques ne sera donc pas abordé ici.

Du point de vue optique, le signal de luminescence de ces boîtes quantiques InAs/InP (311)B est moins large (de 70 meV, contre 150 meV à température ambiante pour les boîtes quantiques obtenues sur InP (100)). Son maximum, centré autour de 0.7 eV, est décalé vers les hautes énergies (figure 0-13 (c)).

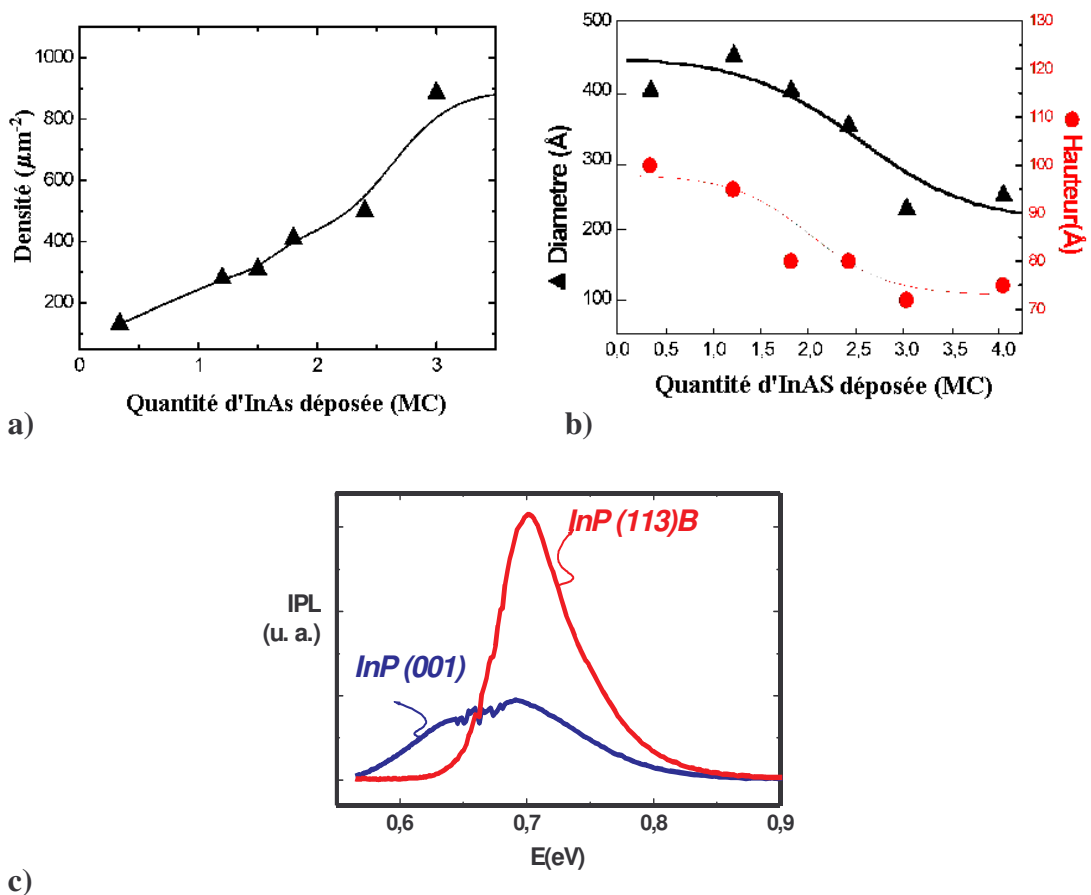


Figure 0-13 : Evolution a) de la densité, b) de la hauteur et du diamètre moyens des boîtes quantiques InAs/Q1.18/InP (311)B,  $T_S = 480^\circ\text{C}$ , 5 cc. c) Spectres de PL de boîtes InAs/InP(100) (bleu) et InAs/Q1.18/InP (311)B,  $T_S = 480^\circ\text{C}$ , 2.1 MC, 5cc (rouge) [Paranthoen01].

0.2.2.f La procédure « double cap » pour le contrôle de la longueur d'onde

Pour les boîtes InAs/InP (311)B, beaucoup plus larges que hautes, le contrôle de la hauteur modifie essentiellement l'énergie de la transition fondamentale  $1Se-1Sh$ . Les modifications du diamètre influent principalement sur les écarts énergétiques entre les sous-niveaux de valence ou de conduction. Pour obtenir une énergie de transition fondamentale de 0.8 eV (1.55  $\mu\text{m}$ ) il convient donc de diminuer la hauteur moyenne des boîtes. Les paramètres de croissance (température, quantité déposée,...) ne permettent pas un contrôle de la hauteur moyenne des boîtes indépendamment de la densité surfacique et du diamètre. Un procédé original de croissance a donc été mis au point au laboratoire [Paranthoen01] : la croissance du double-cap (DC), dont le principe est schématisé sur la figure 0-14 pour des boîtes InAs/InP/InP (311)B.

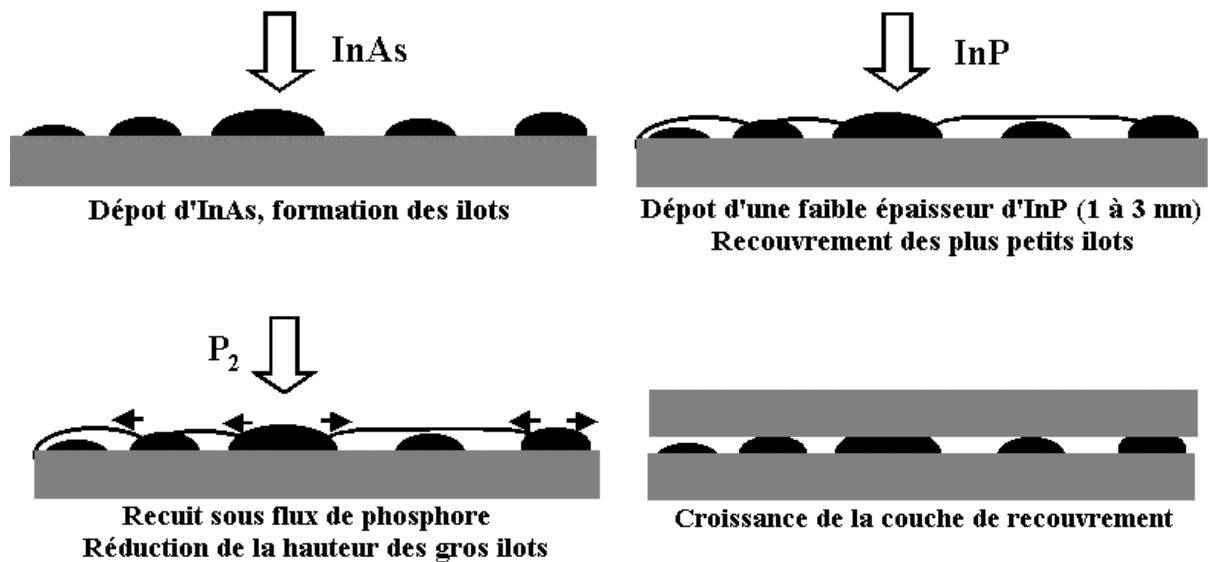


Figure 0-14 : Etapes successives de la croissance des boîtes InAs/InP(113)B par la méthode du double-cap.[Paranthoen01]

Après la formation des boîtes, une fine couche d'InP (entre 1 et 4 nm), appelée *premier cap*, est déposée de manière à recouvrir entièrement les plus petites boîtes tout en laissant le sommet des plus grosses non recouvert. Un recuit sous flux de Phosphore transforme ensuite cette partie non recouverte des grosses boîtes d'InAs en alliage ternaire InAsP. Un transport de matière favorisé par l'état de contrainte de InAsP au dessus des boîtes mène à un lissage de la surface, réduisant ainsi la hauteur effective des grosses boîtes d'InAs. Les petites boîtes, totalement recouvertes, sont protégées par le premier cap d'InP. Leur hauteur n'est donc pas

modifiée pendant la phase de recuit. La croissance se termine par le dépôt d'une couche d'InP supplémentaire afin de pouvoir caractériser les structures obtenues.

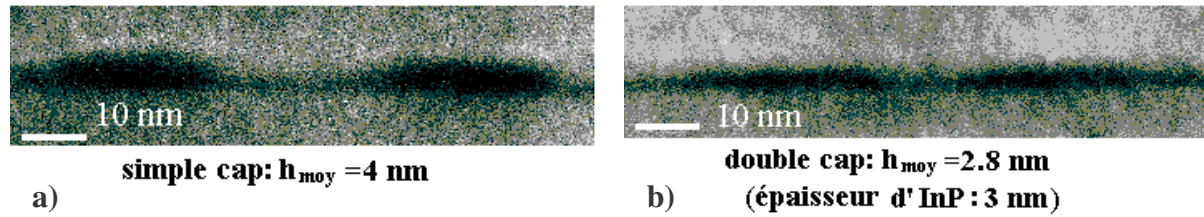


Figure 0-15 : Images obtenues par TEM de boîtes InAs/InP(311)B a) élaborés de façon standard et b) élaborés par la méthode du double-cap.

Cette méthode de croissance astucieuse permet de réduire la hauteur maximale des boîtes, et de diminuer par conséquent leur hauteur moyenne. Cet effet est visible sur les clichés obtenus par microscopie électronique en transmission (TEM) de boîtes sans (figure 0-15 (a)) et avec la méthode du double-cap (figure 0-15 (b)).

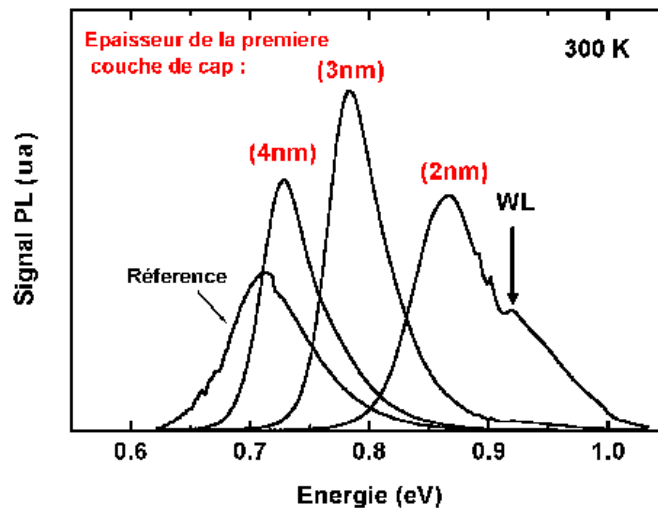


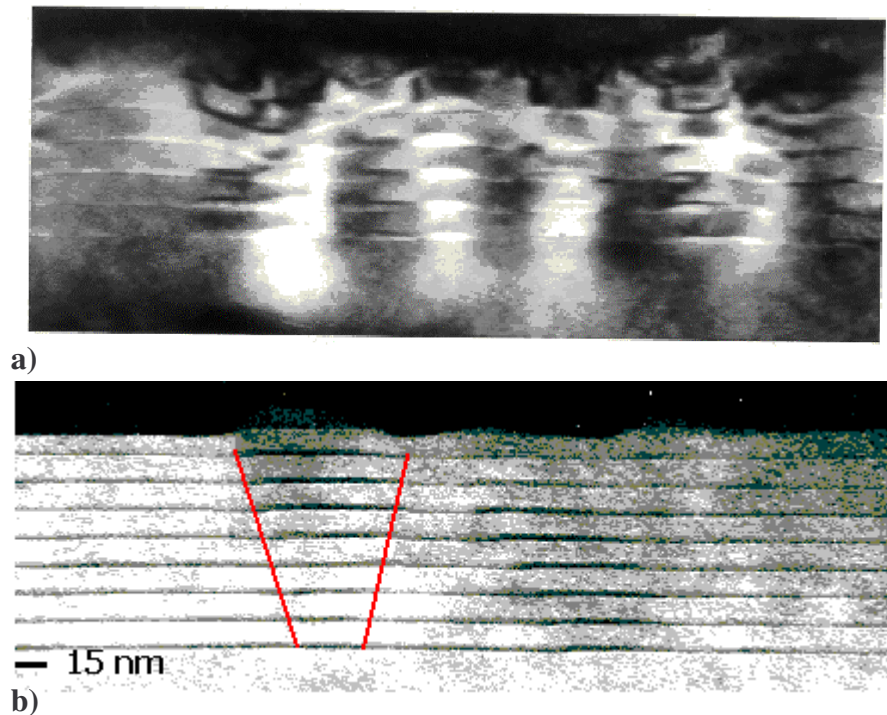
Figure 0-16 : Spectres de photoluminescence à température ambiante des boîtes de référence (non double-cap) et de boîtes élaborées par la méthode du double-cap avec des premiers cap d'InP de 4, 3 et 2 nm d'épaisseur.

[ParanthoenTh01]

L'énergie de luminescence de la transition fondamentale se décale alors en fonction de la hauteur du premier cap d'InP. Une énergie de 0.8 eV (1.55  $\mu\text{m}$ ) à température ambiante est atteinte pour un premier cap d'InP de hauteur 3 nm (figure 0-16). En réduisant la dispersion en taille des boîtes quantiques, la méthode du double-cap conduit, de façon générale, à des largeurs à mi-hauteur du signal de photoluminescence plus faibles (jusque 45 meV à température ambiante pour un premier cap de hauteur 3 nm) par rapport à celles des structures non double-cap.

La hauteur du premier cap correspond en principe à la hauteur maximale des boîtes une fois « tronquées » par le recuit sous flux de phosphore. En réalité, la morphologie des boîtes peut être modifiée par l'apparition durant la croissance de phénomènes de ségrégation des espèces, de transport de matière exalté par la contrainte inhomogène à la surface de croissance, *etc.*... Nous assimilerons néanmoins, dans la suite du manuscrit, et en première approximation, cette hauteur de la couche de premier cap à la hauteur moyenne des boîtes double-cap.

Les résultats donnés jusqu'ici décrivent l'analyse d'un plan unique de boîtes quantiques. L'obtention d'un gain laser nécessitant néanmoins l'insertion d'un empilement de plans de boîtes quantiques dans la zone active, des études d'empilement de plans de celles-ci ont donc été menées sur les différents types de boîtes du laboratoire. Les deux principaux résultats concernant le double cap et les empilements sont montrés sur la figure 0-17.



*Figure 0-17 : Images obtenues par TEM a) d'un empilement de six plans de boîtes InAs/InP(311)B et b) d'un empilement de neuf plans de boîtes InAs/InP(311)B double-cap. Le rayon moyen des boîtes augmente de plan en plan, l'augmentation est symbolisée par les deux lignes ajoutées sur la figure.*

L'image obtenue par TEM d'un empilement de boîtes standards (élaborés sans la méthode double-cap) montre une forte dégradation des couches à partir du troisième plan (figure 0-19 (a)). La morphologie des boîtes se modifie avec la formation de grosses boîtes relaxées et une ondulation de la couche de mouillage apparaît.



Pour l'empilement des boîtes InAs/InP (311)B double-cap en revanche, la situation se présente plus favorablement (figure 0-17 (b)). L'empilement de neuf plans de boîtes quantiques (réalisé ici à 480°C) est possible sans dégradation structurale notable. La croissance double-cap permet d'éviter la relaxation plastique des QDs en limitant leur hauteur. L'empilement des plans de boîtes semble néanmoins engendrer une augmentation de la valeur de leur rayon (approximativement indiquée par des traits continus sur la figure 0-17 (b)).

*Nous avons montré dans ce chapitre que les boîtes quantiques pouvaient être utilisées dans de nombreuses applications, tout en augmentant leur performance, et permettent même de d'exploiter de nouvelles propriétés physique dans de nouveaux type d'applications (calcul quantique). La technique d'élaboration des boîtes quantiques a également été abordée succinctement, en essayant de poser les principaux problèmes, et solutions envisagées. La technique du double cap essentielle pour la suite de ce travail de thèse a été présentée, ainsi que la nécessité d'utiliser un substrat d'orientation (311)B pour augmenter la densité surfacique des boîtes quantiques formées.*

---

# CHAPITRE 1

---

## 1. Propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques : Théorie

Nous présentons dans ce chapitre les résultats de calculs de type **k•p** incluant contraintes et champ piézoélectrique, permettant de décrire les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques (QDs). Nous nous intéressons dans un premier temps à la description de la méthode de calcul utilisée. Les paramètres d'entrée et de sortie du calcul sont ainsi définis. Puis nous appliquons cette méthode à des cas simples dans l'approximation **k•p** 1 bande, et montrons comment ces calculs permettent d'obtenir une première description rapide mais limitée de la structure électronique des boîtes pour différents systèmes (InAs/InP, InAsSb/InP, etc...). Enfin, à l'aide du calcul complet **k•p** huit-bandes en coopération avec la Technische Universität Berlin (TUB), une description de la structure fine des boîtes quantiques InAs/InP est donnée pour différentes hauteurs de boîtes et sur différents substrats (100) et (311)B. Les effets à N-corps de type excitoniques et multi-excitoniques sont également décrits.

## 1.1 Le calcul $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ pour les hétérostructures

Cette partie a pour but de décrire la méthode de calcul utilisée dans ce travail de thèse. Le détail des calculs est en particulier présenté dans la thèse de Doctorat d'O. Stier. [Stier00]

### 1.1.1 Introduction et principe du calcul

#### 1.1.1.a La méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ pour les semi-conducteurs massifs

La structure de bande des matériaux massifs a été largement étudiée tant d'un point de vue expérimentale (photospectroscopie de rayons X) [Ley74], que d'un point de vue théorique. La méthode des pseudo-potentiels, en particulier, a montré un excellent accord entre théorie et expérience, et permis une meilleure compréhension des propriétés électroniques des semi-conducteurs.[Chelikowski76] [Yu96] [Landolt82] Cette méthode permet de modéliser l'interaction entre le réseau cristallin et un électron délocalisé. Le potentiel total subi par l'électron correspond dans ce cas à la somme des potentiels sur tous les atomes du réseau. Une première approche du problème consiste à utiliser une approche abinitio pour les pseudo-potentiels avec une fonctionnelle de la densité électronique, mais ce type de calculs est déjà très lourd à mettre en place pour les semiconducteurs massifs, et encore plus pour les hétérostructures et les systèmes non-périodiques.[Bester05] Une autre méthode de type pseudo-potentiels empiriques (EP) a également été développée, permettant de décrire les matériaux massifs avec une grande précision, et un peu moins coûteuse en temps de calcul, mais toujours limitée quand il s'agit de traiter le cas des hétérostructures.

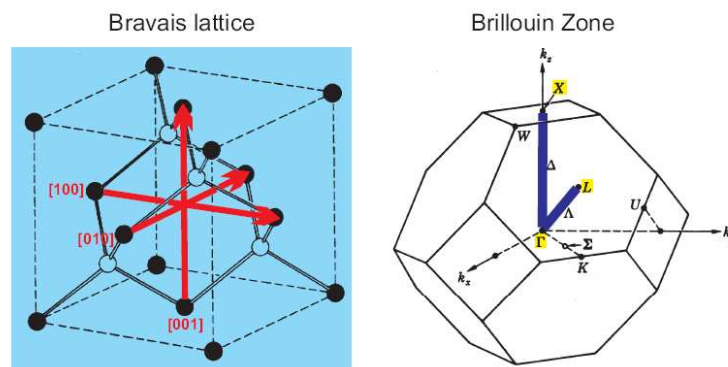
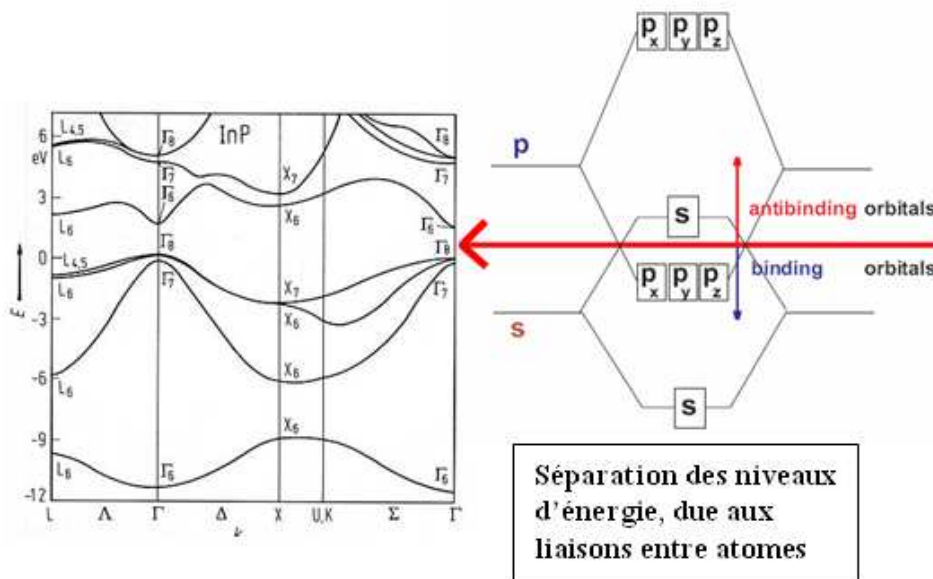


Figure 1-1 : Réseau de Bravais (a) et zone de Brillouin (b) pour la structure Zinc-Blende.

Le semi-conducteur de référence, substrat utilisé dans ce travail de thèse, est l'InP, semi-conducteur à gap direct dont la structure cristalline est de type Zinc-Blende (cf. figure 1-1). Dans ce travail, nous nous intéressons tout particulièrement à la description de la structure électronique en centre de zone (point  $\Gamma$  en  $\mathbf{k} = 0$ ), ce qui réduit considérablement le champ

d'étude de notre système. En effet, dans le cas d'un peuplement thermique des bandes à température non nulle, la description de la structure de bande en centre de zone  $\Gamma$  joue alors un rôle essentiel dans la compréhension des transitions optiques dans un semi-conducteur direct. Etant donnée la grande différence en énergie entre les transitions en  $\Gamma$  et les transitions dans d'autres vallées (L ou X par exemple) représentées sur la figure 1-2, le comportement des propriétés optiques de tels semi-conducteurs est essentiellement relié à la structure de bande au point  $\Gamma$ , même dans le cas d'un peuplement des niveaux d'énergie hors équilibre (effet laser par exemple).



*Figure 1-2 : Structure de bandes calculée par une méthode de pseudo-potentiels pour InP (a), [Cohen89] et représentation schématique des niveaux d'énergie liants ou antiliants de type s et p associés à la création des liaisons atomiques (b). [Stier00]*

La méthode EP permet de représenter la structure de bandes d'un matériau tel qu'InP avec peu de paramètres ajustables. La méthode des perturbations appliquée au voisinage d'un point de la zone de Brillouin est appelée méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ . Elle doit permettre de décrire correctement la structure de bandes autour de  $\Gamma$ , avec un nombre comparable de paramètres d'entrée du calcul. D'après la structure de bandes présentée dans la figure 1-2, la décomposition de la fonction d'onde électronique sur les états s et p semble être adaptée au problème. Ainsi, une base de huit fonctions de Bloch  $s\uparrow$ ,  $x\uparrow$ ,  $y\uparrow$ ,  $z\uparrow$ ,  $s\downarrow$ ,  $x\downarrow$ ,  $y\downarrow$ ,  $z\downarrow$ , permet d'appliquer ce modèle de perturbations. x, y, et z sont les fonctions de Bloch de type p, suivant les trois directions du cristal, et les flèches  $\uparrow$  et  $\downarrow$  sont utilisées pour les deux états de spins opposés. Le Hamiltonien permettant de décrire les électrons dans la bande de conduction (CB)  $\Gamma_6$  ou dans les bandes de

valence (VB)  $\Gamma_7$  et  $\Gamma_8$  est ainsi défini par la fameuse méthode **k•p** huit-bandes. [Gershoni93] [Kane82] [Stier00] [Bahder90] [Bahder92] [Enders95a] [Enders95b] [Chuang95] [Sauvage02]

### 1.1.1.b Le Hamiltonien **k•p** huit-bandes

L'application de la méthode **k•p** ne peut être valide que dans le cadre de l'approximation de la fonction enveloppe.[Kane82] [Altarelli86] [Bastard88] Le théorème de Bloch stipule que la fonction d'onde électronique dans un réseau cristallin cohérent et possédant des symétries de translation, peut-être séparée en deux parties indépendantes. La première partie (fonction de Bloch), possède la périodicité du réseau cristallin, et varie donc sur des courtes distances. La deuxième partie est remplacée dans les hétérostructures par une fonction appelée « fonction enveloppe », . Par la théorie des perturbations de Löwdin, les fonctions de Bloch (oscillant à courte distance) peuvent être éliminées du Hamiltonien électronique, laissant les propriétés électroniques ne dépendre que de la fonction enveloppe.

Pour illustration, le Hamiltonien **k•p** électronique à une bande peut s'écrire sous la forme :

$$H_{kp} = H_0 + H'$$

$$\text{Avec } H_0 = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \text{ et } H' = \frac{\hbar}{m} \vec{k} \cdot \hat{p} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

La théorie des perturbations est alors appliquée en traitant le second terme H' (provenant de la simplification par les fonctions de Bloch) en tant que perturbation du premier  $H_0$ .

Dans le modèle de Kane [Kane82], la base de fonctions d'onde (fonctions enveloppe) choisie {  $\Psi$  } est définie par :

$$\{\Psi\} = \{ |\Psi_{s\uparrow}\rangle, |\Psi_{x\uparrow}\rangle, |\Psi_{y\uparrow}\rangle, |\Psi_{z\uparrow}\rangle, |\Psi_{s\downarrow}\rangle, |\Psi_{x\downarrow}\rangle, |\Psi_{y\downarrow}\rangle, |\Psi_{z\downarrow}\rangle \}$$

Dans cette base de fonctions d'ondes, le Hamiltonien **k•p** huit-bandes possède une structure en blocs du type :

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} G(\vec{k}) & \Gamma \\ -\bar{\Gamma} & \bar{G}(-\vec{k}) \end{pmatrix}$$

où G et  $\Gamma$  sont des matrices 4x4 agissant alternativement sur les fonctions d'onde de la base de type  $\uparrow$  ou  $\downarrow$ . La matrice  $\Gamma$  permet de coupler les spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$  par l'intermédiaire de l'interaction de Spin-Orbite (SO), responsable de la séparation des bandes  $\Gamma_8$  et  $\Gamma_7$  d'un écart de  $\Delta_0$  :

$$\Gamma = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \Delta_0/3 \\ 0 & 0 & 0 & -i\Delta_0/3 \\ 0 & -\Delta_0/3 & i\Delta_0/3 & \Delta_0/3 \end{pmatrix}$$

La matrice G, elle, peut se décomposer en plusieurs contributions : une partie d'énergie potentielle  $G_1$ , une partie d'énergie cinétique  $G_2$ , une partie provenant de l'interaction SO  $G_{SO}$ , et une partie dépendante des déformations  $G_{st}$  issue de l'Hamiltonien de Pikus-Bir : [Gershoni93] [Bahder90] [Enders95b] [Bir74]

$$G = G_1 + G_2 + G_{SO} + G_{st}$$

avec les expressions suivantes pour les différentes contributions :

$$G_1 = \begin{pmatrix} E_C & iPk_x & iPk_y & iPk_z \\ -iPk_x & E'_V & 0 & 0 \\ -iPk_y & 0 & E'_V & 0 \\ -iPk_z & 0 & 0 & E'_V \end{pmatrix}$$

$$G_2 = \begin{pmatrix} A|\vec{k}|^2 & Bk_y k_z & Bk_x k_z & Bk_x k_y \\ Bk_y k_z & L'k_x^2 + M(k_y^2 + k_z^2) & N'k_x k_y & N'k_x k_z \\ Bk_z k_x & N'k_x k_y & L'k_y^2 + M(k_x^2 + k_z^2) & N'k_y k_z \\ Bk_x k_y & N'k_x k_z & N'k_y k_z & L'k_z^2 + M(k_x^2 + k_y^2) \end{pmatrix}$$

$$G_{SO} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -i\Delta_0/3 & 0 \\ 0 & i\Delta_0/3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$G_{st} = \begin{pmatrix} a_c(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) & b'\varepsilon_{yz} - iP\varepsilon_{xj}k^j & b'\varepsilon_{zx} - iP\varepsilon_{yj}k^j & b'\varepsilon_{xy} - iP\varepsilon_{zj}k^j \\ b'\varepsilon_{yz} + iP\varepsilon_{xj}k^j & l\varepsilon_{xx} + m(\varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) & n\varepsilon_{xy} & n\varepsilon_{xz} \\ b'\varepsilon_{zx} + iP\varepsilon_{yj}k^j & n\varepsilon_{xy} & l\varepsilon_{yy} + m(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{zz}) & n\varepsilon_{yz} \\ b'\varepsilon_{xy} + iP\varepsilon_{zj}k^j & n\varepsilon_{xz} & n\varepsilon_{yz} & l\varepsilon_{zz} + m(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}) \end{pmatrix}$$

où la notation J est utilisée pour décrire une sommation d'Einstein avec permutation sur les différents indices  $J = x, y, z$ . Dans le cas de matériaux semi-conducteurs contraints, les termes  $\varepsilon_{ij}$  sont les composantes du tenseur des déformations.[Saada89] Ainsi, il est possible de déterminer :[Gershoni93][Kane82] l'énergie de la bande de conduction  $E_C$ ,

$$E_C = E_V + V_{ext} + E_0$$

l'énergie absolue et moyenne de la bande de valence  $E'_v$ ,

$$E'_v = E_v + V_{ext} - \frac{\Delta_0}{3}$$

tous les paramètres de Kane  $A'$ ,  $L'$ ,  $M$ ,  $N'$  et  $P$ ,

$$A' = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left( \frac{1}{m_e} - \left( \frac{E_p}{E_0} \right) \frac{E_0 + (2\Delta_0/3)}{E_0 + \Delta_0} \right)$$

$$P = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m_0} E_p}$$

$$L' = \frac{P^2}{E_0} - \frac{\hbar^2}{2m_0} (1 + \gamma_1 + 4\gamma_2)$$

$$M = -\frac{\hbar^2}{2m_0} (1 + \gamma_1 - 2\gamma_2)$$

$$N' = \frac{P^2}{E_0} - \frac{3\hbar^2}{m_0} \gamma_3$$

ainsi que les coefficients  $l$ ,  $m$  et  $n$  :

$$l = 2b_v + a_c - a_g$$

$$m = a_c - a_g - b_v$$

$$n = \sqrt{3}d_v$$

Dans ces différentes grandeurs interviennent ainsi les paramètres  $E_0$ , gap du matériau considéré,  $\Delta_0$  l'énergie de SO,  $E_p$  le paramètre de Kane des transitions optiques entre VB et CB,  $E_v$  l'énergie de la VB,  $m_e$  la masse électronique en centre de zone,  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  et  $\gamma_3$  les paramètres de Luttinger,  $B$  le paramètre de Kane,  $a_c$  le potentiel de déformation hydrostatique dans la CB,  $a_g$  le potentiel de déformation hydrostatique du gap,  $b_v$  et  $d_v$  les potentiels de déformation uniaxiaux suivant les deux directions du cristal,  $b'$  le paramètre de couplage entre les énergies de CB et les contraintes de cisaillement, et pour finir,  $V_{ext}$  un potentiel scalaire optionnel, permettant de décrire l'effet d'un champ externe sur le matériau considéré (par exemple un champ électrique du à une jonction p-n, à un effet piézoélectrique, ou un champ magnétique). Une discussion détaillée sur le choix de ces paramètres est présentée dans le manuscrit de thèse d'O. Stier.[Stier00] Il faut noter que ces paramètres sont connus en général

à basse température ( $T = 0$  K). Pour obtenir certains paramètres équivalents à température ambiante, il est possible d'utiliser des formules données dans la littérature.[Vurgaftman01] Il est toutefois intéressant d'effectuer si possible une comparaison avec des données expérimentales de spectroscopie basse température, étant donnée la difficulté d'interprétation des effets thermiques sur les hétérostructures.

### *1.1.1.c Cas des hétérostructures*

Dans le cas des hétérostructures (puits quantiques, fils quantiques, ou QDs), la deuxième partie de la fonction d'onde présentée précédemment ne varie au plus que sur des distances mésoscopiques, et est appelée fonction enveloppe. Les paramètres propres aux matériaux deviennent dépendants des coordonnées d'espace. Des produits du type  $Qk_i$  ou  $Qk_i k_j$  apparaissent alors dans la matrice  $G$ , où  $Q$  représente un paramètre du matériau, et  $k_i, k_j$  des composantes du vecteur d'onde suivant  $x, y$  ou  $z$ . Afin de retrouver l'hermiticité du Hamiltonien dans les hétérostructures, une symétrisation de ces produits est préférable. La forme choisie est en général :

$$\begin{aligned} Qk_i &\rightarrow (Qk_i + k_i Q)/2 \\ Qk_i k_j &\rightarrow (k_i Qk_j + k_j Qk_i)/2 \\ &i, j = x, y, z \end{aligned}$$

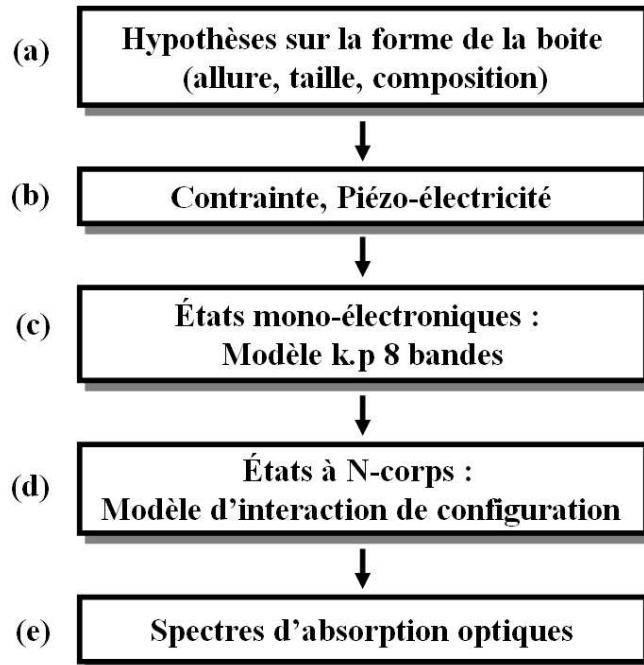
Cette symétrisation a deux avantages majeurs, car elle permet une conservation du flux de probabilité aux interfaces de l'hétérostructure considérée,[Baraff91] et permet également de traiter le problème de l'inhomogénéité de la contrainte dans une telle hétérostructure (primordial pour les QDs).[Zhang94]

### *1.1.1.d Etapes de calcul*

A partir du Hamiltonien présenté précédemment, les propriétés excitoniques sont calculées pour ces boîtes quantiques, à l'aide d'une implémentation à 3D du modèle  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ , et de la méthode des interactions de configuration. Les effets de contraintes et déformations inhomogènes, de champ piézo-électrique, des interactions inter- et intrabandes et des interactions Coulombiennes sont pris en compte.[Stier99] [Rodt05] Une représentation des 5 étapes développées dans le calcul est illustrée sur la figure 1-3. (a) La simulation commence par la formulation d'hypothèses sur la forme, la taille, et la composition des boîtes, guidée par les caractérisations structurales présentées dans les parties précédentes (AFM, X-STM). (b) Par la suite, les distributions spatiales des contraintes/déformations, et du potentiel piézo-électrique sont calculées et deviennent des paramètres d'entrée pour (c) le hamiltonien  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes. En résolvant l'équation de Schrödinger, les fonctions d'onde monoélectroniques



sont ainsi déterminées. Enfin, ces fonctions sont utilisées comme fonctions d'onde de base pour (d) le modèle d'interaction de configuration, appliqué ici pour calculer les propriétés excitoniques, incluant les phénomènes de corrélation et d'échange.[Rodt05] [Seguin05] (e) Les spectres d'absorption excitoniques sont finalement calculés.



*Figure 1-3 : Les 5 étapes servant à la modélisation des propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques, à partir des investigations structurales.*

### 1.1.2 Les paramètres d'entrée du calcul

#### 1.1.2.a Calcul des déformations

Le calcul des déformations possède plusieurs degrés d'approximation. Dans une première approche simple et peu coûteuse en temps de calcul, l'hypothèse de la contrainte homogène à l'intérieur de la boîte quantique peut-être considérée. Dans ce cas, la déformation ne dépend pas des coordonnées spatiales. Aucune relaxation des contraintes n'est alors envisagée, ce qui entraîne une déformation nulle en dehors de l'hétérostructure envisagée, et une valeur constante non nulle à l'intérieur. Les valeurs utilisées pour décrire la déformation dans l'hétérostructure sont alors directement liées aux coefficients d'élasticité  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$  du matériau à l'intérieur de la boîte, et au désaccord de maille dans l'hétérostructure.[MiskaJPC02]

Pour une description plus précise des déformations, il est nécessaire d'introduire la non-inhomogénéité de la répartition des contraintes. Dans ce cas, nous utilisons le modèle CM

(Continuum Mechanical model). L'énergie élastique de déformation dans le modèle CM est donnée localement par :[Saada89]

$$U_{CM} = \frac{1}{2} \sum_{i,j,k,l} C_{ijkl} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} .$$

Pour une structure donnée, l'énergie totale est minimisée. La méthode des différences finies est appliquée sur les termes de déformation  $\varepsilon_{ij} = \partial u_i / \partial x_j$ , où  $\mathbf{u}$  est le champ de vecteur relatif au déplacement. Les  $C_{ijkl}$  sont les constantes élastiques pour un cristal cubique. (valeurs mesurées sur InP :  $C_{11} = 101$  GPa;  $C_{12} = 56$  GPa;  $C_{44} = 46$  GPa).[Nichols80] Le calcul est effectué pour un volume appelé « boîte de calcul » contenant la boîte quantique et une partie du substrat. Les conditions aux limites sont imposées par la continuité du tenseur des contraintes.

### 1.1.2.b Effet piézoélectrique et brisure de symétrie sur substrat (100)

Le modèle de contrainte choisi est un modèle continu, et rend partiellement compte de la symétrie cubique du cristal considéré. Dans le cas d'un système isotrope,  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$  répondent à la condition  $C_{44} = (C_{11}-C_{12})/2$ . La symétrie des déformations dépend alors de la géométrie de l'hétérostructure considérée ( $C_{\infty v}$  pour un cône ou une forme lenticulaire à base circulaire,  $C_{4v}$  pour une pyramide à base carrée). Dans le cas du système cubique ( $C_{44} \neq (C_{11}-C_{12})/2$ ), la symétrie des déformations dépend à la fois de la géométrie de l'hétérostructure et de la symétrie du système : pour un cône ou une lentille à base circulaire dont l'axe de symétrie coïncide avec un axe cristallographique, la symétrie des déformations est réduite de  $C_{\infty v}$  à  $C_{4v}$ ; pour une pyramide tronquée, la symétrie reste  $C_{4v}$ . Pour tenir compte dans le cadre du modèle continu de la symétrie  $C_{2v}$  du cristal de type Zinc-Blende considéré, il faut ajouter l'effet de charge piézoélectrique. [Hübner73] [Zeller74] [DeGironcoli89] [DeGironcoli90] [Grundmann95] A partir du tenseur des déformations ( $\varepsilon_{ij}$ ), et de la composante du tenseur piézoélectrique  $e_{14}$ , la densité de charges piézoélectriques est ainsi calculée :

$$\rho_p(\vec{r}) = \text{div}[e_{14}(\vec{r}) \cdot \{\varepsilon_{YZ} + \varepsilon_{ZY}, \varepsilon_{XZ} + \varepsilon_{ZX}, \varepsilon_{XY} + \varepsilon_{YX}\}(\vec{r})]$$

où x, y et z représentent les axes cristallographiques de la maille de type Zinc-Blende. Cette équation permet donc d'introduire la symétrie  $C_{2v}$  dans le Hamiltonien, même si ( $\varepsilon_{ij}$ ) possède la symétrie  $C_{4v}$  (pyramide à base carrée), où même la symétrie  $C_{\infty v}$  (cône ou lentille à base circulaire). Nous verrons par la suite que la plus importante conséquence de l'inclusion des charges piézoélectriques dans le calcul est l'expansion préférentielle suivant [0 1 1] de la

fonction d'onde électronique comparée à celle suivant [0 1 -1]. Cela induit une levée de dégénérescence des états P de boîtes initialement dégénérés pour une symétrie  $C_{4v}$  ou  $C_{\infty v}$ . Une expression du potentiel piézoélectrique peut être déduite de la densité de charges ainsi calculée, en utilisant l'équation de Poisson :

$$\rho_p(\vec{r}) = \epsilon_0 \nabla [\epsilon_s(\vec{r}) \nabla V_p(\vec{r})]$$

$$\Leftrightarrow \Delta V_p(\vec{r}) = \frac{\rho_p(\vec{r})}{\epsilon_0 \epsilon_s(\vec{r})} - \frac{1}{\epsilon_s(\vec{r})} \nabla V_p(\vec{r}) \cdot \nabla \epsilon_s(\vec{r})$$

où  $\epsilon_s$  représente ici la constante diélectrique statique du matériau considéré à la position  $\mathbf{r}$ . La figure 1-4 ci-dessous représente les charges et potentiels piézoélectriques d'une boîte quantique InAs/GaAs pyramidale, mettant ainsi en évidence la nécessité de prendre en compte l'effet piézoélectrique afin de rendre compte de la symétrie du problème considéré.

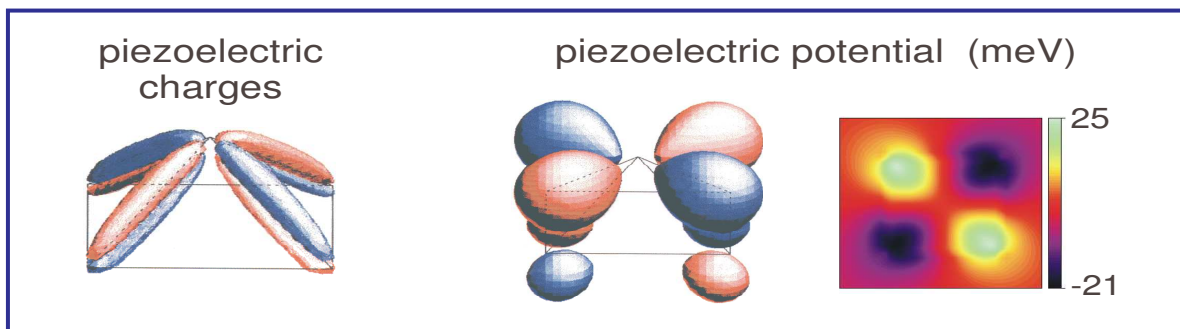


Figure 1-4 : Potentiel et charges piézoélectriques d'une boîte quantique pyramidale InAs/GaAs [Stier00]

Il faut noter que dans le cas où une approche atomistique des déplacements est utilisée (par exemple de type « Valence Force Field » (VFF)), la symétrie  $C_{2v}$  apparaît même en l'absence d'effet piézoélectrique. O. Stier a néanmoins montré que les calculs de type VFF et CM donnaient des résultats similaires pour les déformations dans les boîtes InAs/GaAs.[Stier00] Une étude récente montre toutefois que pour une surface orientée selon (100), pour des pyramides InAs/GaAs de facteur de forme (rapport hauteur/base) élevé, la prise en compte du terme de piézoélectricité n'est pas suffisante.[Bester05] En ajoutant les relaxations atomiques et les asymétries d'interfaces, il est même possible d'obtenir une levée de dégénérescence des états P en sens opposé. Pour des facteurs de forme plus faibles et des formes lenticulaires, la levée de dégénérescence est plus faible et les effets de relaxation atomique ou d'interface sont plus faibles que l'effet piézoélectrique.

### 1.1.2.c Géométrie et composition

La géométrie choisie pour la boîte est d'une grande importance dans l'étude de ses propriétés électroniques et optiques. En effet, l'extension de la fonction d'onde dans la boîte est directement liée à sa géométrie. Ainsi, diverses géométries peuvent être envisagées suivant l'étude menée. Alors qu'une géométrie conique (tronquée ou non) permet aisément d'étudier les effets de symétrie ponctuelle dans les boîtes quantiques, une géométrie elliptique permet de rendre compte de manière simple de l'anisotropie des boîtes. De même, une géométrie pyramidale (tronquée) à base carrée peut également rendre compte de l'aspect « facetté » des boîtes quantiques.

Les paramètres « matériau » sont également des paramètres clés d'entrée du Hamiltonien pour le calcul. Les principaux paramètres (élasticité, gap, etc...) sont issus entre autre d'un travail de compilation récent,[Vurgaftman01] faisant l'état de l'art des mesures et calculs des paramètres physiques concernant les différents types de semi-conducteurs. Ces paramètres peuvent être définis par domaine, mais ils peuvent également être introduits sous la forme de fonctions variant continûment de la barrière vers la boîte, pour rendre compte de phénomènes de croissance comme l'« intermixing », c'est-à-dire la diffusion d'atomes d'un milieu vers un autre lors de la croissance. Bien d'autres paramètres peuvent être intégrés dans le calcul comme le potentiel induit par un champ magnétique appliqué aux boîtes.

### 1.1.3 Les paramètres de sortie du calcul

#### 1.1.3.a Energies propres et fonctions propres monoélectroniques

Les niveaux d'énergie et fonctions d'onde pour les états liés d'électrons et de trous sont calculés en utilisant la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes décrite dans la section précédente.

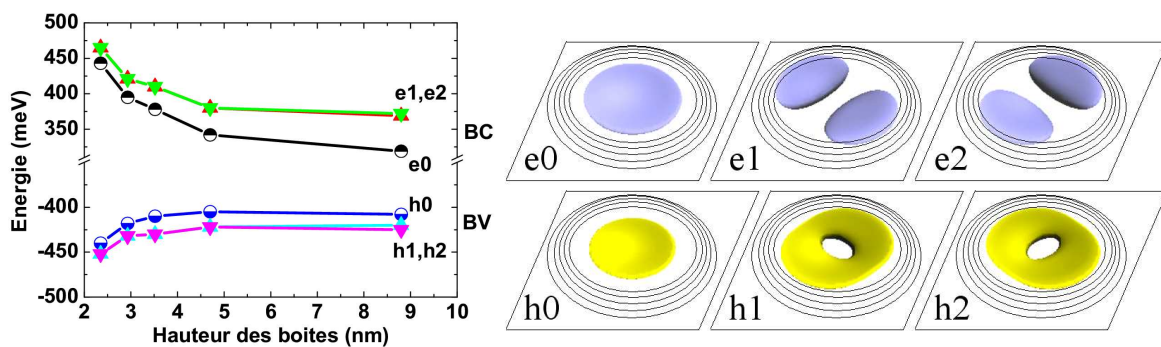


Figure 1-5 : Niveaux d'énergie de BC et BV en fonction de la hauteur de boîte et fonctions d'onde monoélectroniques dans des boîtes quantiques InAs/InP (100).

L'équation de Schrödinger correspond à 8 équations différentielles couplées pour l'ensemble des huit fonctions enveloppes  $\{ \Psi \}$  :

$$H(x, y, z, \partial_x, \partial_y, \partial_z, \partial_{xx}, \partial_{xy}, \partial_{xz}, \partial_{yy}, \partial_{yz}, \partial_{zz})\Psi(x, y, z) = E \Psi(x, y, z)$$

$$\text{Avec } \{ \Psi \} = \{ | \Psi_{s\uparrow} \rangle, | \Psi_{x\uparrow} \rangle, | \Psi_{y\uparrow} \rangle, | \Psi_{z\uparrow} \rangle, | \Psi_{s\downarrow} \rangle, | \Psi_{x\downarrow} \rangle, | \Psi_{y\downarrow} \rangle, | \Psi_{z\downarrow} \rangle \}$$

Les énergies et fonctions propres ( $E_n, \Psi_n$ ) provenant de cette équation permettent ainsi d'avoir accès aux états liés dans la boîte quantique considérée. A titre d'exemple, les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde pour des boîtes quantiques InAs/InP (100) sont présentées sur la figure 1-5. Le Hamiltonien est discrétisé par la méthode des différences finies.[Stier00]

Les niveaux d'énergie ainsi calculés pour les électrons et pour les trous, permettent de remonter aux dipôles de transition associés et donc aux propriétés optiques des boîtes quantiques.

### 1.1.3.b Dipôles des transitions optiques

Dans l'approximation dipolaire, la section efficace d'absorption d'un photon par une boîte quantique dépend de l'élément de matrice : [Blood00]

$$M_{ab} = | \vec{e} \cdot \vec{p}_{ab} |^2$$

où  $\vec{e}$  est le vecteur unitaire du champ électrique de la lumière incidente polarisée rectilignement, et  $\vec{p}_{ab}$  l'élément de matrice du moment dipolaire entre les états  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$ . [Enders95b]

Dans l'approximation de la fonction enveloppe, en considérant les états  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$ , il est possible de réécrire l'élément de matrice  $M_{ab}$  de la manière suivante : [Enders95b]

$$p_{ab} = \frac{m_0}{\hbar} \langle a | \frac{\partial H}{\partial \hat{k}} | b \rangle$$

et

$$M_{ab} = \frac{m_0^2}{\hbar^2} \left| \vec{e} \cdot \langle a | \frac{\partial H}{\partial \vec{k}} | b \rangle \right|^2$$

Il est ainsi possible de donner l'élément de matrice I sans dimension suivant :

$$I = \frac{1}{P^2} \left| \vec{e} \cdot \langle a | \frac{\partial H}{\partial \vec{k}} | b \rangle \right|^2$$

P représente le paramètre de Lüttinger défini dans la partie 1.1.1.b. I est proportionnel à la force d'oscillateur à un facteur  $1/\omega$  près, où  $\omega$  représente la pulsation caractéristique de la transition considérée. I est donc la grandeur caractérisant l'absorption des différentes transitions.[Stier00]

### 1.1.3.c Effets à N-corps : excitons, biexcitons, trions

Afin de rendre compte de manière fine de la structure électronique des boîtes quantiques, il est nécessaire d'introduire dans le calcul des effets d'interaction entre états monoélectroniques appelés aussi effets « à N-corps ». En effet, les électrons et les trous confinés dans les boîtes quantiques peuvent interagir par l'intermédiaire d'un champ Coulombien, provoquant ainsi une perturbation dans le Hamiltonien, et donc dans la structure électronique.

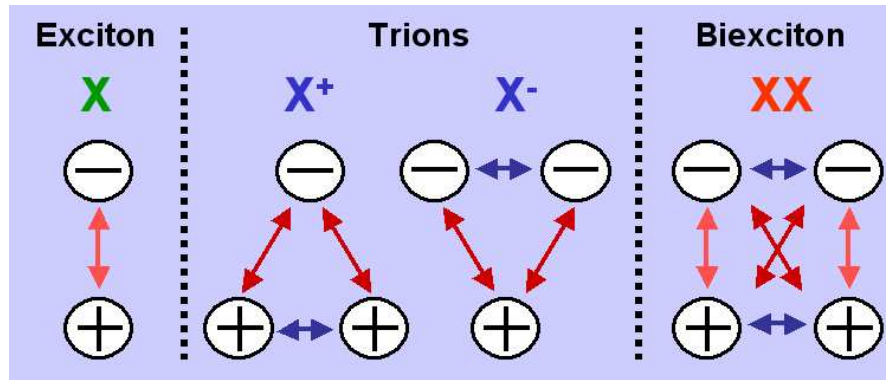


Figure 1-6 : Les différents types d'interaction à N-corps envisagés dans le calcul : exciton, trions, et biexciton

Pour prendre en compte ces effets à N-corps, la méthode de configuration d'interaction (CI) est utilisée. Le principe (détaillé par Rodt et al.[Rodb05] [Stier00]) est de diagonaliser le Hamiltonien à N-particules sur une base de fonctions obtenue à partir de l'antisymétrisation des fonctions propres d'électron et de trous précédemment obtenues  $\Phi_e^i$  et  $\Phi_h^j$  :

$$[\Phi_e^i(\vec{r}), \Phi_h^j(\vec{r}')] \mapsto A[\Phi_e^i(\vec{r}), \Phi_h^j(\vec{r}')] = \frac{1}{\sqrt{2}} [\Phi_e^i(\vec{r}), \Phi_h^j(\vec{r}') - \Phi_h^j(\vec{r}), \Phi_e^i(\vec{r}')]$$

où A est l'opérateur d'antisymétrisation, et i (j) rendent compte du nombre d'électrons (trous) liés pour l'interaction considérée. Les paramètres (i,j) permettent ainsi de définir la configuration du système : (1,1) est une situation excitonique, (1,2) et (2,1) rendent compte des trions, et (2,2) permet de décrire les effets biexcitoniques. Ainsi les valeurs propres pour ces différentes configurations sont obtenues par la diagonalisation du Hamiltonien correspondant au nombre de particules envisagées. Ainsi, pour l'exciton, il suffit de diagonaliser le Hamiltonien suivant à deux particules (électron et trou) :

$$H(\vec{r}, \vec{r}') = H(\vec{r}) + H(\vec{r}') + C(\vec{r}, \vec{r}')$$

où  $H(\mathbf{r})$  et  $H(\mathbf{r}')$  représentent les Hamiltoniens mono-particules, et  $C$  représente l'opérateur d'interaction Coulombienne à deux particules. La procédure est la même pour décrire les états de trions et biexcitons. Ainsi, une estimation de la structure fine de nos boîtes quantiques peut-être donnée grâce à cette méthode.

*Dans cette partie, les principes généraux du calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  ont été expliqués. Il a été montré qu'en prenant un Hamiltonien  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  incluant les contraintes, les effets de champ piézo-électriques, et en appliquant un modèle de configurations d'interactions s'appuyant sur les fonctions et énergies propres ainsi calculées, on pouvait aboutir à une description fine des boîtes quantiques moyennant un temps de calcul raisonnable. Toutefois, le traitement complet de ce calcul nécessite l'utilisation d'un super-calculateur. Ainsi, un programme de calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à une bande a été développé sous Matlab au laboratoire, pour être utilisé sur un ordinateur de bureau. La prochaine partie présente son utilisation pour une première description de la structure électronique des boîtes quantiques émettant à différentes longueurs d'onde (1.55, 2-5  $\mu\text{m}$ ). Les limitations de ce type de calcul sont également mises en évidence.*

## 1.2 Approximation $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 1 bande pour une première description

*Cette partie décrit les travaux réalisés à l'aide des calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à une bande, dont les principaux résultats ont été publiés dans les articles [CornetPLA05], [CornetJAP05] et [Doré06].*

### 1.2.1 Approximation $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 1 bande

#### 1.2.1.a Présentation et justification du modèle à 1 bande

La méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes présentée précédemment a prouvé à de nombreuses reprises un bon accord entre les calculs et l'expérience, et particulièrement dans le système maintenant bien connu InAs/GaAs. [Grundmann96] [Stier99] [Sauvage02] Toutefois, cette méthode, bien qu'avantageuse en temps de calcul comparée aux méthodes de type pseudo-potentiels, reste assez lourde à mettre en place, vu la taille des Hamiltoniens considérés. En effet, il a précédemment été montré que pour des boîtes quantiques InAs/GaAs en forme de pyramides tronquées, un modèle  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à une bande judicieusement couplé à l'utilisation de potentiels et de masses effectives renormalisés par les effets de contraintes, a donné des résultats exploitables au moins qualitativement.[Bastard88] [MiskaJPC02] Cette méthode d'approximation a pour

principal avantage de réduire considérablement les temps de calcul, et permet donc une grande facilité d'utilisation. Son principe sera détaillé dans la suite.

### 1.2.1.b Principe de l'approximation

L'approximation **k•p** 1 bande postule que les bandes électroniques des semi-conducteurs massifs sont indépendantes. L'Hamiltonien **k•p** 8 bandes avec un modèle de contraintes uniformes est diagonalisé pour les matériaux massifs ; les raccords de bandes et les masses effectives sont ainsi renormalisées. Les équations différentielles initialement couplées entre elles, sont découplées. Lors du passage des semi-conducteurs massifs aux hétérostructures, on considère que ce découplage reste valable pour les fonctions enveloppes. Il est donc possible de résoudre l'équation de Schrödinger suivante pour une bande N uniquement : [Rosencher98] [MiskaJPC02]

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2} \vec{\nabla} \frac{1}{m_N^*(\vec{r})} \vec{\nabla} + V_{STRUCTURE}(\vec{r}) \right] \varphi_N(\vec{r}) = (E - \varepsilon_{N0}) \varphi_N(\vec{r})$$

Les fonctions d'onde solutions de cette équation sont celles d'un porteur de la bande N soumis au potentiel  $V_{STRUCTURE}(\mathbf{r})$ . L'influence de l'environnement cristallin est prise en compte par l'intermédiaire de  $V_{STRUCTURE}(\mathbf{r})$ , de la masse effective  $m_N^*$  et de l'énergie  $\varepsilon_{N0}$  de la bande concernée au point  $\Gamma$ . Cette équation, appliquée aux boîtes quantiques, est ainsi résolue numériquement au laboratoire en utilisant des coordonnées paraboliques ou par la méthode des différences finies. Cette résolution est appliquée dans ce travail à des boîtes quantiques possédant une symétrie cylindrique ( $C_{\infty v}$ ).

## 1.2.2 Boîtes quantiques idéales – coordonnées paraboliques

### 1.2.2.a Les coordonnées paraboliques

Des calculs sont réalisés en coordonnées paraboliques, avec un potentiel de confinement infini. L'équation de Schrödinger est alors équivalente à l'équation d'Helmholtz.[Even03] Il est possible à l'aide d'un jeu de trois coordonnées paraboliques sans dimension ( $u, v, \kappa$ ) d'obtenir des solutions séparables à l'équation d'Helmholtz. Ces coordonnées sont reliées aux coordonnées cartésiennes par :

$$\begin{cases} x = auv \cos(\kappa) \\ y = auv \sin(\kappa) \\ z = a(u^2 - v^2)/2 \end{cases}, \text{ où } a \text{ est le paramètre de la métrique parabolique.}$$



L'intersection de deux paraboles confocales (fig. 1-7 (a)) permet de définir un volume lenticulaire définissant le volume de la boîte quantique (fig. 1-7 (b)). Les états monoélectroniques, ainsi que les transitions excitoniques et biexcitoniques sont calculées à l'aide d'un calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  une bande, associé à un calcul perturbatif. Les deux premières fonctions d'ondes issues du calcul, de type 1S et 1P, sont représentées figure 1-7 (b).

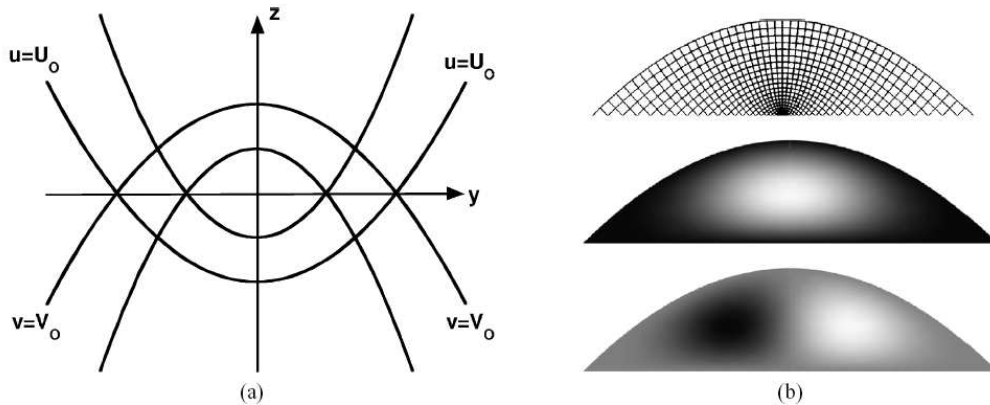


Figure 1-7 : (a) Projection des surfaces en coordonnées paraboliques dans le plan (y,z) L'intersection de deux paraboles confocales permet de définir un volume de forme lenticulaire. (b) Maillage parabolique définissant la boîte quantique dans le plan (y,z), avec son état fondamental 1S et son premier état excité 1P.

### 1.2.2.b Limitations du modèle : vers une description fine

Une telle description voit son champ d'application restreint à une étude des phénomènes au premier ordre, étant donnée sa précision. En effet, les calculs présentés dans la partie précédente ont été menés sur des boîtes quantiques InAs/InP de forme lenticulaires et de rapport de forme égal à 1/4 dans un potentiel de confinement infini. Avec une boîte de rayon à la base de 17.5 nm, l'énergie de liaison excitonique est calculée égale à 20.3 meV. Ceci est en bon accord avec les calculs précédemment menés, ainsi qu'avec les résultats expérimentaux présentés dans la suite de ce travail de thèse (magnéto-photoluminescence en particulier). En régime de confinement fort (boîtes de petite taille), il est possible de calculer l'énergie de liaison moléculaire  $E_{\text{mol}}$  biexcitonique, à partir d'une somme des termes perturbatifs du second ordre (termes de corrélation) car les termes du premier ordre se compensent exactement.[CornetPLA05] Cette énergie de liaison est définie comme la différence entre l'énergie d'un biexciton et l'énergie de deux excitons indépendants. Dans une approche simplifiée, on peut dire que l'énergie d'un exciton est  $E_X = E_c + E_h + J_{eh}$  où  $E_c$  et  $E_h$  correspondent aux énergies monoélectroniques de l'électron et du trou et  $J_{eh}$  est l'énergie d'interaction électron-trou toujours négative. De la même manière, l'énergie d'un biexciton est donnée au 1<sup>er</sup> ordre par :  $E_{XX} = 2E_c + 2E_h + 4J_{eh} + J_{ce} + J_{hh}$ . L'énergie de liaison du

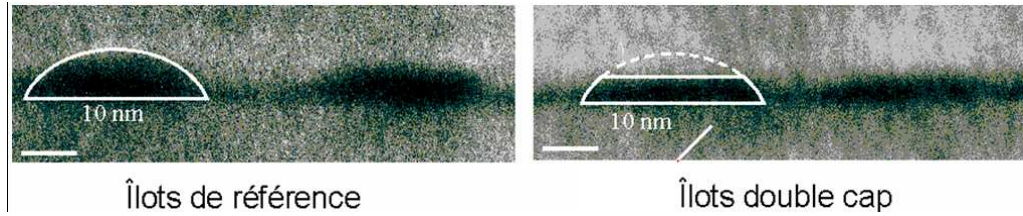
biexciton au 1<sup>er</sup> ordre est donc égale à  $E_{IXX} = 2E_X - E_{XX} = - (J_{ee} + J_{hh} + 2J_{eh})$ . Les deux premiers termes sont positifs et compensent exactement les termes attractifs dans l'approximation du potentiel de confinement infini utilisé en coordonnées paraboliques. Pour des boîtes InAs/InP l'énergie de liaison a donc été calculée à l'ordre 2. Elle est égale à 3.6 meV et est indépendante du volume de la boîte. Cette énergie est ici positive, l'interaction entre excitons est donc liante, quelque soit le volume de la boîte. Si l'ordre de grandeur pour l'énergie semble raisonnable, le fait de trouver une énergie de liaison du biexciton toujours positive est en contradiction avec les valeurs expérimentales habituellement données.[Seguin05] En effet, des biexcitons antiliants sont généralement observés pour des boîtes suffisamment grandes. Nous verrons plus loin qu'en réalité, les effets à N-corps ne se compensent pas à l'ordre 1 dans un développement perturbatif correct. Il a de plus été montré à partir d'un développement perturbatif à l'ordre 3, pour une boîte en confinement infini, que l'énergie de liaison du biexciton décroît quand la taille augmente (tout en restant positive).[Hu90] Ainsi, le modèle  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à 1 bande présente des limitations quand il s'agit d'étudier des phénomènes complexes tels que les effets à N-corps. Nous verrons dans la partie 3 que ces effets Coulombiens peuvent être décrits correctement en introduisant dans le calcul les effets de corrélation à partir d'une méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes. Toutefois, il a été montré par Bastard et al. que la méthode de calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à 1 bande était apte à décrire la structure électronique des boîtes quantiques, et plus particulièrement la structure électronique de la bande de conduction.[Bastard84] Dans ce cadre bien précis, ce type de calcul peut donc être utilisé. Nous nous proposons d'appliquer ces méthodes à la description de la structure électronique des boîtes quantiques émettant dans le proche infra-rouge (1.55  $\mu\text{m}$ ), ou dans le moyen infra-rouge avec une longueur d'onde comprise entre 2 et 5 micromètres.

### 1.2.3 Boîtes quantiques InAs/InP pour le 1.55 $\mu\text{m}$

#### 1.2.3.a *Justification de la géométrie choisie*

La géométrie de la boîte quantique considérée pour ce calcul est encore une fois de symétrie cylindrique  $C_{\infty v}$ . Les approximations liées à l'utilisation de cette géométrie pour les boîtes InAs/InP (311)B sont présentées dans [Miska03]. La boîte quantique considérée est modélisée par un volume de forme lenticulaire, à base circulaire, éventuellement tronquée en hauteur. Le fait de tronquer la boîte en hauteur est directement relié à la méthode de croissance double cap utilisée. En effet, lors de cette procédure, il est réalisé un « rabotage » des boîtes dans leur hauteur. L'effet de cette procédure de croissance est visible sur les images

de Microscope Electronique à Transmission (TEM) présentées sur la figure 1-8a. [Paranthoen01]



*Figure 1-8a : Images obtenues par TEM de boîtes quantiques InAs/InP(311)B observés en coupe transversale [Paranthoen01]. Ces images illustrent bien l'effet de la croissance par double-cap, et permettent de justifier la forme choisie dans le modèle.*

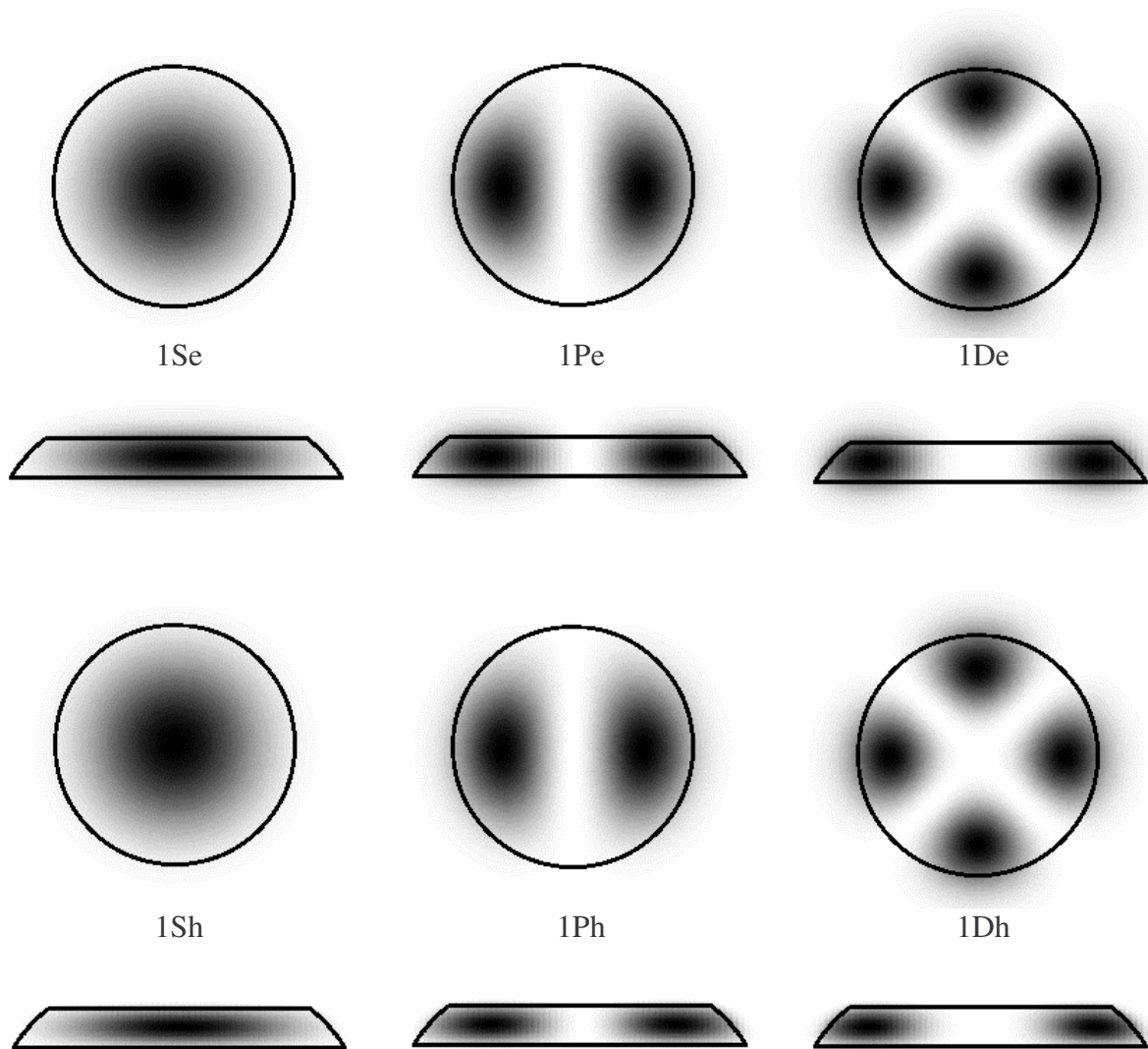
### 1.2.3.b Fonctions d'onde, symétries et niveaux d'énergie

En considérant cette forme lenticulaire à base circulaire tronquée dans le système InAs/InP, le Hamiltonien  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1-bande est diagonalisé afin de déterminer les fonctions propres et valeurs propres du problème considéré.

Les probabilités de présence correspondant aux premiers états liés obtenus sont présentées dans la figure 1-8b pour les électrons et les trous, vus de dessus, et en coupe.[Miska03] Il est ainsi aisé de déterminer la symétrie de ces fonctions propres. Pour les électrons et pour les trous, l'état de plus basse énergie est un état deux fois dégénéré (dégénérescence de spin), de symétrie 1S.

L'état suivant de type 1P est quatre fois dégénéré en énergie. En effet, il peut se décomposer en composantes 1P<sub>x</sub> et 1P<sub>y</sub> chacune deux fois dégénérée (dégénérescence de spin). Cette dégénérescence d'ordre 4 est directement reliée à la symétrie de l'hétérostructure envisagée  $C_{3v}$ . En effet, dans le cas de l'approximation  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande choisie, l'Hamiltonien électronique ne prenant pas en compte les effets de symétrie cristalline sur substrat (311)B en particulier, laisse inchangée la symétrie associée à la morphologie.

De la même manière, un état de type D de dégénérescence 4 est ensuite observé. Les niveaux d'énergie et les forces d'oscillateur, donc les transitions optiques peuvent être déduits de ces calculs.



*Figure 1-8b : Probabilités de présence radiales et angulaires des trois premiers niveaux 1Se, 1Pe et 1De d'électrons et 1Sh, 1Ph et 1Dh de trous.[Miska03] La boîte choisie possède un rayon de 12.5 nm et une hauteur de 3 nm (cf. figure1- 8a)*

La figure 1-9 représente la structure énergétique de boîtes quantiques de hauteur 3 nm et de rayon 17.5 nm avec les transitions optiques associées. Etant donné la large taille de la boîte, un état 2S apparaît également dans la structure énergétique. Les transitions de type 1S-1S, 1P-1P, 1D-1D, et 2S-2S sont les principales transitions dans le spectre optique considéré. Toutefois, cette description ne permet pas de rendre compte de manière précise de tous les résultats expérimentaux obtenus, mais permet d'obtenir des ordres de grandeur des écarts entre les niveaux d'énergie, et ainsi d'étudier l'influence de plusieurs paramètres comme la hauteur des boîtes, les différents matériaux considérés, le rapport de forme des boîtes, etc...

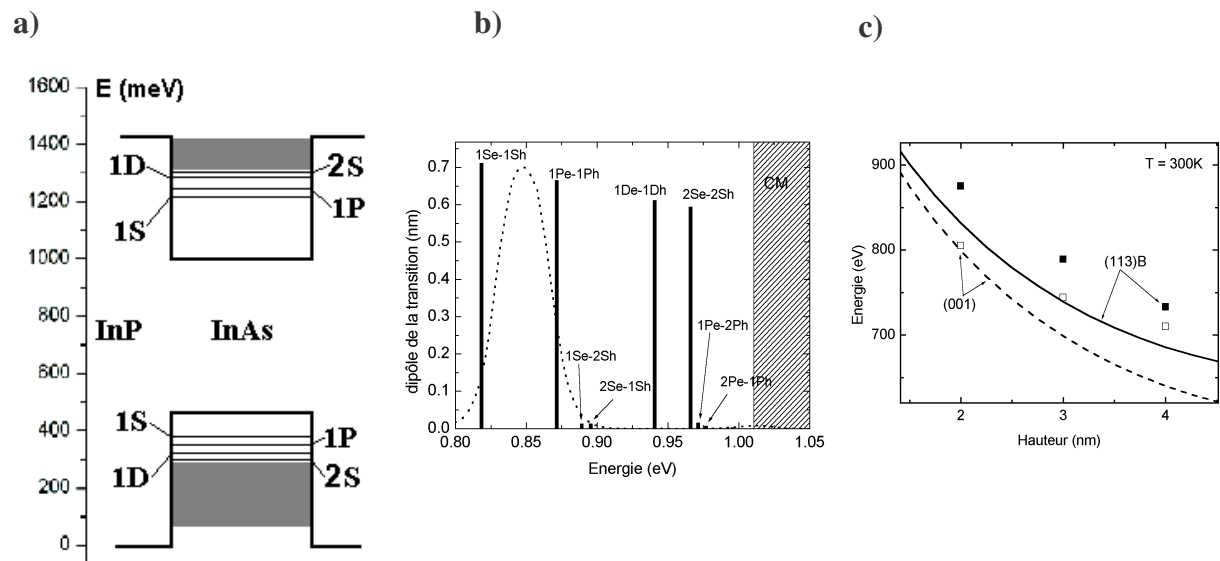


Figure 1-9 : Diagrammes des niveaux d'énergie (a) et des transitions électroniques (b) pour des boîtes InAs de hauteur 3 nm et de rayons 17.5 nm à  $T = 0$  K. [Miska03] Les transitions optiques fondamentales 1Se-1Sh mesurées (points) et calculées (lignes) en fonction de la hauteur de boîte sont également représentées (c).

#### 1.2.4 Boîtes quantiques InAsSb/InP pour le 2-5 $\mu\text{m}$

Une application directe des calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande réalisée dans le cadre de ce travail de thèse est présentée ici. L'objet de cette étude est de fournir une première approche du problème suivant : comment, en utilisant des boîtes quantiques sur substrat InP, peut-on atteindre des longueurs d'onde d'émission entre 2 et 5  $\mu\text{m}$ , domaine spectral où l'on trouve de nombreuses applications déjà citées précédemment ? Nous proposons d'utiliser pour de telles applications des boîtes quantiques InAsSb enterrées dans différents matériaux ou alliages en accord de maille sur substrat InP (100). Nous étudions ainsi théoriquement l'influence de ces matériaux, ainsi que les proportions d'As et de Sb sur la longueur d'onde d'émission de ces boîtes et sur le type de confinement obtenu (type I, II ou III).

##### 1.2.4.a Position du problème et motivations

L'émission ou la détection dans la fenêtre de longueur d'onde (2- 5  $\mu\text{m}$ ) n'a pour l'instant pas trouvé de solution technologique adaptée dans les semi-conducteurs, fiable et peu chère. De nombreux systèmes à base de semi-conducteurs ont déjà été essayés. Des diodes lasers à puits quantiques GaInAsSb/AlGaAsSb de type I ont déjà montré de bonnes performances à température ambiante jusqu'à 2.7  $\mu\text{m}$ . [Kim03] [Adamiec04] Ces diodes de type I sont préférées en général à celles de type II ou III car le recouvrement dans de telles structures entre les fonctions d'onde d'électrons et de trous est alors beaucoup plus grand. Pour les grandes longueurs d'onde (fenêtre 5 – 12  $\mu\text{m}$ ), les lasers à cascade quantique sont souvent

envisagés. Le principe de ce laser est d'activer l'émission stimulée sur les transitions intra-« bande de conduction ». Des émissions de tels lasers à température ambiante ont également été démontrées.[Faist94] Cependant, ces lasers à cascade quantique sont limités vers les plus courtes longueurs d'onde, à cause du faible décalage de bande de conduction (CB) possible dans le système AlInAs/GaInAs habituellement choisi.[Faist98] De plus, la commercialisation de tels lasers est difficile, et limitée par le substrat GaSb utilisé, et la complexité des structures épitaxiées.[Zhu05] [Foxon03]

Sur le substrat InP, le système maintenant bien maîtrisé du point de vue technologique et à base de puits quantiques InGaAsP est toutefois limité en émission à une longueur d'onde de 2  $\mu\text{m}$ .[Oishi97] Cette barrière spectrale peut-être en principe franchie en incorporant dans les puits quantiques du Sb, qui permet de réduire le gap du matériau (cf. figure 0-6). Nous proposons ici d'utiliser plutôt des boîtes quantiques, ce qui permet d'accorder deux matériaux de paramètre de maille très différents, sans formation de dislocations. Dans ce cas, divers matériaux peuvent également être envisagés dans la barrière, afin de réduire l'Absorption Intra-Bande de Valence (IVBA). Enfin, les lasers à boîtes quantiques sont normalement plus efficaces à température ambiante que les lasers à puits quantiques, à cause du bas taux de recombinaison par effet Auger. Le caractère 0D de nos états de boîtes, et la plus basse concentration de porteurs au seuil favorise un tel comportement. Au vu de toutes ces constatations, nous proposons ici d'étudier théoriquement les boîtes quantiques InAsSb sur substrat InP, afin d'obtenir une émission au delà de 2  $\mu\text{m}$ . Une émission laser de boîtes quantiques InAsSb sur substrat InP a déjà été observée à 1.96  $\mu\text{m}$ .[Qiu04] Nous montrons dans les parties suivantes par un calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande prenant en compte des masses effectives et anisotropes inhomogènes, et une contrainte homogène,[MiskaSST02] [Miska05] [Cusack97] que la limite en longueur d'onde de ces boîtes est en principe beaucoup plus grande dans le système InAsSb/InP.

#### *1.2.4.b Raccords de bande pour différents alliages massifs (matériaux barrière) et masses effectives*

Les paramètres matériaux sont essentiellement repris des deux références : [Wurgaftman01] et [Chuang95]. Les alignements des bandes de conduction et de valence, et les gaps pour les matériaux étudiés sont présentés dans la table 1-1. La figure 1-10 montre les variations des raccords de bande de différents matériaux à  $T=300$  K en fonction de la composition en Sb dans un alliage contraint  $\text{InAs}_{(1-x)}\text{Sb}_x$  sur substrat InP.

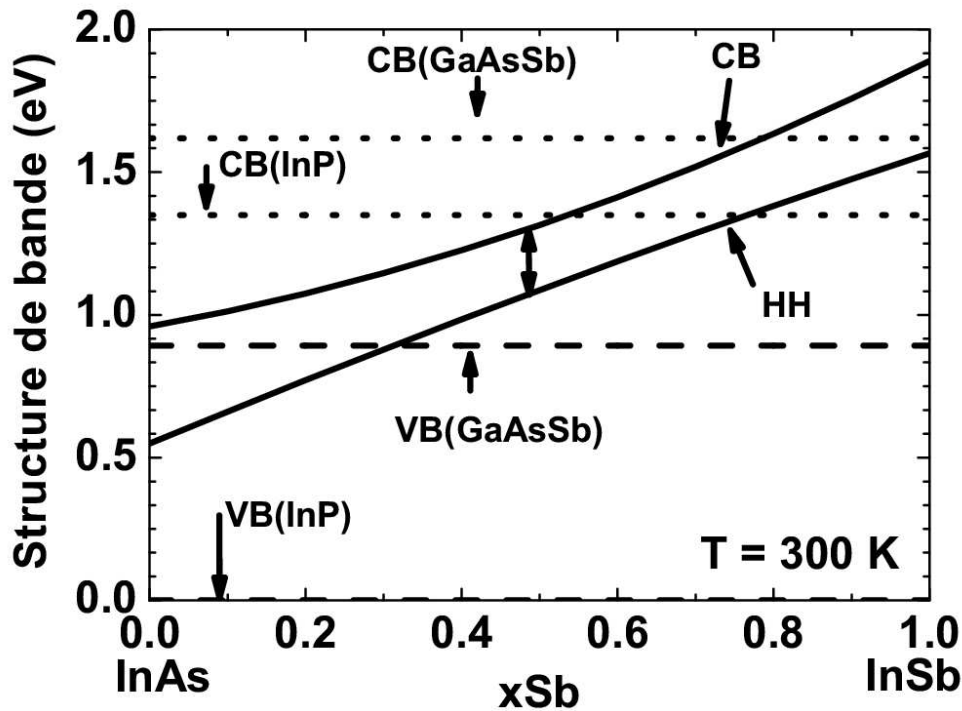


Figure 1-10 : Variation des alignements de bande à  $T = 300 \text{ K}$  en fonction de la composition en Sb dans le matériau massif contraint  $\text{InAs}_{(1-x)}\text{Sb}_x$  sur substrat InP, relativement à l'énergie de la bande de valence de l'InP (VB). Les variations des bandes de conduction (CB) et de valence HH de  $\text{InAs}_{(1-x)}\text{Sb}_x$  sont représentées par des traits pleins. Les énergies de VB et CB pour l'InP et le GaAsSb sont aussi représentées.

Les valeurs en énergie sont données en prenant pour référence égale à 0 l'énergie de la bande de valence (VB) pour InP. Les bandes de conduction et de valence (HH) pour l'alliage InAsSb en fonction de la composition en Sb sont représentées en traits pleins. Les raccords de bande de conduction ou de valence, pour InP et GaAsSb sont illustrés par des pointillés et des tirets. D'autres matériaux de barrière que l'InP (comme InGaAsP et InAlGaAs) sont également considérés dans ce calcul, et ne sont pas sur cette figure pour des raisons de clarté, mais les valeurs en énergie correspondantes sont exposées dans la table 1-1.

La première constatation est que le gap minimum pour le matériau massif contraint InAsSb (0.228 eV (5.5  $\mu\text{m}$ ) pour  $x\text{Sb} \sim 0.5$  à 300 K) est plus grand que celui de l'alliage massif non-contraint, égal à 0.16 eV (7.75  $\mu\text{m}$ ). La longueur d'onde d'émission pour un tel matériau est donc limitée à température ambiante autour de 5  $\mu\text{m}$  (ce qui est d'ores est déjà prometteur pour la fenêtre de longueur d'onde visée). Il est également visible ici que le raccord de bande InAsSb/InP est de type I pour  $x\text{Sb} < 0.5$ , de type II pour  $0.5 < x\text{Sb} < 0.8$  et de type III pour  $0.8 < x\text{Sb} < 1.0$ . Ces résultats sont en bon accord avec les précédents calculs réalisés pour InAs pur ou InSb.[Utzmeier97] [Platz05]

Paramètres	InP	InAs	InAs <sub>0,5</sub> Sb <sub>0,5</sub>	InSb	GaAs <sub>0,5</sub> Sb <sub>0,5</sub>	Q <sub>1.18</sub>	In <sub>0,52</sub> Al <sub>0,29</sub> Ga <sub>0,19</sub> As
$E_{HH}$ (eV)	0	0.549	1.087	1.566	0.892	0.190	0.225
$E_{CB}$ (eV)	1.35	0.959	1.315	1.890	1.619	1.231	1.354
$E_G$ (eV)	1.35	0.410	0.228	0.324	0.727	1.041	1.129

*Table 1-1 : Paramètres d'alignements des bandes à  $T = 300$  K utilisés dans les calculs pour différents matériaux barrière et hétérostructures à base d'antimoine. Le  $Q_{1.18}$  est l'alliage quaternaire  $In_{0,8}Ga_{0,2}As_{0,435}P_{0,565}$ .  $E_{HH}$  est l'énergie de bande de valence de trous lourds.  $E_{CB}$  est l'énergie électronique de bande de conduction.  $E_G$  est l'énergie du gap. La référence est prise égale à 0 pour la bande de valence  $E_{HH}$  de l'InP.*

Trois autres matériaux barrière ont également été envisagés.  $In_{0,8}Ga_{0,2}As_{0,435}P_{0,565}$  (Q1.18) et  $In_{0,52}Al_{0,29}Ga_{0,19}As$  sont deux exemples d'alliages quaternaires en accord de maille utilisés dans les zones actives afin d'assurer le confinement optique dans les lasers à boîtes quantiques émettant à  $1.55 \mu m$ . Le quaternaire Q1.18 a un gap autour de  $1.18 \mu m$ . D'après les valeurs de la table 1, une plus grande discontinuité de bande de conduction, et une plus grande gamme de fonctionnement en type I est attendue pour le système InAsSb/InAlGaAs. En effet, quand l'alliage quaternaire InAlGaAs est utilisé, la bande de conduction est à  $1.354$  eV alors que la bande de valence est à  $0.225$  eV. Ainsi, la bande de conduction est très proche de celle de l'InP, ce qui permet de conserver une hétérostructure de type I en-dessous de  $x = 0.5$  et offre donc une grande gamme de fonctionnement de ce système en type I en fonction de la composition  $x$  en As dans la boîte quantique. Les raccords de bande pour le ternaire  $GaAs_{0,5}Sb_{0,5}$  en accord de maille sur InP sont également présentés sur la figure 1-10. Ce matériau peut être intéressant à deux titres : Premièrement, il permet d'ajouter un fort confinement dans la CB. Deuxièmement, la croissance de boîtes  $InAs_{0,5}Sb_{0,5}/GaAs_{0,5}Sb_{0,5}$  peut être obtenue en principe en changeant le flux d'éléments III (Indium en Gallium), ce qui peut simplifier le travail d'épitaxie et peut-être apporter une meilleure qualité d'interface. De plus, ce système est similaire au système InAs/GaAs qui présente un fort désaccord de maille ( $\sim 7\%$ ). L'inclusion de la même quantité d'atomes de Sb à la fois dans la boîte quantique et dans la barrière, permet de décaler en bloc les énergies de gap vers les basses énergies.



La figure 1-11 est une illustration des effets induits par la contrainte sur les masses effectives des porteurs de charge. L'évolution de la masse effective de l'électron en fonction de la composition en Sb de l'alliage InAsSb non contraint est comparée à la même variation pour la masse dans le plan  $m_r$  et la masse en dehors du plan  $m_z$  dans l'alliage contraint InAsSb.

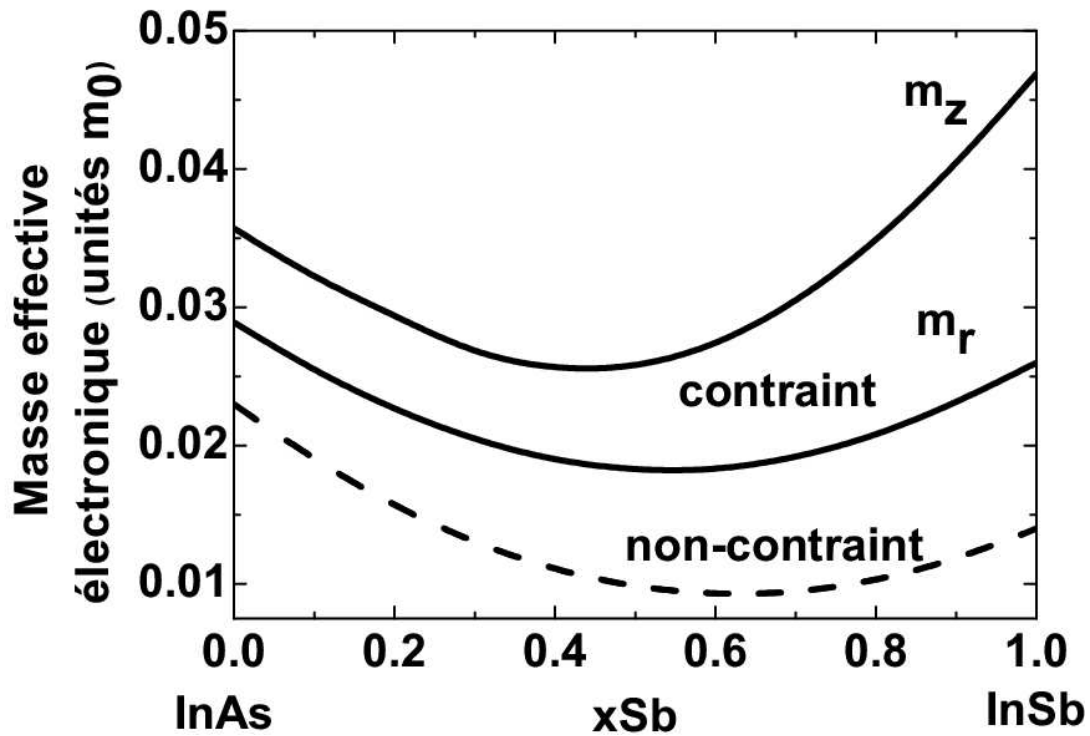


Figure 1-11 : Evolution de la masse effective électronique en unité de masse de l'électron libre ( $m_0$ ) en fonction de la composition en Sb dans l'alliage non-contraint  $\text{InAs}_{(1-x)}\text{Sb}_x$  comparé à la même variation pour les masses dans le plan des boîtes ( $m_r$ ) et en dehors du plan ( $m_z$ ) dans l'alliage contraint  $\text{InAs}_{(1-x)}\text{Sb}_x$ .

Les masses effectives présentées sont clairement plus grandes dans le cas de l'alliage contraint que dans le cas de l'alliage non contraint. Ceci est un bienfait dans la perspective de limiter les effets de confinement présentés dans la partie suivante.

#### 1.2.4.c Boîtes quantiques InAsSb : effets de confinement

On associe généralement une augmentation du gap intrabande, aux effets de confinement quantique des charges dans les boîtes quantiques. Comme il a été vu dans la partie précédente, la longueur d'onde d'émission pour l'alliage massif InAsSb est limitée par les effets de contraintes à environ  $5 \mu\text{m}$ . Cette limite supérieure doit encore être revue à la baisse si l'on considère les effets supplémentaires de confinement quantique dans les boîtes quantiques. Pour prendre en compte ces effets, nous avons ici considéré une boîte quantique d'InAsSb

(figure 1-12) dont la hauteur et le diamètre sont respectivement 5 et 35 nm, encapsulée dans les quatre matériaux barrières considérés précédemment : InP, GaAsSb, Q1.18 et InAlGaAs. L'encart de cette figure représente les raccords de bande pour le système  $\text{InAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}/\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}$  sur substrat InP à 300 K, tracé à partir des valeurs de la table 1-1. Cela montre bien qu'un raccord de bande de type I (désiré ici car pouvant engendrer des transitions optiques suffisamment fortes) peut être obtenu avec une composition de Sb d'environ 0.5 pour une barrière en GaAsSb. De plus, la figure ci-dessous représente l'énergie fondamentale de transition de boîtes InAsSb en fonction de la concentration en Sb, et pour les différentes barrières considérées. Ces résultats sont obtenus à partir du calcul de type  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande, et sont limités au cas du raccord de bande de type I, pour lesquels les transitions optiques dans les boîtes sont les plus efficaces.

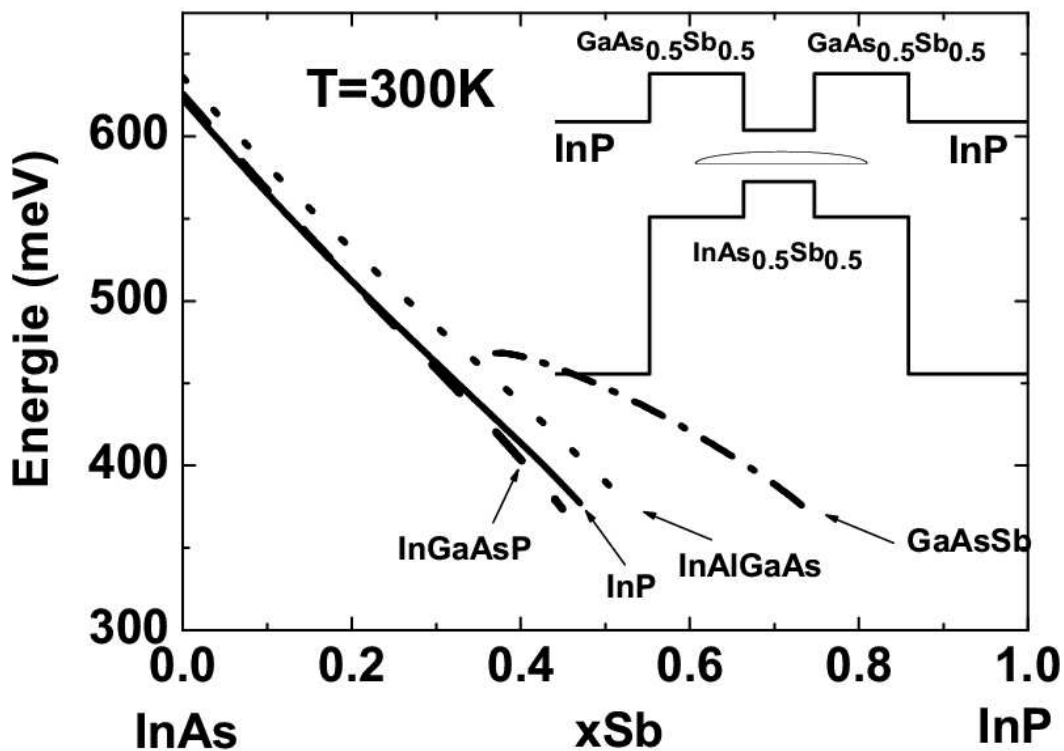


Figure 1-12 : Variation de l'énergie de la transition fondamentale de boîte à  $T = 300$  K pour chaque matériau barrière en fonction de la composition en Sb dans les boîtes quantiques InAsSb ne présentant que des raccords de bande de type I. Les matériaux barrières considérés sont  $\text{In}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$ , InP,  $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.19}\text{As}$  et  $\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}$ . L'encart montre les raccords de bande considérés pour le système  $\text{InAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}/\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}/\text{InP}$ .

Pour  $\text{In}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$ , InP et  $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.19}\text{As}$ , les concentrations maximales en Sb sont respectivement égales à  $x\text{Sb}=0.45$ ,  $0.47$ , et  $0.53$  (pour avoir le raccord de bande de type I). Dans le cas du ternaire  $\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}$ , le résultat est un peu différent, la concentration en Sb, permettant de conserver un confinement de type I, est alors limitée à la gamme  $[0.37-0.74]$ .

Pour les quatre barrières considérées, la longueur d'onde maximale d'émission pour un alignement de bande de type I est abaissée de 5.5  $\mu\text{m}$  (0.228 eV) à environ 3.3  $\mu\text{m}$  (0.37 eV) par l'effet du confinement quantique dans une boîte de dimension classique (35 $\times$ 5 nm). Pour repousser cette nouvelle limite en longueur d'onde, il sera sans doute nécessaire d'envisager des boîtes plus grosses, afin de réduire les effets du confinement quantique.

#### 1.2.4.d Compétition entre les transitions optiques : un problème

Les énergies de transitions optiques mises en jeu dans de telles structures sont basses. Elles peuvent donc entrer en compétition avec des transitions intra-bandes de valence (IVBA) du matériau barrière. Cet aspect est crucial pour la réalisation d'un laser fonctionnant à température ambiante car cela se traduit par des pertes optiques conséquentes. La transition optique associée à la séparation des niveaux de trous par couplage spin-orbite (SO) est alors une des transitions optiques de type IVBA les plus importantes. La figure ci-dessous montre l'évolution de la transition due à la séparation des niveaux de trou à cause du couplage spin-orbite en fonction de la proportion d'arsenic dans le quaternaire  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_y\text{P}_{1-y}$  en accord de maille sur InP à température ambiante.

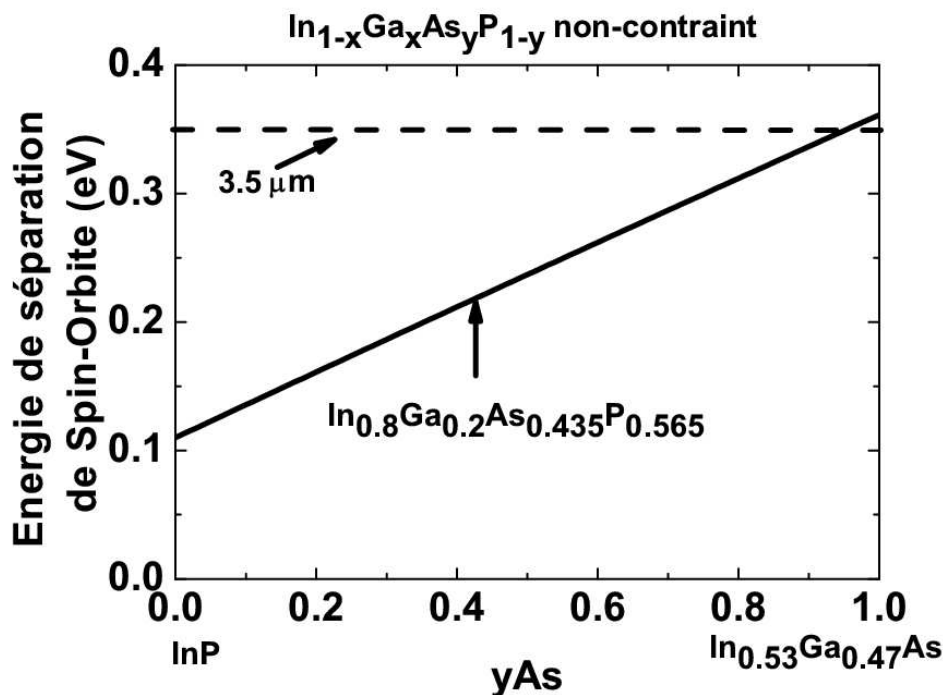


Figure 1-13 : Evolution de l'énergie de séparation de Spin-Orbite (SO) à  $T = 300\text{ K}$  en fonction de la composition en Arsenic  $y\text{As}$  dans l'alliage  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_y\text{P}_{1-y}$  en accord de maille sur InP comparée à l'énergie correspondant à la longueur d'onde optique 3.5  $\mu\text{m}$ .

D'après la figure 1-13, la valeur du paramètre de SO tombe en plein dans la gamme des 3.5  $\mu\text{m}$  (0.35 eV) pour le ternaire  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ . Les transitions intra-VB dans une telle barrière risquent d'induire de grosses pertes dans le système considéré, et donc d'entraîner une grande perte d'efficacité des composants optoélectroniques. Pour éviter cela, il faut un matériau barrière avec une grande différence en énergie entre la transition principale, et les transitions intra-bandes (SO). Pour cette raison, un système tel que  $\text{InAs}_{(1-x)}\text{Sb}_x / \text{In}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$  (Q1.18) / InP, correspondant à des énergies de SO faibles dans la barrière (0.21 eV pour le quaternaire Q1.18, et 0.11 eV pour l'InP), paraît plus intéressant. Dans le cas des matériaux  $\text{GaAs}_x\text{Sb}_{(1-x)}$ , le terme de courbure (« bowing ») pour le paramètre SO n'est pas très bien connu.[Wurgaftman01] Ainsi, si ce paramètre est égal à la valeur la plus couramment admise, c'est à dire 0.6 eV, l'énergie de SO pour  $\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}$  est alors de 0.4 eV. Une telle valeur pourrait alors correspondre à de fortes pertes optiques susceptibles de dégrader les performances des composants à boîtes quantiques dans ce système ( $\text{InAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}/\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}$ ). Dans le cas d'un alliage quaternaire InAlGaAs en accord de maille sur InP, la situation devrait être encore moins favorable, car l'énergie de SO est dans tous les cas proche de 0.35 eV (~3.5  $\mu\text{m}$ ), quelque soit la composition de l'alliage.

#### *1.2.4.e Conclusion*

Un petit récapitulatif est proposé à présent afin de synthétiser les résultats. Nous avons effectué une première étude des propriétés optiques et électroniques de boîtes quantiques InAsSb sur substrat InP, en vue de réaliser des sources de lumière émettant dans le moyen infra-rouge, au delà de 2  $\mu\text{m}$ . Différents matériaux dans la barrière ont été considérés. Les boîtes quantiques  $\text{InAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}/\text{GaAs}_{0.5}\text{Sb}_{0.5}$  permettent d'obtenir la plus basse énergie d'émission. La croissance de boîtes quantiques par changement d'éléments III s'apparente au système déjà très connu InAs/GaAs. Toutefois, à cause des effets de contraintes et de confinement quantique, la plus grande longueur d'onde pouvant être obtenue dans ce système devrait être d'environ 3.5  $\mu\text{m}$  (tout en gardant le caractère « type I »). De plus, pour ce système, d'autres transitions optiques peuvent potentiellement entrer en compétition avec la transition principale de la boîte quantique. Ce sont les transitions IVBA de type SO, justement actives autour de 3.5  $\mu\text{m}$  dans le matériau barrière. Pour y remédier, d'autres matériaux peuvent être considérés dans la barrière, comme le quaternaire Q1.18. Mais la solution la plus simple et probablement la plus efficace reste de contrôler la taille des boîtes afin d'augmenter la longueur d'onde d'émission et d'essayer de réduire l'IVBA. Un grossissement de la taille des boîtes pourrait permettre d'aller au-delà de 3.5  $\mu\text{m}$ . Il faudra également considérer des

raccords de bandes de type II, qui peuvent, malgré une réduction de l'efficacité de la transition, permettre d'atteindre des longueurs d'onde encore plus grandes. Parmi les phénomènes susceptibles de diminuer l'efficacité des transitions optiques, on peut citer aussi l'effet Auger dans le matériau barrière. Il n'a pas été abordé dans ce travail.

*Il a ainsi été montré dans cette partie, grâce à des calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à une bande, qu'il était possible d'obtenir une première description rapide de la structure électronique des boîtes quantiques. Une première étude en coordonnées paraboliques a permis de rendre compte de manière approximative de la structure de nos boîtes quantiques émettant à 1.55  $\mu\text{m}$ . Cette approche, bien qu'ayant montré ses limites dans la description des effets à  $n$ -corps, a été utilisée pour l'étude des phénomènes du premier ordre. Elle nous a notamment permis d'étudier la possibilité de réaliser des boîtes quantiques pouvant émettre dans le moyen infrarouge, entre 2 et 5  $\mu\text{m}$ . Il a alors été démontré qu'avec la transition optique fondamentale inter-bande de boîtes InAsSb/InP, il était possible d'atteindre de telles longueurs d'onde. Cette approche sera également réutilisée dans les chapitres 2 (effet du champ magnétique) et 3 (calculs sur des réseaux de boîtes quantiques dans l'espace réciproque). Dans la dernière partie de ce chapitre, un calcul  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à huit bandes est réalisé sur des boîtes quantiques InAs/InP (100) et (311)B. La précision du calcul utilisé permet de mettre en évidence la différence fondamentale entre les boîtes sur les deux substrats, et permet également d'introduire une description complète des effets Coulombiens à  $N$ -corps décrits précédemment (excitons, biexcitons, trions) dans les boîtes.*

### **1.3 Structure fine des boîtes InAs/InP et influence du substrat par la méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 8 bandes**

*Cette partie décrit les travaux réalisés à l'aide des calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à huit bandes réalisés en coopération avec la TU Berlin. [CornetPRB06]*

#### **1.3.1 Paramètres d'entrée du calcul : choix de la structure**

##### *1.3.1.a Motivations et cadre général de l'étude*

Comme nous l'avons déjà décrit précédemment, le faible désaccord de paramètre de maille dans le système InAs/InP comparé au système InAs/GaAs favorise la formation de grandes boîtes quantiques à faible confinement électronique, en faibles densités. Cet écueil peut être

contourné en prenant une surface de croissance de haute énergie (« instable ») comme la surface (311)B par exemple.[CaroffJJAP05] [CornetPRB05] [Saito01] Ceci permet d'atteindre de fortes densités de boîtes, et une réduction de leur dispersion en taille. De faibles courants de seuil pour les lasers émettant à 1.55  $\mu\text{m}$  sont ainsi obtenus. [CaroffAPL05] La hauteur des boîtes est contrôlée par le processus double cap (DC) expliqué dans le chapitre 0.[Paranthoen01] Alors que de nombreuses études expérimentales ont déjà étudié l'influence de l'orientation du substrat sur les propriétés optiques des boîtes quantiques, [Wang05] [Sanguinetti00] [Patanè00] [Temko03] aucune étude théorique complète sur les boîtes quantiques sur substrat d'orientation (N11), en accord avec les données expérimentales, n'a été menée à notre connaissance. [Povolotskyi04] [Xia90] [Li94] [Bahder95] [Henderson95] [Tomasini98] [MiskaJPC02] D'un autre côté, de nombreuses études théoriques complètes et précises (en accord avec les données expérimentales) ont été menées sur d'autres types de boîtes dans d'autres systèmes III-V classiques comme InGaAs/GaAs ou InAs/GaAs sur substrat (100). Ces études utilisent des approches de type pseudo-potentiels, [Wang00] [Wang99] [Bester05] ou la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes.[Grundmann96] [Guffarth01] [Stier99] [Rastelli04] [Heitz05] [Rodt05] [Sauvage02] Nous nous proposons ainsi d'étudier ici l'effet de l'orientation du substrat sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques InAs/InP de manière précise à l'aide de la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes, puis de décrire les effets Coulombiens dans les boîtes InAs/InP. L'étude présentée ici est appliquée aux boîtes InAs/InP, mais certaines conclusions à propos des effets de l'orientation du substrat tirées de cette étude pourraient également être transposées au cas des boîtes InAs/GaAs.

### *1.3.1.b Géométrie des boîtes choisies*

La procédure de contrôle de la longueur d'onde d'émission DC est entièrement basée sur la possibilité de contrôler la hauteur des boîtes quantiques.[Paranthoen01] La hauteur des boîtes est donc un paramètre clef dans la compréhension des propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques utilisées au laboratoire, et réalisées à l'aide de la procédure DC. Cependant, la structure électronique des boîtes quantiques dépend également de la forme considérée, et de son extension spatiale. La géométrie est ainsi un paramètre d'entrée crucial pour les calculs. La figure 1-14 (a) est une image AFM (Atomic Force Microscopy) d'une boîte quantique typique dans le système InAs/InP sur substrat (311)B. La hauteur moyenne pour ce type de boîtes non recouvertes est d'environ 8 nm avec un diamètre d'environ 35 nm.

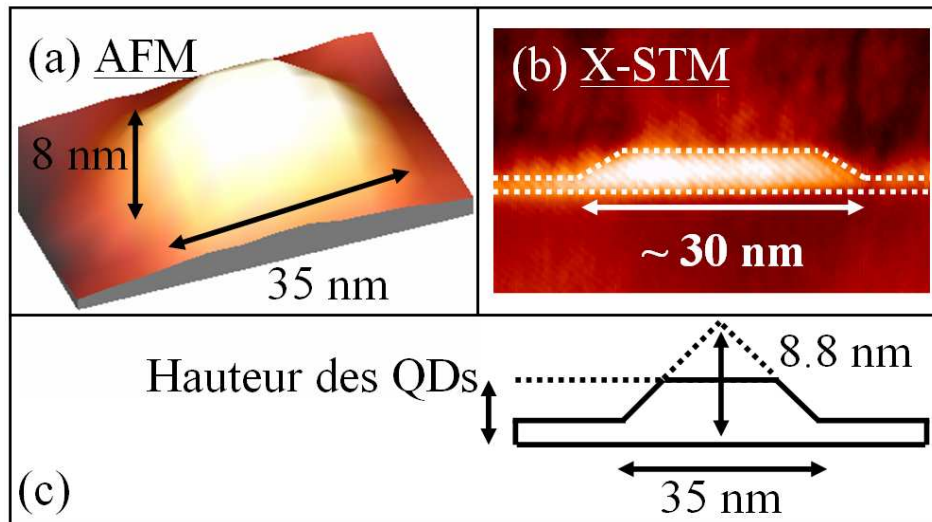


Figure 1-14 : Caractérisations structurales de boîtes quantiques InAs/InP sur substrat (311)B. A partir des images AFM (a) et des images par X-STM (b), où les régions claires représentent les zones riches InAs, une géométrie de cône tronqué (c) est utilisée pour les calculs.

La forme précise en 3D des boîtes quantiques ne peut pour autant être donnée à partir des images AFM, car l'image représente une convolution entre la hauteur réelle des boîtes, et la taille de la pointe utilisée. De plus, sur cette représentation AFM, la boîte quantique considérée n'est pas recouverte (« cappée »), or de sérieuses modifications de la forme de la boîte sont observées lors de ce processus de recouvrement comme le montre une étude précédente en microscopie électronique (TEM).[Paranthoen01] Récemment, des images de très grande qualité ont été réalisées par X-STM (Cross-sectionnal Scanning Tunneling Microscopy) sur des échantillons de même type. La mesure est réalisée en chambre UHV (Ultra-high-vacuum chamber), avec une pression inférieure à  $4.10^{-11}$  Torr sur la surface clivée (1 -1 0). Les pointes sont préparées par gravure électrochimique de fils de tungstène polycristallin. [OffermansphysE05] [Gong04] [OffermansPRB05] La figure 1-14 (b) représente une image X-STM d'une boîte InAs déposée sur de l'InP, et recouverte avec un « simple cap » d'alliage quaternaire :  $\text{In}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$  (Q1.18). Pour cette étude, la procédure DC n'a pas été utilisée pour définir la hauteur de la boîte. Ainsi, naturellement, la boîte considérée possède un profil de triangle tronqué à son sommet. Les deux images AFM et X-STM présentées dans la figure 1-14 (a) et (b) permettent de définir et justifier une géométrie de référence qui sera utilisée pour les calculs de structure fine dans les boîtes quantiques, présentée dans la figure 1-14 (c). Ainsi, la géométrie de la boîte quantique considérée dans les calculs, est de type conique tronqué, où la hauteur totale du cône est égale à 8.8 nm (soit 30 mono-couches (MC) atomiques, où 1 MC  $\sim 0.29$  nm sur le substrat (100)), et la largeur à la base est de 35 nm. Nous ne considérons pas ici d'éventuels effets d'intermixing qui

engendreraient des gradients de composition des boîtes. Cependant, comme les images de X-STM ne permettent pas de remonter à la structure complète des boîtes dans le plan  $(x,y)$ , une symétrie cylindrique est alors choisie, même si les boîtes ne sont pas isotropes sur substrat (311)B, et encore moins sur substrat (100). En effet, des fils sont obtenus sur substrat (100) [Gendry04], et les boîtes quantiques sur substrat (311)B présentent une légère anisotropie, [CaroffTh05] [Fréchengues99] dont les conséquences seront étudiées au chapitre 3. Mais ce choix est motivé par la comparaison des effets de l'orientation du substrat sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes. Cette géométrie permet ainsi de conserver un haut degré de symétrie structurale ( $C_{\infty v}$ ), afin de mettre en avant les effets de perte de symétrie dus à l'orientation du substrat. En prenant comme axe de référence la direction  $[1\ 0\ 0]$ , la géométrie choisie a la plus haute symétrie  $C_{\infty v}$  pour le substrat (100). Cette symétrie est réduite à  $C_{4v}$ , quand un modèle continu (comme la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ ) est utilisé, ne prenant pas en compte les asymétries d'interface, les relaxations atomiques, ou les effets de champ piézo-électrique. [Bester05] Dans un tel cas de figure, aucune levée de dégénérescence des états P de boîte ne doit être envisagée. En revanche, quand la symétrie atomique est prise en compte dans les calculs (effet du champ piézo-électrique dans notre cas), la symétrie est une fois de plus réduite jusqu'à atteindre la symétrie cristalline  $C_{2v}$  liée à la maille Zinc-Blende. [Bester05] Dans ce cas, l'isotropie dans le plan des boîtes n'est plus conservée, et une levée de dégénérescence est attendue sur les états P de boîte. On peut remarquer que les valeurs données par Bester et al. [Bester05] sont déterminées pour le système InAs/GaAs, où le désaccord de maille est plus grand. La levée de dégénérescence des états P devrait donc encore être plus faible dans les boîtes InAs sur substrat InP.

Sur substrat (311)B, la symétrie associée à la morphologie des boîtes choisies est également de type  $C_{\infty v}$  (figure 1-14). Quand la symétrie des déformations est prise en compte, cette symétrie initiale est drastiquement réduite à  $C_s=(E,\sigma)$ , où  $\sigma$  est la symétrie plane  $(0\ 1\ -1)$ . Les notations S et P ne sont alors plus justifiées, mais seront gardées pour des raisons de commodité. Dans ce cas, aucune dégénérescence des états P de boîte n'est attendue, quelque soit la forme de la boîte considérée. La structure dans ce cas perd toute symétrie de rotation de type  $C_v$ , incompatible avec la symétrie cristalline considérée. Il paraît raisonnable de penser que cette perte de symétrie peut et doit avoir des conséquences visibles sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques épitaxiées sur substrat (311)B.

La figure 1-14 montre également l'importance de la couche de mouillage. En effet, la hauteur de nos boîtes étant faible, la différence entre la hauteur de la boîte considérée et la



couche de mouillage n'est plus négligeable comme dans le système InAs/GaAs. Ainsi, la prise en compte de l'effet de la couche de mouillage sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques est essentielle.

Dans ce contexte, des boîtes quantiques InAs/InP de forme conique tronquées ont été définies sur les deux substrats ((311)B et (100)), avec différentes hauteurs (8 MC (1 MC ~ 0.29 nm), 10 MC, 12 MC, 16 MC et 30 MC), , et épaisseurs pour la couche de mouillage (2 MC ou 4 MC).

### *1.3.1.c Calcul des contraintes et déformations*

Le modèle de calcul utilisé est le modèle CM présenté dans le paragraphe 1.1.2.a. Il permet ainsi d'obtenir les composantes du tenseur des déformations et des contraintes. La figure 1-15 représente les différentes composantes du tenseur des déformations pour les boîtes InAs/InP coniques non tronquées dont la hauteur est égale à 30 MC (8.8 nm), sur substrat (100), avec un épaisseur de couche de mouillage de 1.2 nm. A partir de ces résultats, un calcul du champ piézo-électrique peut-être proposé.

### *1.3.1.d Calcul du champ piézo-électrique*

Le calcul du champ piézo-électrique est réalisé à l'aide de la méthode présentée précédemment au paragraphe 1.1.2.b. Les charges et le potentiel piézo-électrique associé issus de ce calcul sont représentés dans la figure 1-16. L'orientation du champ piézo-électrique est ici mise en évidence, et l'influence du champ cristallin est prise en compte de manière précise. La symétrie  $C_{2v}$  du potentiel piézoélectrique apparaît clairement.

Une comparaison quantitative peut-être donnée entre les effets du champ cristallin sur les substrats (311)B et (100). La figure 1-17 présente une comparaison des potentiels piézo-électriques dans des boîtes quantiques sur les deux types de substrat. Le potentiel piézoélectrique sur substrat (311)B présente clairement une symétrie  $C_s$ .

Ce champ piézoélectrique est faible dans les deux cas. Mais cet effet, même si il est quantitativement faible, a des conséquences très importantes pour la structure électronique. Il change à lui seul la symétrie sur substrat (100). Dans le cas du substrat (311)B, la symétrie  $C_s$  est introduite plus directement par les déformations et l'Hamiltonien de Pikus-Bir dans les calculs de structure électronique.

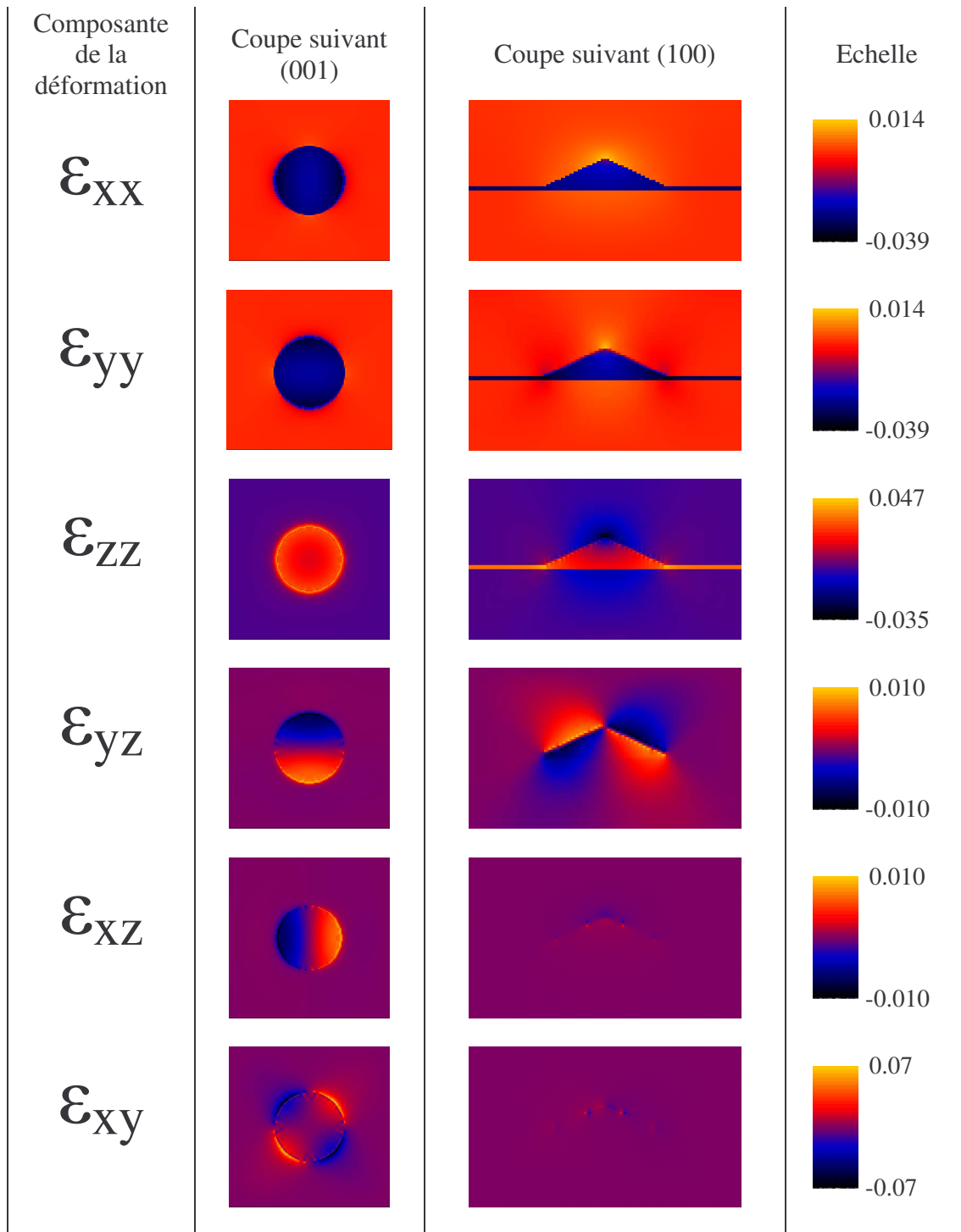
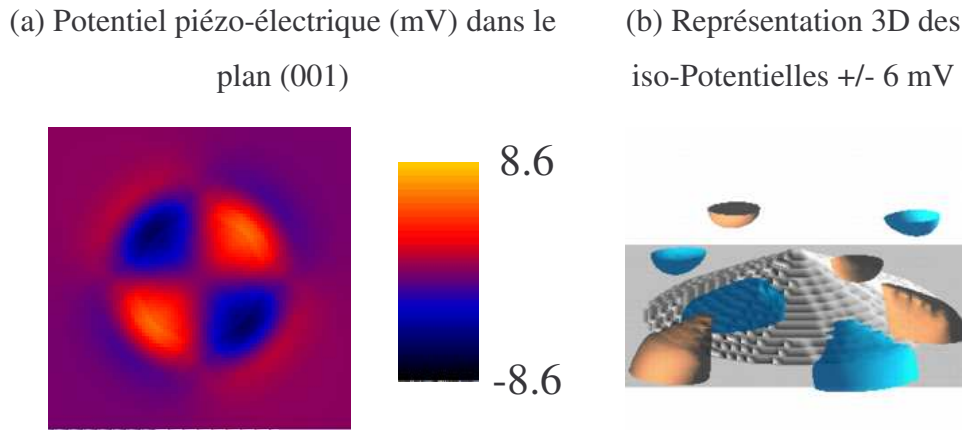
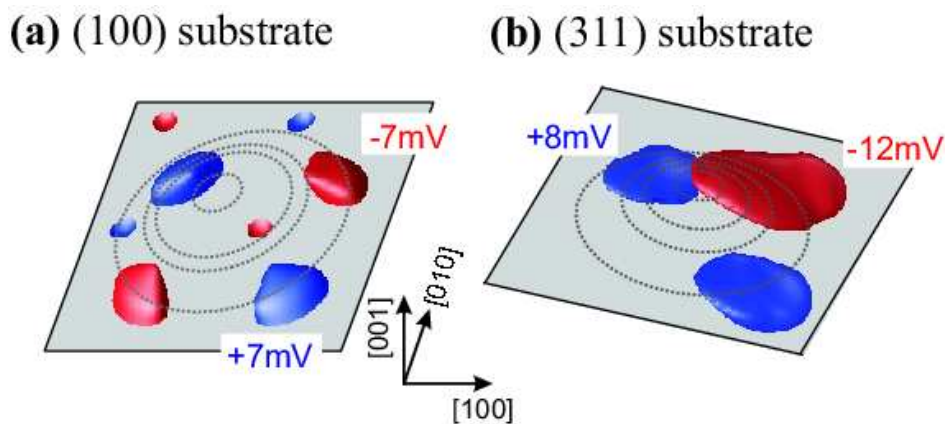


Figure 1-15 : Distribution spatiale des déformations dans et à proximité de la QD conique InAs/InP (100) avec un diamètre de base de 35 nm et une hauteur de 8.8 nm (30 MC). Cette QD est posée sur une couche de mouillage de 2 monocouches (~1.2 nm). Les composantes du tenseur des contraintes sont représentées dans le plan (001) coupant la QD 1 monocouche au-dessus de la couche de mouillage, et dans le plan (100) passant par le barycentre de la QD.



*Figure 1-16 : Potentiel piézo-électrique dans une boîte quantique conique InAs/InP (100) ayant un diamètre de base de 35 nm. Une représentation 2D (a) permet de quantifier le potentiel piézo-électrique dans la boîte quantique. Une représentation 3D (b) permet de comprendre la distribution spatiale du potentiel piézo-électrique. L'effet de la symétrie cristalline est ainsi illustré.*

De plus, ces effets mêmes faibles ont des conséquences sur les effets Coulombiens à N-corps dans ces boîtes. Etant donné que le champ piézo-électrique éloigne les électrons dans un sens et les trous dans l'autre, il change les paramètres de l'interaction Coulombienne entre électrons et trous. Enfin, le champ piézoélectrique dépend de la taille de la boîte, car il dépend de la distance entre les charges piézoélectriques définies précédemment. Ainsi, plus la boîte est grande, plus les charges piézoélectriques localisées dans la boîte sont éloignées les unes des autres, plus le champ électrique résultant est intense.



*Figure 1-17 : Orientation et représentation du potentiel piézo-électrique (isopotentiellles) pour des boîtes quantiques InAs/InP sur substrat (100) (a) et (311)B (b).*

### 1.3.1.e Propriétés générales du potentiel de confinement dans le système InAs/InP

Avant de rentrer plus dans les détails de la structure électronique fine des boîtes quantiques InAs/InP, une analyse détaillée du potentiel de confinement InAs/InP, ainsi qu'une comparaison avec le système InAs/GaAs de référence permet d'analyser les contributions des différentes bandes énergétiques. Dans la figure 1-18, les potentiels de confinement des deux systèmes cités précédemment sont comparés dans le cas de boîtes quantiques pyramidales sur substrat (100) à  $T=0K$ . Dans la partie centrale (b) de la figure 1-18, les structures de bande non contraintes relatives à l'InAs sont présentées. Les raccords de bande sont différents, illustrant la différence fondamentale entre les deux systèmes : dans le système InAs/GaAs, un anion commun est partagé, alors que dans le système InAs/InP, c'est un cation qui est mis en commun. En présence des déformations, les énergies de la structure de bande sont modifiées (cf. section (a) pour InAs/InP et (c) pour InAs/GaAs) par la déformation hydrostatique (affectant principalement la bande de conduction), et par la déformation biaxiale (qui elle, permet de lever la dégénérescence HH/LH au point  $\Gamma$  de centre de zone). De manière quantitative, cet effet est beaucoup plus fort pour de l'InAs dans du GaAs, à cause du fort désaccord de paramètre de maille (6.6 % sur GaAs comparé à 3.1% pour l'InP), et de l'augmentation de la déformation hydrostatique qui l'accompagne.

L'élément le plus marquant ici est la différence très importante entre le gap contraint d'InAs dans l'InP ( $\sim 475$  meV), et dans le GaAs ( $\sim 775$  meV à 0K). Cette différence fondamentale permet d'envisager d'atteindre assez facilement l'émission à  $1.55 \mu\text{m}$  avec de l'InP, ce qui est très difficile dans le système de boîtes InAs/GaAs.

Etant donné que la profondeur du potentiel de confinement pour les électrons est similaire dans les deux cas, il semble raisonnable de s'attendre à obtenir les mêmes spectres en énergie dans la bande de conduction, toute chose étant égale par ailleurs (et notamment la morphologie et les masses effectives). Ceci n'est en revanche pas vrai pour les états de trou de la bande de valence, étant donné que le potentiel de confinement dans les boîtes InAs/InP est beaucoup plus profond, et qu'alors la levée de dégénérescence HH/LH est plus petite.

Les paramètres matériaux d'entrée de l'analyse  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  présentée ici, sont tirés de la référence [Stier99] pour l'InAs, et de la référence [Vurgaftman01] pour l'InP.

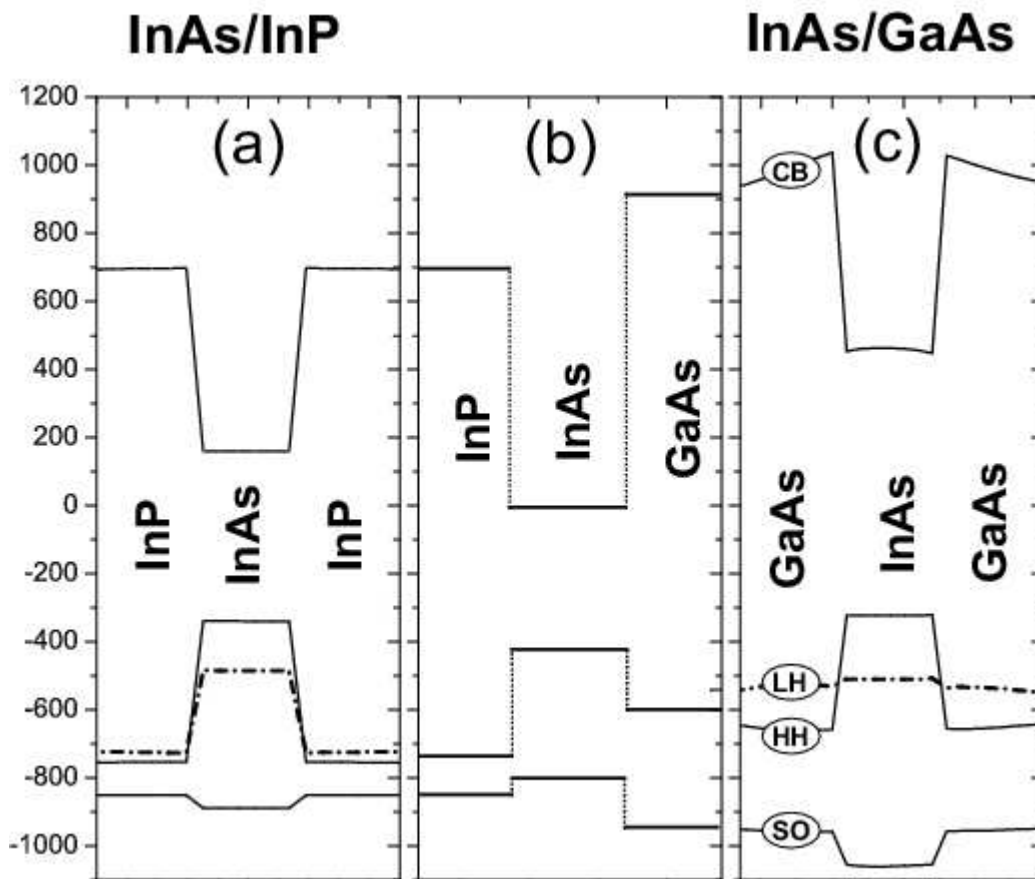
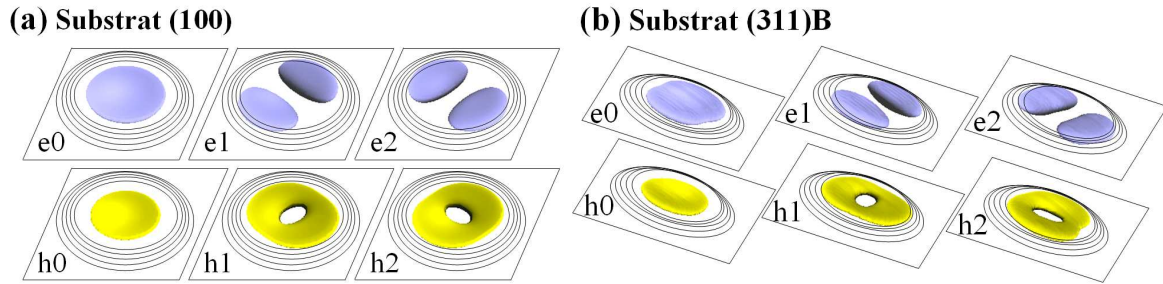


Figure 1-18 : Profil du potentiel de confinement à  $T = 0$  K pour une boîte d'InAs encapsulée dans de l'InP (100) (a) ou dans du GaAs (100) (c). Dans la section centrale (b), est présentée la structure de bande pour InP et GaAs non contraints relativement à l'InAs.

### 1.3.2 Propriétés optiques des boîtes quantiques : validation du modèle

#### 1.3.2.a Fonctions d'onde monoélectroniques

La figure 1-19 représente les trois premières fonctions d'onde pour les électrons et les trous dans les boîtes quantiques InAs/InP (isosurfaces à 70%) pour les deux substrats (100) et (311)B. Les symboles  $e_0$ , et  $h_0$  sont utilisés pour décrire les états  $1S_e$  et  $1S_h$  d'électrons et de trou (i.e. avec une symétrie de type S dans le plan des boîtes, en suivant les notations usuellement adoptées en coordonnées cylindriques). [MiskaJPC02]  $e_1$ ,  $e_2$ ,  $h_1$  et  $h_2$  sont utilisés pour décrire les états  $1P_e$  et  $1P_h$  d'électrons et de trou (i.e. avec une symétrie de type P dans le plan des boîtes en coordonnées cylindriques).



*Figure 1-19* : Représentation des fonctions d'onde pour les électrons et les trous pour les trois premiers états confinés de boîte sur substrat (100) (a) et sur substrat (311)B (b), avec une hauteur de boîte de 2.93 nm.  $e_0$ ,  $e_1$ ,  $e_2$ , décrivent les états électroniques de type S et P.  $h_0$ ,  $h_1$ ,  $h_2$  décrivent les états de trous de type S et P.

*L'utilisation du substrat (311)B induit une anisotropie de la fonction d'onde.*

### 1.3.2.b Confrontation à l'expérience - validation du modèle

L'utilisation de ce modèle a déjà prouvé à maintes reprises son bon accord avec les données issues de l'expérience dans le système InAs/GaAs.[Seguin05] Toutefois, nous avons montré précédemment que les boîtes quantiques InAs/InP présentaient de nettes différences avec les boîtes InAs/GaAs, tant du point de vue des potentiels de confinement, que du point de vue structural. Une validation du modèle dans le système InAs/InP paraît donc nécessaire. Ainsi, une comparaison entre les énergies des transitions excitoniques fondamentales issues du calcul, et la position des pics de photo-luminescence mesurées pour des boîtes quantiques InAs/InP (311)B permet de valider le modèle choisi. La figure 1-20 représente les transitions excitoniques de type 1Se-1Sh mesurées (triangles), calculées d'une part à l'aide de l'approximation  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande présentée en partie 2 de ce chapitre, [MiskaJPC02] (tirets), et d'autre part calculées à l'aide de la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  8-bandes dans ce travail (traits pleins), en fonction de la hauteur des boîtes quantiques InAs/InP. La photoluminescence présentée ici a été mesurée à 4.2 K dans un cryostat à Hélium. En effet, tous les résultats présentés ici sont issus de calculs réalisés à 0 K, car il est très difficile de rendre compte des effets thermiques dans les calculs. Un laser Krypton continu (longueur d'onde de 647 nm) est utilisé pour exciter l'échantillon, avec une puissance moyenne de 1 mW (puissance suffisamment faible pour éviter qu'une grande partie de l'émission de photons ne puisse provenir d'éventuels niveaux supérieurs en énergie). Les échantillons choisis sont conçus avec différentes épaisseurs de premier cap, et donc différentes hauteurs de boîtes (2 nm, 3 nm, 4 nm, 5 nm), en utilisant la procédure de croissance DC. [Paranthoen01]

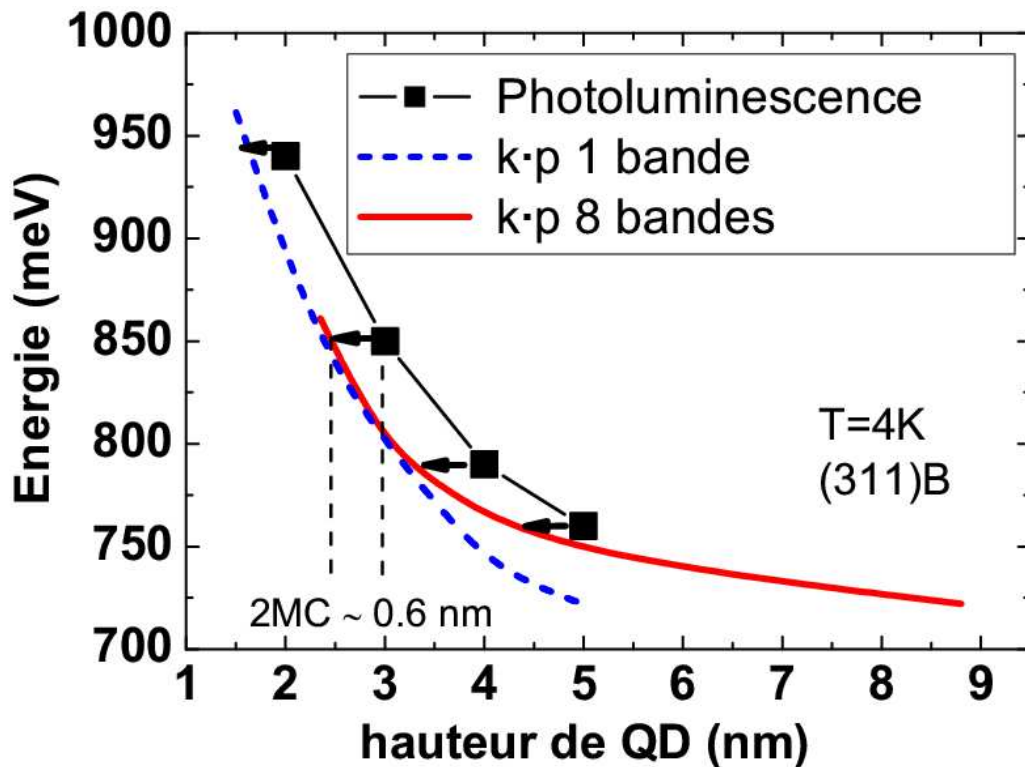


Figure 1-20 : Energies des transitions excitoniques dans les boîtes quantiques InAs/InP coniques tronquées, calculées (trait plein pour la méthode  $k\cdot p$  8-bandes, tirets pour l'approximation  $k\cdot p$  1-bande présentés dans la référence [MiskaJPC02]), et mesurées (carrés), en fonction de la hauteur des boîtes.

La hauteur des boîtes quantiques reportée sur la figure 1-20 est une approximation de la hauteur réelle des boîtes. En effet, en première approximation, la hauteur expérimentale des boîtes, proposée sur la figure ci-dessus, est fixée égale à l'épaisseur d'InP déposée pendant la première étape de la procédure DC. Cependant, d'après l'analyse des mécanismes de croissance mis en jeu dans la procédure DC, il a été montré précédemment que l'épaisseur déposée d'InP durant le premier cap de la procédure DC est plus grande que la hauteur effective des boîtes d'environ 2 MC ( $\sim 0.6$  nm).[Paranthoen01] La position en énergie des pics de luminescence est déterminée avec une très bonne précision. Nous pouvons considérer que les calculs  $k\cdot p$  8-bandes présentent un très bon accord avec les données expérimentales, étant donné qu'une simple translation de la hauteur des boîtes d'environ 0.6 nm suivant la direction horizontale permet de faire coïncider les deux courbes expérimentales et théoriques (les flèches sur la figure 1-20 illustrent la translation constante à réaliser entre les courbes expérimentales et théoriques permettant de valider le modèle utilisé). La figure 1-20 permet également de montrer les limitations de l'approximation  $k\cdot p$  1 bande, ajustée ici à l'expérience,[MiskaJPC02] tout particulièrement pour de grosses boîtes (au-delà de 3 nm).

1.3.2.c Spectres d'absorption excitonique

La figure 1-21 présente le spectre d'absorption excitonique pour une boîte InAs/InP de hauteur 8.8 nm sur substrat (311)B, la couche de mouillage est ici choisie avec une épaisseur de 4 MC.

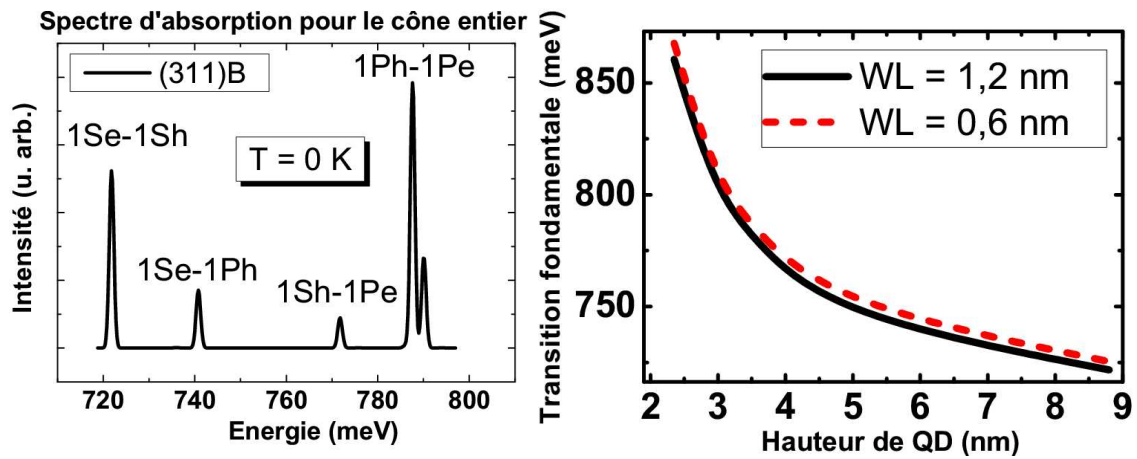


Figure 1-21 : Spectre d'absorption excitonique calculé par la méthode  $k \cdot p$  8-bandes, sur des boîtes quantiques InAs/InP (311)B coniques de hauteur 8.8 nm. Influence de l'épaisseur de la couche de mouillage sur la transition fondamentale 1Se-1Sh de la boîte quantique InAs/InP (311)B en fonction de la hauteur de boîte.

Le spectre d'absorption présenté ici est constitué de transitions principales de type 1Se-1Sh, et 1Pe-1Ph, ainsi que de transitions croisées de type 1Se-1Ph ou 1Sh-1Pe. Ces transitions ne sont pas prévues par les calculs  $k \cdot p$  1 bande présentés dans la figure 1-9. En effet, ces transitions croisées ne peuvent être prédites que si l'on ne prend en compte la symétrie cristalline. Ce point sera détaillé dans la suite. De plus, on ne considère dans les spectres de la figure 1-21 que les niveaux d'énergie de type 1S et 1P, et non ceux de type 1D et 2S. Les temps de calculs mis en jeu en prenant en compte ces niveaux d'énergie sont très longs. Sur ces spectres, un éclatement de la transition 1Pe-1Ph est observée contrairement aux spectres présentés dans la figure 1-9. Cet éclatement est lié à la levée de dégénérescence des niveaux qui résulte également du fait que le calcul prend en compte la symétrie cristalline du système. Enfin, l'écart mesuré entre la transitions fondamentale 1Se-1Sh et la transition excitée de type 1Pe-1Ph est d'environ 70 meV pour cette boîte quantique conique de hauteur 8.8 nm et de diamètre 35 nm.

L'influence de l'épaisseur de la couche de mouillage est également présentée dans la figure 1-21. Dans la référence [CornetPRB05], il a été montré que la couche de mouillage pouvait



avoir une importance non négligeable dans la description de la structure électronique de la boîte quantique. Dans cette figure, la transition excitonique fondamentale de boîte est tracée pour deux structures avec une épaisseur de couche de mouillage de respectivement 0.6 (2MC) et 1.2 nm (4 MC). Comme attendu, l'énergie de la transition excitonique fondamentale est plus petite pour la plus grande épaisseur de couche de mouillage considérée. Ceci est logiquement relié au taux de pénétration de la fonction d'onde dans la couche de mouillage.[CornetPRB05] Ainsi, l'influence de l'épaisseur de la couche de mouillage sur les déformations et le champ piézoélectrique dans la boîte est faible. Les calculs présentés dans la suite sont ainsi réalisés avec des structures dont la couche de mouillage est de 1.2 nm. Ce choix est motivé par l'épaisseur mesurée en X-STM, qui est autour de 1 nm.

La figure 1-22 présente les spectres d'absorption excitonique pour des boîtes de différentes hauteurs sur substrat (100). Les spectres d'absorption calculés sont ici tracés suivant la polarisation  $[0\ 1\ -1]$ , étant donné que cet axe appartient au plan des boîtes pour les deux substrats considérés ( $[0\ 1\ -1]$  est en effet perpendiculaire aux deux axes de croissance  $[3\ 1\ 1]$  et  $[1\ 0\ 0]$ ). Dans ce cas, l'énergie de liaison de l'exciton est environ de 15 meV quelques soient les différentes hauteurs de boîte considérées. Les spectres montrent un décalage vers les hautes énergies de 135 meV de la transition fondamentale lorsque la boîte passe d'un cône entier à un cône tronqué de hauteur 8 MC (2.3 nm). Ce décalage est la conséquence directe de l'effet de confinement quantique dans les boîtes. Les transitions excitées n'ont pas le même décalage en énergie que la transition fondamentale. Ceci est dû au fait que le rapport de forme de la boîte considérée n'est pas constant. La boîte quantique étant tronquée en hauteur, et cet écart entre niveaux d'énergie étant relié au confinement latéral dans l'hétérostructure considérée, pour des boîtes quantiques non tronquées, il existe une zone en haut de la boîte pour laquelle le confinement latéral est fort. Ainsi, les niveaux d'énergie sont plus éloignés. La boîte quantique tronquée a une forme quasi cylindrique, et n'a donc pas de zone où le confinement latéral est fort. Ainsi, l'écart entre état fondamental et états excités est plus faible.

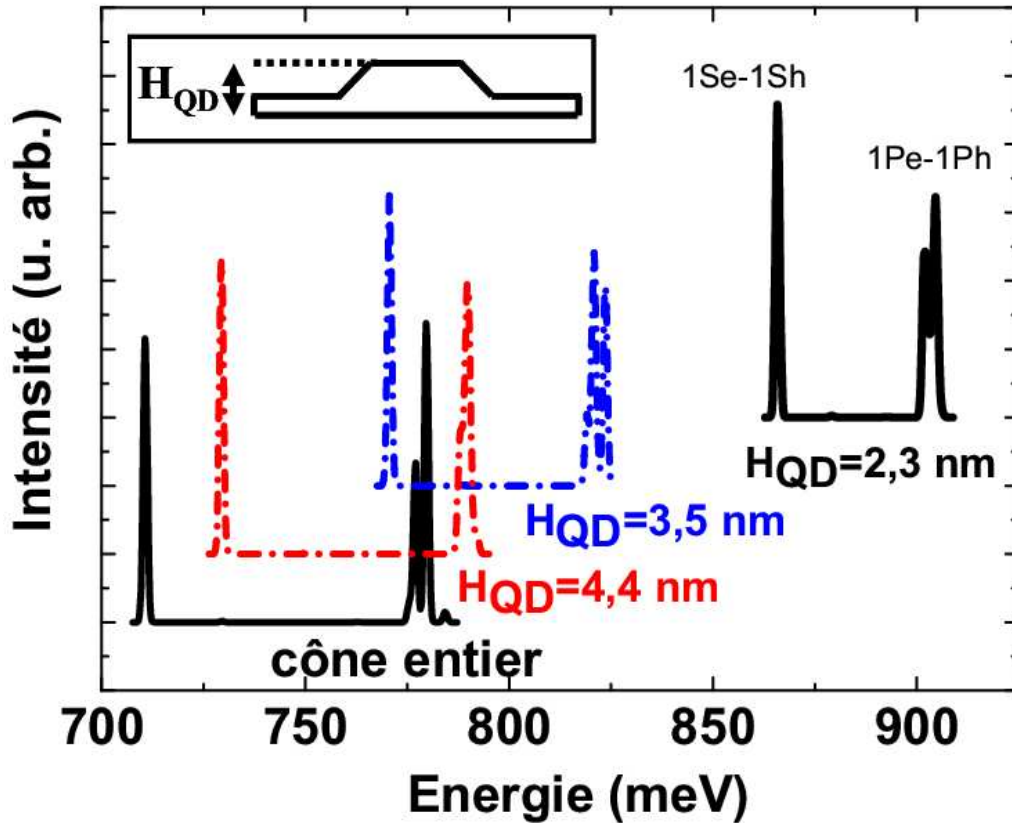


Figure 1-22 : Spectres d'absorption excitonique calculés par la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  8 bandes sur des boîtes quantiques InAs/InP (100), en fonction de la hauteur des boîtes, pour une polarisation suivant la direction  $[0\ 1\ -1]$  et pour  $T = 0\text{ K}$ . Une boîte quantique conique tronquée, de diamètre de base 35 nm est considérée.

Les spectres calculés avec la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  8-bandes et présentés sur la figure 1-22 permettent ainsi d'accéder à un niveau de précision bien plus grand que les calculs réalisés précédemment.[MiskaJPC02] Une comparaison entre les différents substrats (311)B et (100) peut être réalisée précisément. La dernière partie de ce chapitre est donc consacrée à l'étude de l'effet de l'orientation du substrat sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques.

### 1.3.3 Influence de l'orientation du substrat sur les propriétés optiques des boîtes quantiques

#### 1.3.3.a *Transitions excitoniques fondamentales sur (311)B et (100)*

Dans la figure ci-dessous, la transition excitonique fondamentale ( $X_0$ ) est représentée en fonction de la hauteur des boîtes quantiques pour les deux substrats considérés.

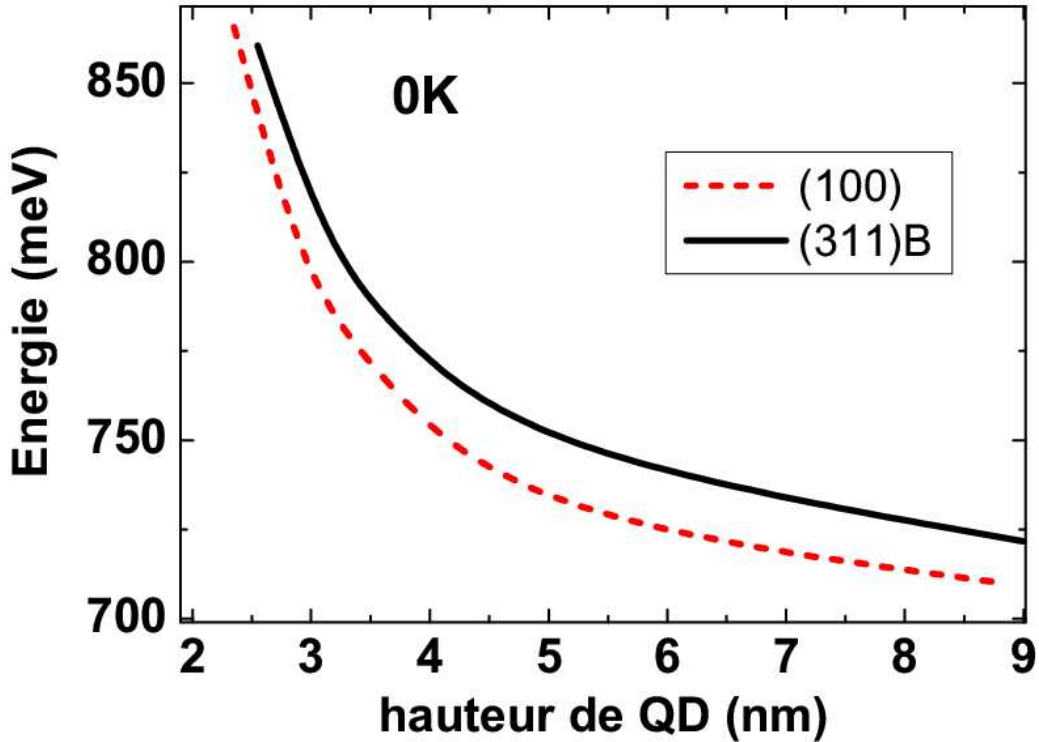


Figure 1-23 : Comparaison entre les transition excitoniques fondamentales calculées dans des boîtes InAs/InP (311)B (trait plein), et des boîtes InAs/InP (100) (pointillés), en fonction de la hauteur des boîtes. La différence entre les deux courbes est principalement reliée aux déformations hydrostatiques.

Deux principaux renseignements peuvent en être déduits : (1) Plus la taille de la boîte est petite, plus l'énergie de la transition ( $X_0$ ) devient grande ; c'est l'effet de confinement quantique lié à l'extension spatiale de la zone confinée. (2) L'énergie de transition ( $X_0$ ) est toujours plus grande dans le cas de boîtes quantiques sur substrat (311)B, presque indépendamment de la hauteur de boîte considérée. Afin de mieux comprendre et approfondir cette dernière observation, une analyse (a) des énergies d'électrons et de trous et (b) des énergies de transition ( $X_0$ ) est présentée dans la suite.

(a) *Les états monoélectroniques* : L'énergie fondamentale monoélectronique peut-être séparée en plusieurs contributions :  $E = E_{quant} + E_{conf}^0 + E_{hydro}^{strain} + E_{piezo} + E_{\Delta}$ , où  $E_{quant}$  représente la partie énergie cinétique du Hamiltonien,  $E_{hydro}^{strain}$  le décalage en énergie induit par la déformation hydrostatique ( $\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}$ ),  $E_{piezo} = \langle \Psi | V_{piezo} | \Psi \rangle$  le décalage en énergie induit par le champ piézo-électrique interne, et  $E_{conf}^0 = \langle \Psi | V_{conf} | \Psi \rangle$  l'énergie locale de confinement reliée à la position de la bande de conduction « non contrainte ». Cette énergie est minimale dans le cas où la fonction d'onde est entièrement localisée dans la boîte, et augmente plus la

fonction d'onde pénètre dans la barrière. Cette grandeur est donc un « indicateur de délocalisation » de la fonction d'onde en dehors de la boîte.  $E_{\Delta}$  contient les contributions induites par les composantes non diagonales du Hamiltonien se rapportant au tenseur des déformations (déformations tétraogales et de cisaillement), et le couplage avec la bande de valence. Pour les états de trous, un terme additionnel apparaît alors dans l'énergie :  $E_{biaxial}^{strain} = \langle \Psi | b(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}) | \Psi \rangle$ , reflétant l'influence des déformations tétraogales, où  $b$  est le potentiel de déformation de cisaillement. Le fait que quelque soit la hauteur de boîte considérée, l'énergie de transition est toujours plus haute sur substrat (311)B que sur (100) comme présenté précédemment (figure 1-23), n'est pas véritablement surprenant, car l'effet de déformation hydrostatique est plus grand pour le (311)B, que pour le (100),  $(E_{hydro}(e_0))(311) > (E_{hydro}(e_0))(100)$ , comme il a déjà été montré par Miska et al. [MiskaJPC02] Cette différence entre les deux substrats pour la « contribution hydrostatique » est de 10 meV pour les grandes boîtes et de 15 meV pour les boîtes tronquées les plus plates (figure 1-24 (c)). Le saut de bande de conduction est plus petit sur substrat (311)B, et la fonction d'onde électronique plus délocalisée.

Ainsi, en comparaison aux boîtes équivalentes sur (100), l'énergie locale de confinement dans la bande de conduction non contrainte  $E_{conf}^0(e_0)$  augmente et l'énergie cinétique  $E_{quant}(e_0)$  diminue pour les boîtes (311)B (figures 1-24 (a) et (b)). Dans le cas du substrat (311)B, une légère contribution du potentiel piézo-électrique est observée même pour l'état fondamental électronique, contrairement au cas du substrat (100). Cette contribution est de 3.2 meV pour les plus hautes boîtes, et de 0.4 meV pour les boîtes InAs/InP (311)B les plus plates. Ceci est dû au fait que le potentiel piézo-électrique attire l'électron dans une partie de la boîte quantique, et repousse le trou dans la partie opposée. Dans le système (100), les fonctions d'onde sont distordues et allongées, mais les barycentres des fonctions d'onde pour les électrons et les trous coïncident malgré tout avec le barycentre de la structure. Ainsi, l'effet du potentiel piézo-électrique est assez sensiblement augmenté sur substrat (311)B.

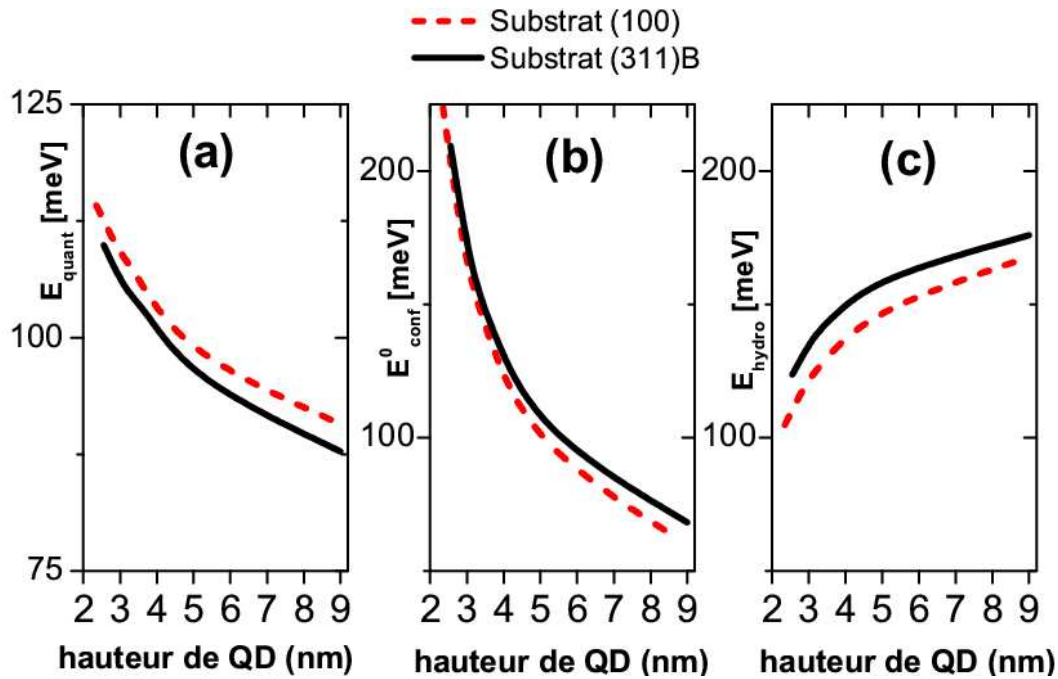


Figure 1-24 : Energie fondamentale électronique en fonction de la hauteur de QD décomposée en diverses contributions : (a) l'énergie cinétique  $E_{\text{quant}}$ , (b) l'énergie de confinement  $E_{\text{conf}}^0$ , et (c) le décalage en énergie induit par la déformation hydrostatique pour les deux substrats (311)B et (100).  $E_{\text{piezo}}$  n'est pas présenté ici, car proche de 0 pour l'état fondamental.

(b) *Les énergies excitoniques de transitions* : L'énergie de transition excitonique ( $X_0$ ) est principalement fonction de l'extension spatiale des fonctions d'onde d'électrons et de trous, et de leur positions respectives. L'état fondamental électronique sur substrat (311)B est légèrement délocalisé, et les barycentres des fonctions  $\Psi_{e0}$  et  $\Psi_{h0}$  sont légèrement décalés par le champ piézoélectrique. L'énergie de liaison de l'exciton ( $X_0$ ) est donc légèrement plus petite sur le substrat (311)B. Cependant, la différence entre les deux substrats reste très faible à morphologie équivalente :  $\Delta E_{X_0} = E_{X_0}(100) - E_{X_0}(311) = 2 \text{ meV}$ , ce qui accentue légèrement le décalage vers les hautes énergies dû à l'augmentation de la déformation hydrostatique sur substrat (311)B.

La différence entre les deux énergies des transitions fondamentales sur les deux substrats est cependant plus faible ici que celle calculée dans la référence [MiskaJPC02]. Dans cette référence, cependant, l'influence de  $E_{\text{piezo}}$  et d'éventuelles variations de  $E_{\text{quant}}$  (dues à des variations de masses effectives), n'ont pas pu être prises complètement en compte. Ainsi, la partie du Hamiltonien se rapportant au tenseur des contraintes incluant les déformations hydrostatiques et de cisaillement joue le rôle le plus important dans l'explication de la différence de comportement entre les substrats (311)B et (100). La différence de

comportement entre les contraintes de cisaillement, tétraogonales, et hydrostatiques sur les deux substrats (100) et (311)B a déjà été démontrée pour des couches de semiconducteurs séparées par des interfaces cohérentes.[DeCaro93] L'influence de ces déformations sur les propriétés électroniques des boîtes quantiques a également été observée dans le système InAs/GaAs.[Povolotskiy04] Le décalage en énergie induit pas le champ piézoélectrique sur substrat (311)B a aussi été démontré expérimentalement sur des boîtes quantiques InAs/GaAs.[Patanè00] En conclusion, nous proposons d'interpréter la différence entre les deux substrats InP (311)B et (100) comme la conséquence directe de l'effet des différences de contraintes tétraogonales/cisaillement et hydrostatiques entre les deux substrats. La principale différence observée entre les deux substrats est reliée à la contrainte hydrostatique, quelque soit la taille de la boîte. La différence entre les contraintes tétraogonales/hydrostatiques sur les deux substrats est faible, mais dépend de la taille des boîtes envisagées. L'effet piézoélectrique ajoute également une correction en énergie.

### *1.3.3.b Spectres d'absorption des boîtes sur (311)B et (100)*

L'analyse complète pour la totalité du spectre d'absorption peut maintenant être réalisée sur les substrats (311)B et (100). La figure 1-25 représente la comparaison entre les spectres d'absorption pour des boîtes coniques (de hauteur 30 MC (8.8 nm)) sur les deux substrats. Les spectres d'absorption sont convolués artificiellement après le calcul par une fonction Gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 2 meV. Dans le cas des boîtes quantiques sur substrat (100), les transitions croisées du type 1Se-1Ph et 1Sh-1Pe n'apparaissent pas sur le spectre, ce qui révèle la différence profonde de symétrie entre les deux systèmes considérés ici. Dans les deux cas, l'écart moyen entre transitions 1Se-1Sh et 1Pe-1Ph est d'environ 40 meV, pour des boîtes dont la transition fondamentale 1Se-1Sh est à 0.8 eV (1.55  $\mu\text{m}$ ) à température ambiante. Cette observation est en accord avec les calculs réalisés dans l'approximation  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande,[MiskaJPC02] mais ne correspond pas à tous les résultats expérimentaux obtenus dans le chapitre 2, et en particulier dans les boîtes InAs/InP. Le spectre d'absorption des boîtes sur substrat (100) paraît décalé dans son ensemble vers les basses énergies par rapport à celui des boîtes sur substrat (311)B. L'écart entre transitions fondamentale et excitées est identique en première approximation.

La figure 1-26 (a) et (b) représente la variation des énergies des transitions excitoniques pour les deux orientations de substrat en fonction de la hauteur de QD. Ces transitions sont pointées à partir des spectres d'absorption polarisés suivant  $[0\ 1\ -1]$ , qui est une direction appartenant au plan des boîtes pour les deux substrats considérés.

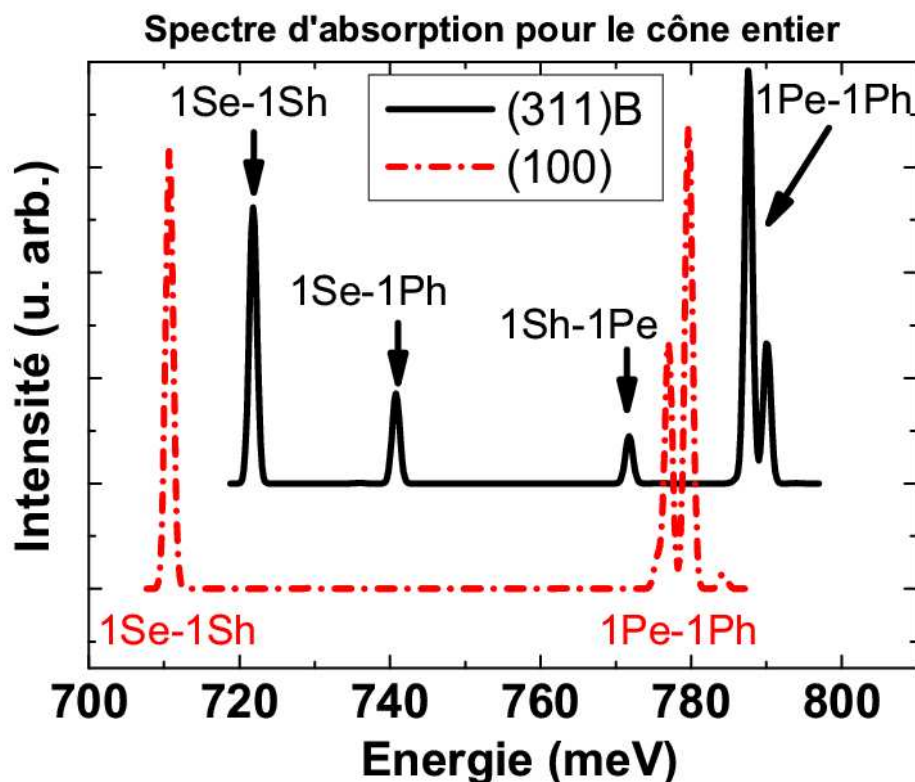


Figure 1-25 : Comparaison entre les spectres d'absorption à  $T = 0$  K des boîtes quantiques coniques (de hauteur 30 MC) pour les deux orientations de substrat (311)B (trait plein) et (100) (tirets). Les transitions croisées sont activées optiquement sur substrat (311)B.

Nos résultats indiquent que la levée de dégénérescence des états à caractère P dépend principalement de la taille des boîtes, et de manière curieuse assez peu de l'orientation du substrat.

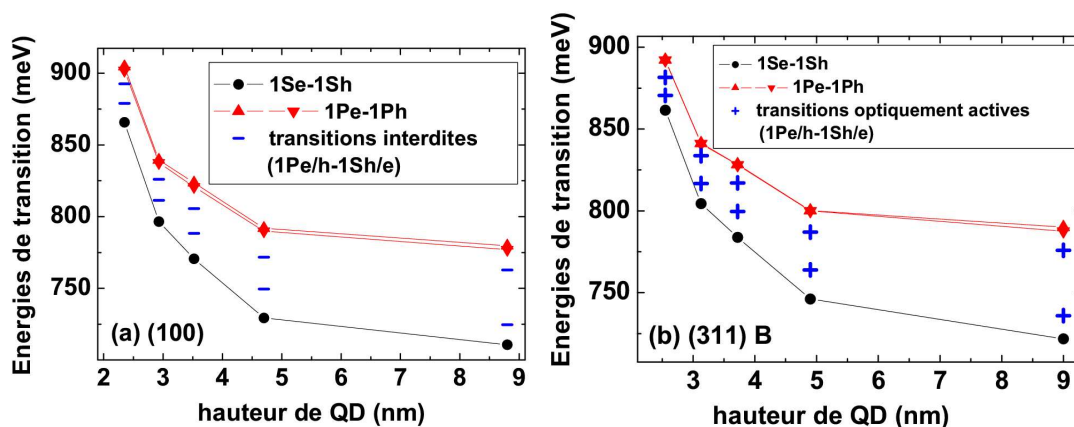


Figure 1-26 : Comparaison entre les transitions calculées pour des boîtes InAs/InP (100) (a) et pour des boîtes InAs/InP (311)B (b), en fonction de la hauteur des boîtes, à  $T = 0$  K. Sur substrat (311)B, les transitions du second ordre (+) deviennent optiquement actives.

Il faut noter qu'un splitting des états P doit être observé sur substrat (311)B même en l'absence d'effet piézoélectrique. Ceci est dû au fait que la symétrie des déformations  $C_s$  est très différente de la symétrie  $C_{4v}$ .

Sur substrat (311)B, la séparation de ces niveaux d'énergie  $\Delta E_P$  est aussi en partie reliée au champ piézo-électrique.[Stier99] Sur substrat (100) et dans la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes, la levée de dégénérescence des états électroniques et de trous de type P, en présence d'une symétrie structurale de type  $C_{\infty v}$  n'est dû qu'à l'effet piézoélectrique. Si  $\Delta E_P$  est similaire pour les deux substrats, cela résulte d'un effet de compensation dans le cas du substrat (311)B.

le champ piézo-électrique lui-même est très différent dans sa force, et dans sa symétrie (figure 1-17). Dans le cas du substrat (100), les lobes des surfaces isopotential positives et négatives respectent la symétrie  $C_{2v}$ , ce qui n'est pas le cas pour le substrat (311)B. Sur ce substrat, le potentiel piézo-électrique a pour symétrie  $C_s$ . Les maxima des parties positives et négatives ne sont pas égaux. Pour la boîte quantique conique non tronquée sur substrat (311)B (figure 1-17 (b)), le potentiel piézo-électrique varie entre  $-25.2$  mV et  $12.8$  mV, ce qui est à comparer avec les valeurs de  $\pm 8.5$  mV pour les boîtes InAs/InP sur substrat (100) (figure 1-17 (a)).

Dans les deux cas, la levée de dégénérescence des états P est aussi dépendante de la taille des boîtes, ce qui est à relier à la dépendance du champ piézo-électrique avec la taille des boîtes. Cette dépendance est bien connue pour des boîtes InAs/GaAs sur substrat (100),[Stier99] et peut-être étendue sans problème au cas du substrat (311)B, d'après ce qui peut être observé sur la table 1-2.

QD height [nm]	Substrate orientation	Min( $V_{\text{piezo}}$ )[mV]	Max( $V_{\text{piezo}}$ )[mV]
2.3	(100)	-2.5	2.5
2.5	(311)B	-10.6	7.9
8.8	(100)	-8.5	8.5
9.0	(311)B	-25.2	12.8

Table 1-2 : Valeur du potentiel piézo-électrique en fonction de la taille de la boîte et de l'orientation du substrat.

L'amplitude du champ piézo-électrique est donc plus grande dans les boîtes sur substrat (311)B que sur substrat (100), cependant cela ne reflète pas la faible levée de dégénérescence observée sur les états P. Le champ piézo-électrique dans le cas du substrat (311)B ne s'applique pas dans le plan des boîtes, et ne respecte pas la symétrie des états P. En considérant que les effets de l'augmentation de l'effet piézoélectrique sur substrat (311)B, et



de la diminution de la symétrie ne vont pas dans le même sens, un phénomène de compensation entre les deux effets est alors possible.

Une autre différence visible (figure 1-26), entre les deux types de substrats, est l'apparition de transitions du second ordre pour des boîtes sur substrat (311)B. Tandis que sur substrat (100) (figure 1-26 (a)), les spectres d'absorption sont principalement constitués de transitions du premier ordre de type 1Se-1Sh, ou 1Pe-1Ph, les spectres d'absorption sur substrat (311)B permettent également de mettre en évidence des transitions interdites d'ordre 2 de type 1Se-1Ph ou 1Sh-1Pe. Sur substrat (100) en l'absence d'effets excitoniques et pour une symétrie des états monoélectroniques de type  $C_{2v}$ ,  $C_{4v}$  ou  $C_{\infty v}$ , ces transitions sont interdites. Pour des boîtes ayant au moins la symétrie  $C_{2v}$ , l'intégrale de recouvrement entre les fonctions enveloppe des électrons de type P :  $\Psi_{e1}$  et les fonctions de trous de type S :  $\Psi_{h0}$  :  $\langle \Psi_{e1} | \Psi_{h0} \rangle$  disparaît car les fonctions enveloppes choisies correspondent à des représentations irréductibles différentes. Ces transitions peuvent être toutefois très faiblement activées si l'on prend en compte les effets excitoniques. Par ailleurs, la symétrie associée au spin (découplage trous lourds - trous légers par exemple) doit être prise en compte pour calculer les dipôles associés aux transitions optiques. L'état fondamental de trous possède un caractère « trou léger » dont il faut tenir compte.

Pour les boîtes (311)B, la symétrie du système étant  $C_s$ , ces transitions ne sont plus interdites. Le barycentre de l'état fondamental de trou est translaté vers un des bords de la boîte, tandis que les états P électroniques sont translatés vers le bord opposé de la boîte. Ainsi, l'intégrale  $\langle \Psi_{e1} | \Psi_{h0} \rangle$  ne peut plus s'annuler pour des raisons de symétrie. Cependant, plus les boîtes sont petites, plus faibles sont ces transitions.

En conclusion, toutes les différences observées entre les deux substrats peuvent être reliées à la perte de symétrie  $C_v$  dans le système (311)B qui a pour conséquence d'augmenter les contraintes de cisaillement, ce qui est visible sur l'amplitude du champ piézo-électrique.

### *1.3.3.c Discussion : effets des symétries*

Les transitions « interdites » optiquement activées dans les cas de boîtes quantiques sur substrat (311)B posent le problème de la perte de symétrie dans ce système. Le problème de l'influence de la symétrie considérée sur les calculs et les propriétés optiques prédites dans les boîtes quantiques ont déjà été étudiées par Bester et al.[Bester05] Cependant, dans cette référence, les boîtes quantiques ne sont envisagées que sur substrat (100). Nous avons montré dans la partie précédente que la prise en compte dans la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  8 bandes de la symétrie

du cristal via l'effet piézo-électrique nous amène à considérer une symétrie de type  $C_{2v}$ , pour une boîte quantique sur substrat (100). Le substrat (311)B réduit la symétrie globale du système jusqu'à  $C_s=(E,\sigma)$ , même en l'absence d'effet piézo-électrique. La principale conséquence de cette perte de symétrie est la présence de fortes valeurs de déformations tétragonale et de cisaillement.[DeCaro93] La fonction d'onde est ainsi plus sensible à l'orientation du cristal sur substrat (311)B que sur substrat (100), et plus spécialement dans le cas des petites boîtes où les composantes de déformations tétragonale et de cisaillement ont une plus grande importance (la relaxation des contraintes est moins efficace). Cette perte de symétrie a donc des conséquences importantes sur la symétrie et l'anisotropie des fonctions d'onde. Pour le substrat (100), les états propres calculés par la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  8-bandes en symétrie  $C_{2v}$  conservent quasiment la symétrie  $C_{\infty v}$  ou  $C_{4v}$ . Une très faible levée de dégénérescence des états P est observée, avec de faibles conséquences sur le calcul des niveaux d'énergie. Dans ce cas, les états P sont respectivement allongés suivant les directions  $[0\ 1\ 1]$  et  $[0\ 1\ -1]$ . Dans la symétrie  $C_s$  considérée pour le substrat (311)B, les états propres n'ont pas cette symétrie. Ainsi, l'état fondamental n'est plus purement S, et les états excités ne sont plus des états purement P. Les états excités sont alors alignés suivant  $[0\ 1\ -1]$  et  $[-2\ 3\ 3]$ , avec une différence importante entre les deux directions. Ce large écart entre les deux directions peut être directement relié à l'écart important du système par rapport à la symétrie  $C_{4v}$ , contrairement au cas du substrat (100). Nous avons considéré ici uniquement des boîtes coniques tronquées. Cependant, la conclusion présentée ici peut être appliquée à toutes les formes de boîtes sur (311)B.

#### 1.3.4 Structure fine : excitons, biexcitons et trions

L'ultime degré de description fine de la structure électronique des boîtes quantiques réside dans la compréhension des effets Coulombiens à N-corps analysés dans la partie 1.1.3.c.[Rodt05] [Stier00] [Seguin05] Le modèle de calcul utilisé est le modèle d'interactions de configurations. Le développement des états à une particule sur une base de 6 fonctions d'onde, correspondant aux fonctions monoélectroniques symétrisées à la manière d'un déterminant de Slater, permet ainsi de décrire les premiers états liés à N-corps comme les excitons, biexcitons et trions, et leur énergie de liaison. L'énergie de liaison de l'exciton est, comme il a été précisé auparavant, d'environ 15 meV. La figure ci-dessous permet de rendre compte des énergies de liaison des biexcitons, et trions par rapport à l'exciton en fonction de la hauteur des boîtes considérée, pour les deux substrats étudiés. Pour des faibles hauteurs de boîte, il n'y a pas de différences fondamentales entre les deux substrats. Les énergies de

liaison trouvées sont alors d'environ  $E_{l_{X^+}} = 0.5$  meV,  $E_{l_{XX}} = 1.4$  meV et  $E_{l_{X^-}} = 1.7$  meV, quelque soit le substrat utilisé. Les effets à N-corps sont ainsi tous dans ce cas des effets « liants », ou encore « stabilisants ». Pour les grandes hauteurs de boîtes, en revanche, certains de ces états deviennent antiliants, et le comportement observé est différent pour les deux substrats. Au regard du paragraphe 1.1.3.c présenté précédemment, les résultats sont analysés en termes d'effets de corrélation. En effet, il ne semble pas naturel au premier abord d'obtenir une énergie de liaison du biexciton négative. Pour comprendre cette observation, il est nécessaire d'entrer un peu dans les détails du calcul utilisé pour déterminer ces énergies de liaison.

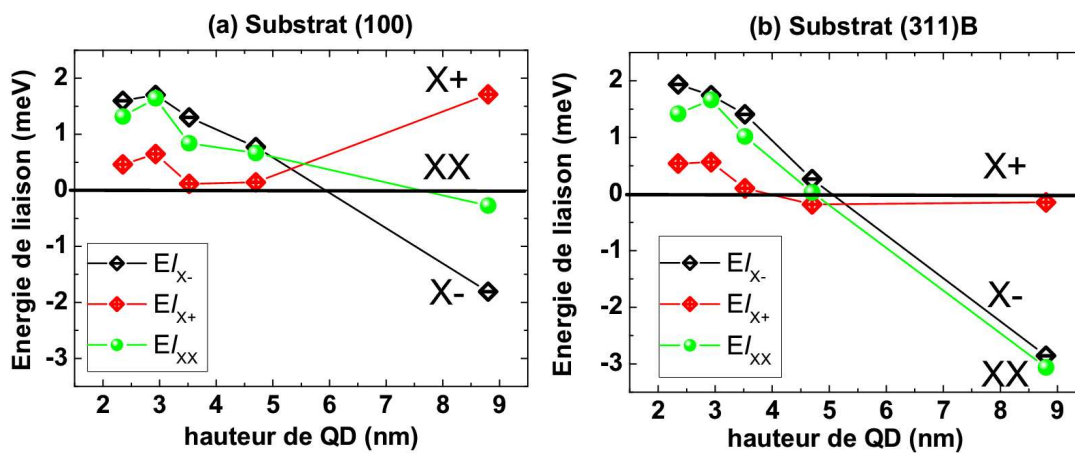


Figure 1-27 : Evolution de l'énergie de liaison du biexciton et des trions pour différentes hauteurs de boîtes, sur les substrat (100) (a) et (311)B (b).

En effet, deux effets rentrent en compte ici : (1) les interactions coulombiennes directes décrites dans la partie 1.1.3.c. et 1.2.2.b. Un bref rappel est proposé ici pour le biexciton. Dans un biexciton, il existe à l'ordre 1 deux contributions liantes  $J(e,h)$  négatives, et deux antiliantes  $J(e,e)$  et  $J(h,h)$  positives. L'énergie de liaison peut donc s'écrire  $E_{l_{XX}} = -(2J(e,h)+J(e,e)+J(h,h))$ . Dans l'approche simple en potentiel de confinement infini (partie 1.2.2), ce terme est exactement nul.

Par la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  8-bandes, on trouve au contraire que  $|J_{eh}| < \frac{J_{ee} + J_{hh}}{2}$  : le biexciton est donc toujours antiliant si ces interactions coulombiennes sont les seules prises en compte.

(2) Les effets de corrélations permettant de rendre liant le biexciton. Ils interviennent à l'ordre 2 dans le calcul en coordonnées paraboliques (partie 1.2.2). Ces effets de corrélations ne sont pas faciles à décrire qualitativement. La corrélation est une contribution qui permet aux états à plusieurs particules de se réarranger, afin d'atteindre une configuration

énergétiquement plus favorable. Mathématiquement, la base de fonctions utilisées pour écrire le Hamiltonien à plusieurs particules est augmentée, et prend donc en compte la contribution des configurations des états excités (qui sont simplement des déterminants de Slater créés à partir des états à une particule). Cette contribution des corrélations permet toujours de diminuer l'énergie totale du système. Elle dépend principalement de trois facteurs : (a) du nombre d'états excités pris en compte dans le calcul (i.e. la taille de la base choisie pour le Hamiltonien),[Hu90] (b) l'écart entre les niveaux d'énergie et (c) l'écart en énergie entre le minimum d'énergie du système (équilibre) et l'énergie de la configuration à plusieurs particules considérée. Si l'électron et le trou sont spatialement séparés par le champ piézo-électrique, la force de Coulomb peut les rapprocher, minimisant ainsi l'énergie totale du système. Si l'électron et le trou sont déjà spatialement au même endroit, il n'y a plus de place pour une renormalisation en énergie.

Ainsi, dans notre cas de figure, les effets de corrélations permettent d'expliquer les énergies liantes du biexciton observées. Mais la différence entre les deux substrats pour ces tailles de boîtes doit être reliée à la présence du champ piézo-électrique. En effet, comme il a été vu précédemment, le champ piézo-électrique est le plus important pour les boîtes les plus hautes sur substrat (311)B. Ceci a pour effet d'écarter les uns des autres les électrons et les trous, permettant ainsi de réduire le terme d'interaction  $J(e,h)$  et d'augmenter légèrement  $J(e,e)$  et  $J(h,h)$ . Cela a pour conséquence de rendre le biexciton et les trions plus antiliants sous l'effet d'un champ piézo-électrique plus fort, et donc notamment dans le cas des boîtes les plus hautes sur substrat (311)B. Par ailleurs, les effets de corrélation tendent généralement à diminuer quand la taille de la nanostructure augmente.[Hu90]

*L'influence de l'orientation du substrat a ainsi été étudiée dans cette partie. A partir de caractérisations structurales de type AFM et X-STM, il a été montré que les calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes réalisés sur des boîtes quantiques de forme coniques tronquées présentent un bon accord avec des mesures de photoluminescence réalisées précédemment sur des boîtes épitaxiées sur substrat (311)B, en fonction de la hauteur de boîte. Il a ensuite été démontré que des boîtes épitaxiées sur substrat (311)B ou (100) ont des signatures optiques différentes principalement pour deux raisons. La première est la plus grande contrainte hydrostatique observée dans les boîtes sur substrat (311)B qui entraîne un décalage en énergie des niveaux électroniques dans la boîte quantique, et donc un décalage vers les hautes énergies de l'énergie excitonique de transition. La seconde raison est la plus faible symétrie du système*

*(311)B, et la présence d'un champ piézoélectrique plus important qui permettent d'activer des transitions du second ordre pour les boîtes sur substrat (311)B.*

*Plus généralement, ce chapitre de thèse a permis de mettre en œuvre des outils de calcul permettant de mieux comprendre la structure électronique des boîtes quantiques. Une description approximative et rapide a d'abord été mise en œuvre pour les boîtes InAs/InP et InAsSb/InP. Dans un deuxième temps, une description précise a été mise en place pour les boîtes InAs/InP pour étudier l'effet de l'orientation du substrat ((311)B ou (100)) et les effets multiexcitoniques. Dans la suite du mémoire, des caractérisations expérimentales sont présentées. Elles concernent toutes les boîtes InAs sur substrat InP émettant à 1.55  $\mu\text{m}$ .*

*Le prochain chapitre rend ainsi compte de la mesure et de la compréhension des propriétés électroniques et optiques fondamentales des boîtes quantiques InAs sur substrat InP.*

---

# CHAPITRE 2

---

## 2. Propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques : Mesures

Nous présentons dans cette partie les résultats expérimentaux concernant la mesure des propriétés électroniques et optiques fondamentales des boîtes quantiques InAs sur substrat InP. Les techniques expérimentales utilisées dans ce chapitre sont tout d'abord présentées, i.e. les expériences de spectroscopie d'absorption infra-rouge par transformée de Fourier (FTIR), de photoluminescence, et de magnéto-photoluminescence (en coopération avec la Katholieke Universiteit Leuven). Nous montrons ensuite que le coefficient d'absorption des boîtes quantiques peut-être déterminé à partir des mesures FTIR à différentes températures, et étudions l'influence de ce paramètre sur les composants à boîtes quantiques. La magnéto-photoluminescence permet de déterminer la masse effective, le rayon de Bohr, et l'énergie de liaison de l'exciton dans nos boîtes quantiques. Ces mesures couplées à des mesures de photoluminescence en puissance sont utilisées afin de déterminer l'influence des couches de recouvrement des boîtes sur le confinement latéral des porteurs dans ces boîtes. L'interdiffusion atomique dans les boîtes quantiques InAs/InP (« intermixing ») est ainsi mise en évidence, et confirmée par des mesures de microscopie par effet tunnel par la tranche (X-STM) réalisées à la TU Eindhoven.

## 2.1 Techniques expérimentales

Cette partie a pour but de décrire les techniques expérimentales utilisées dans cette thèse, afin de mesurer les propriétés électroniques et optiques fondamentales des boîtes quantiques InAs sur substrat InP. Les expériences de spectroscopie d'absorption infra-rouge FTIR, de luminescence, et de magnéto-photoluminescence sont présentées.

### 2.1.1 Emission/Absorption dans les semiconducteurs : généralités

#### 2.1.1.a Généralités sur la luminescence des boîtes quantiques

La luminescence d'un objet, est la lumière que celui-ci émet après avoir reçu lui-même de l'énergie sous forme de lumière (photons), ou de matière (porteurs de charges, par exemple). Dans le cas où la luminescence est « activée » par de la lumière, on parle de photoluminescence, si elle est activée par des électrons, on parle d'électroluminescence. Ainsi, la figure 2-1 présente le schéma de principe de la photoluminescence sur les boîtes quantiques.

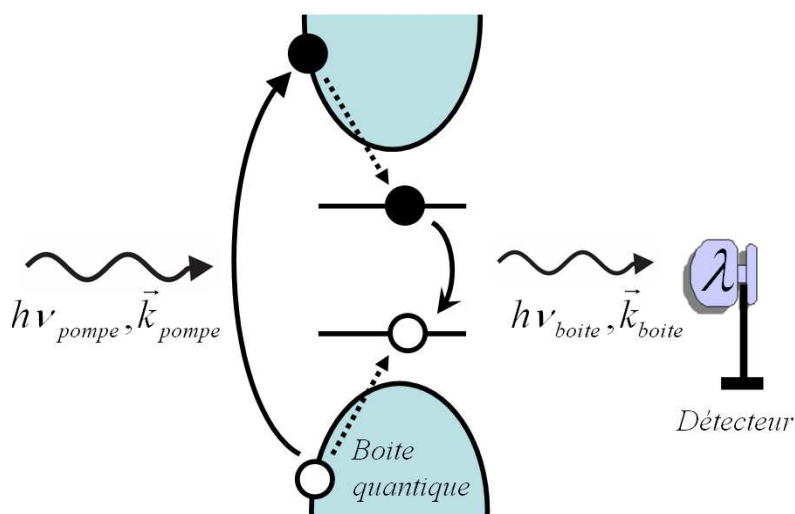


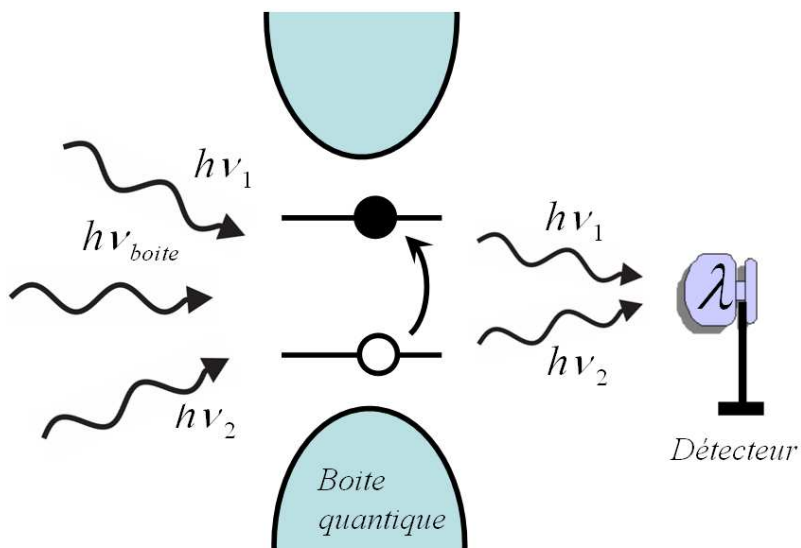
Figure 2-1 : Schéma de principe de la photoluminescence sur des boîtes quantiques.

Grâce à cette technique, nous obtenons des renseignements sur les niveaux d'énergie les plus bas des boîtes.

#### 2.1.1.b Généralités sur l'absorption des boîtes quantiques

Si l'on envoie de la lumière polychromatique sur un objet, seules les longueurs d'onde reliées aux énergies de transitions possibles dans l'objet sont absorbées. Le spectre

d'absorption en fonction de l'énergie est une signature de la structure électronique de l'objet étudié, et dans ce cas précis de la boîte quantique. La figure 2-2 représente le schéma de principe de l'absorption sur les boîtes quantiques.



*Figure 2-2 : Schéma de principe de l'absorption sur des boîtes quantiques. Une lumière polychromatique traverse les boîtes quantiques. Seul le photon à l'énergie de transition  $h\nu_{boite}$  correspondant à une transition de boîte quantique est absorbé.*

## 2.1.2 Mesure d'absorption par spectroscopie FTIR

### 2.1.2.a L'appareil de mesure FTIR

Le « FTIR » (Fourier-Transform Infrared Spectrometer) est un spectromètre à transformée de Fourier dans le domaine de l'Infrarouge. Le modèle utilisé est un FTIR Bruker, modèle IFS 113. Le principe en est simple : une source de lumière blanche éclaire un interféromètre de Michelson fonctionnant en lame d'air. Celui-ci crée un système d'interférences qui est renvoyé sur l'échantillon. L'échantillon ne laisse passer qu'une partie de l'intensité du signal, l'autre étant absorbée. Le signal transmis est détecté par un détecteur Germanium actif entre 1 et 2  $\mu\text{m}$  (ou InSb si l'on désire un spectre étendu aux plus basses énergies, entre 1 et 3  $\mu\text{m}$ ). Une transformée de Fourier du signal est ensuite réalisée par ordinateur, et l'on a ainsi accès directement au coefficient de transmission (T), à l'absorbance ( $\alpha L$ ), ou à la densité optique (D. O.) de l'échantillon par la relation de la figure 2-3.



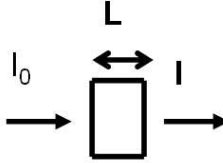
$$T = \frac{I}{I_0} = 10^{-D \cdot O} = e^{-\alpha L}$$


Figure 2-3 : Définition de la densité optique et du coefficient d'absorption

où  $I_0$  est l'intensité incidente sur l'échantillon,  $I$  l'intensité émergente de l'échantillon,  $\alpha$  le coefficient d'absorption en  $\text{m}^{-1}$ ,  $L$  la largeur de la couche traversée en mètres.

### 2.1.2.b Problèmes expérimentaux

Il n'est pas simple de réaliser des mesures d'absorption avec des densités optiques de l'ordre de  $10^{-2}$  comme c'est le cas pour les boîtes quantiques. Les limitations expérimentales peuvent se décomposer en trois paramètres : (a) le procédé de mesure, (b) les limitations optiques, et (c) le problème de reproductibilité. En effet, (a) le procédé de mesure doit tenir compte de l'absorption conséquente du substrat de l'échantillon considéré. L'absorption de ce substrat, beaucoup plus épais que la zone active, masque considérablement l'absorption des boîtes quantiques. Mais ce substrat ne peut être enlevé, puisqu'il est nécessaire pour faire croître la couche active en épitaxie. Pour s'en affranchir, il suffit de réaliser deux mesures : l'une avec l'échantillon à mesurer, et l'autre avec seulement la plaque de substrat. Les densités optiques étant additives, on peut, par soustraction, accéder à la densité optique de la couche active. Un écart en épaisseur pour le substrat entre les deux échantillons peut être aussi compensé par une soustraction en densité optique. Pour un domaine spectral où la zone active n'absorbe pas, l'absorption après soustraction doit être en effet nulle. La constante soustraite est ainsi mesurée dans ce domaine. Ce processus de mesure implique alors d'avoir à disposition une référence (le substrat) pour toute mesure concernant un échantillon. En pratique, à température ambiante, les échantillons et les références sont placés sur une roue dont l'axe de rotation est parallèle à l'axe optique, pilotée par un moteur pas à pas.

Des limitations optiques (b) existent également pour la mesure. En effet, la première source d'incertitude, est directement due à l'instabilité de la source lumineuse utilisée. De plus, le faisceau de lumière blanche qui traverse l'échantillon, n'est pas toujours bien focalisé. Toutefois, ces incertitudes ne suffisent pas à expliquer les écarts observés pour des mesures répétées dans des conditions expérimentales similaires. Il est donc nécessaire d'étudier les causes de la non reproductibilité (c) des résultats.

Ces fluctuations d'une mesure à l'autre sont mises sur le compte de l'alignement de l'échantillon sur le faisceau optique. En effet, la roue utilisée comme porte-échantillon, a une certaine inertie, elle « joue » légèrement dans son support. Ceci a pour conséquence que la roue ne revient pas exactement au même endroit d'une mesure à l'autre.

Concernant les mesures à basse température, l'échantillon et sa référence sont placés dans un cryostat. Le doigt froid de ce cryostat (figure 2-4) est tourné à la main pour aligner l'échantillon sur le faisceau optique. Ceci entraîne donc un problème de reproductibilité des conditions de mesures (angle d'incidence notamment).

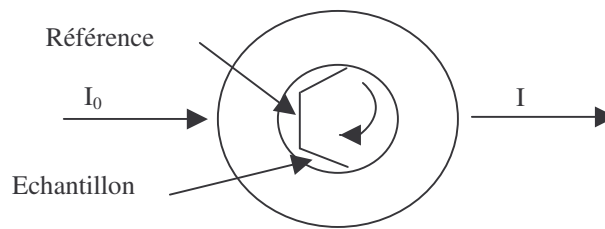


Figure 2-4 : Cryostat utilisé au FTIR vu du dessus

En effectuant des séries de mesures dans les mêmes conditions expérimentales, des fluctuations non négligeables apparaissent d'une mesure à l'autre. Un écart d'une amplitude de  $2 \times 10^{-3}$  en densité optique est observé entre le minimum de bruit de la mesure donnant la plus faible densité optique et le maximum de bruit de la mesure donnant la plus forte densité optique.

Ainsi, la mise en œuvre de cette mesure d'absorption pour les boîtes quantiques reste délicate, et en limite de détectivité de l'appareil de mesure.

### 2.1.3 Expériences de photoluminescence réalisées au LENS

#### 2.1.3.a *Luminescence basse puissance, et transition fondamentale de boîte quantique.*

Le laser de pompe utilisé est un laser Krypton continu émettant à 647 nm, avec une puissance moyenne maximale de 300 mW, non focalisé, résultant en une puissance surfacique inférieure à  $1 \text{ kW.cm}^{-2}$ . Le laser pompe l'échantillon, avec un angle d'incidence d'environ 45 degrés. De nombreux détecteurs sont disponibles sur cette expérience, dépendant de la gamme spectrale et de la sensibilité désirée, les plus utilisés étant les détecteurs InSb, InGaAs, ou PbS. Deux cryostats à transfert d'Hélium ou d'Azote sont également disponibles. Cette expérience de photoluminescence ne permet pas de remplir suffisamment les états de boîtes quantique, pour pouvoir atteindre les états de plus haute énergie confinés dans les boîtes

quantiques. Sa puissance de pompe est en effet trop faible. Il est toutefois possible à basse température, de bloquer la redistribution des porteurs de la couche de mouillage vers les boîtes quantiques, et ainsi d’observer l’émission de la transition fondamentale associée à la couche de mouillage.

2.1.3.b Luminescence polarisée forte puissance, et transitions excitées de boîte quantique.

Une expérience de pompage optique (figure 2-5) conçue initialement au LENS pour l’étude des VCSELs (Vertical Cavity Surface Emitting Lasers) dans le cadre du travail de thèse de C. Levallois, a été adaptée afin de recueillir la luminescence sous forte excitation de nos boîtes quantiques, ainsi que la dépendance en polarisation de cette émission. Un laser Nd:YAG continu est utilisé comme laser de pompe, avec une puissance moyenne maximale de 250 mW, et une polarisation rectiligne perpendiculaire au plan de propagation du faisceau optique. Le faisceau de pompe est focalisé sur l’échantillon avec un objectif de microscope à courte focale (~1mm). Ainsi, une puissance surfacique de  $170 \text{ kW.cm}^{-2}$  peut-être atteinte avec une telle distance focale, grâce à la faible extension spatiale de la tâche du laser de pompe sur l’échantillon : environ  $10 \mu\text{m}$  de diamètre.

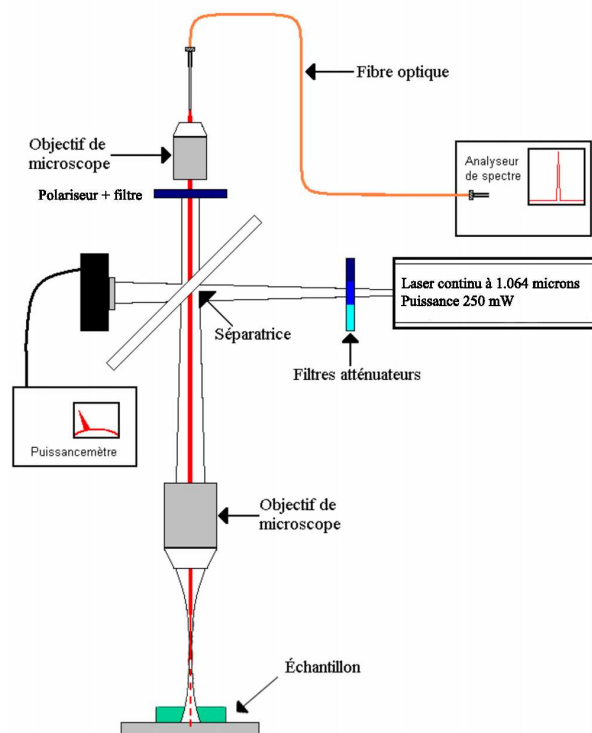


Figure 2-5 : Schéma de principe de la photoluminescence en puissance et polarisation

Le signal de luminescence est collecté par le même objectif de microscope. Une fibre optique renvoie le signal sur un analyseur de spectre doté d'une barette CCD InGaAs. Entre l'objectif de microscope et la fibre, il est possible d'intercaler un polariseur, dont les directions de polarisations sont parallèles au plan cristallographique perpendiculaire à l'axe de croissance. Ainsi, d'éventuelles sensibilités à la polarisation des transitions optiques dans les boîtes quantiques peuvent être décelées.

### 2.1.4 Expériences de magnéto-photoluminescence réalisées à la KU Leuven

#### 2.1.4.a Influence d'un champ magnétique sur un électron dans une boîte quantique

Afin de mieux expliciter l'expérience de magnéto-photoluminescence et son utilité, nous allons décrire brièvement dans un premier temps les connaissances théoriques requises permettant de comprendre l'influence d'un champ magnétique sur des boîtes quantiques.

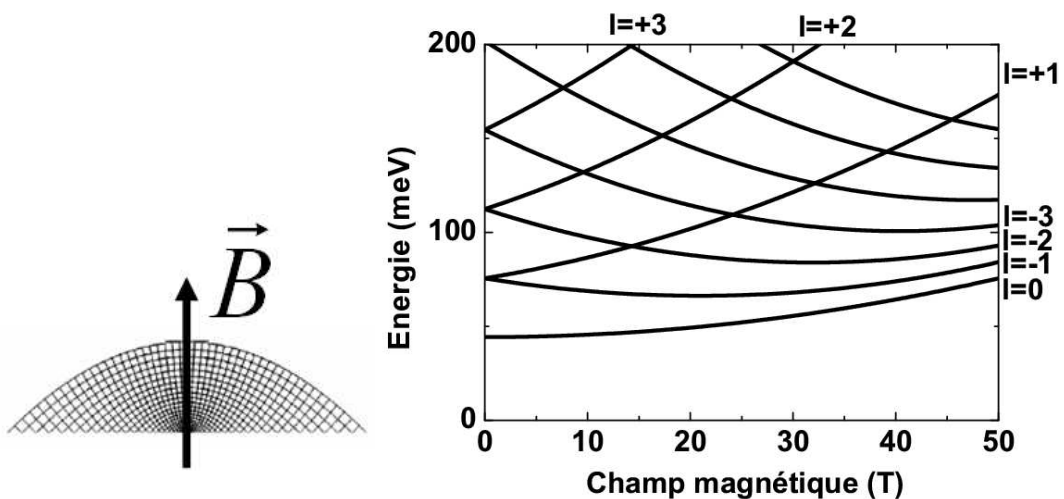


Figure 2-6 : Evolution des niveaux d'énergie électroniques en fonction du champ magnétique pour une boîte quantique de rayon à la base 17.5 nm.

En considérant le modèle en coordonnées paraboliques présenté dans le chapitre 1, il est possible d'introduire en première approche des termes diamagnétique et paramagnétique dans le Hamiltonien considéré par une méthode des perturbations : [Even05]

$$\Delta H_{mag} = \frac{e^2 B^2 \rho^2}{8m} + \frac{\mu_B B l}{2}$$

Avec  $m$  la masse effective de l'électron,  $\rho$  la coordonnée radiale associée à la boîte quantique considérée,  $\mu_B$  le magnéton de Bohr,  $B$  le champ magnétique appliqué verticalement par rapport au plan des boîtes quantiques, et  $l$  le nombre quantique principal associé au niveau

d'énergie sur lequel est appliqué la perturbation. Une évolution diamagnétique est attendue pour le niveau fondamental ( $l = 0$ , i.e. les états de type S), alors qu'une superposition d'effets diamagnétiques et paramagnétiques est attendue sur les niveaux excités ( $l \neq 0$ ). (figure 2-6)

### 2.1.4.b Influence d'un champ magnétique sur un exciton dans une boîte quantique : modèle excitonique

L'évolution des niveaux d'énergie excitoniques en fonction du champ magnétique dépend de plusieurs paramètres, dont la masse effective de l'exciton, l'extension spatiale de la fonction d'onde (rayon de Bohr de l'exciton) et de l'énergie de liaison de l'exciton. En mesurant l'évolution de l'énergie de l'exciton fondamental par magnéto-photoluminescence, il est ainsi possible avec un traitement approprié, de remonter à ces grandeurs.

Les mesures obtenues sont composées d'une suite de 110 spectres par échantillon, répartis régulièrement de 0 à 50 T. La figure 2-7 (a) met en évidence l'évolution des spectres de luminescence sous l'influence du champ magnétique et la figure 2-7 (b) illustre l'évolution de la position du pic de photoluminescence des courbes mesurées en (a).

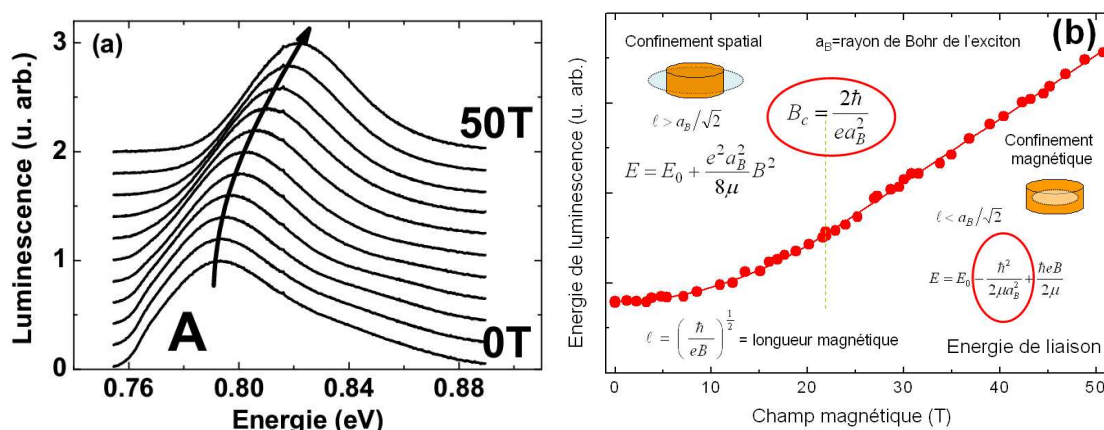


Figure 2-7 : Evolution du pic de luminescence associé à la transition fondamentale avec le champ magnétique (a) pour des boîtes quantiques InAs/InP. L'application du modèle excitonique permet de déterminer les masses effectives, rayons de Bohr et énergies de liaison de l'exciton (b) pour différents systèmes.

Ces courbes expérimentales peuvent être exploitées de plusieurs manières, dont nous ne présenterons que deux variantes. Ces deux modèles sont basés sur une simple constatation : il existe deux régimes différents de confinement pour une boîte quantique soumise à un champ magnétique. Dans le cas d'un faible champ magnétique, l'intensité du champ ne suffit pas pour confiner l'exciton plus que ne le fait déjà la boîte quantique, comme il est illustré sur l'encart de la figure 2-7 (b). Le champ est ainsi traité comme une perturbation, comme il a été

présenté dans la partie précédente. Le décalage en énergie de la transition fondamentale est alors un décalage diamagnétique similaire à celui précédemment calculé dans la partie 2.1.4.a :  $\Delta E = e^2 \langle \rho^2 \rangle B^2 / 8\mu_r$ , où  $\langle \rho^2 \rangle$  représente le rayon de Bohr de l'exciton dans le plan (x,y) des boîtes quantiques, et  $\mu_r$  la masse effective réduite de l'exciton fondamental (approximation uniquement valide dans le cadre d'une symétrie cylindrique, et pour un champ magnétique appliqué dans le plan perpendiculaire au plan des boîtes). Dans la limite des forts champs, la fonction d'onde de l'exciton n'est alors plus confinée que par l'effet du champ magnétique, comme illustré sur l'encart de la figure 2-7 (b). Le confinement « structural » de la boîte n'a plus alors aucun effet sur la fonction d'onde de l'exciton, et l'évolution de la transition fondamentale en fonction du champ magnétique est parallèle au plus bas niveau de Landau de l'exciton, et devient donc :  $\Delta E = \hbar e B / 2\mu_r$ .

Dans le régime intermédiaire, aucune expression triviale ne peut être donnée de ce décalage en énergie. Janssens et al. [Janssens01] [Janssens01b] ont proposé d'utiliser une expression déterminée à partir de calculs sur des boîtes cylindriques dans un potentiel de confinement fini. Cette référence montre ainsi un bon accord entre théorie et expérience, si l'on considère que la translation en énergie du pic de luminescence prend la forme :

$\Delta E = \frac{\beta B^2}{1 + \alpha B}$  où  $\alpha$  et  $\beta$  sont deux paramètres ajustables, pouvant être reliés au rayon de Bohr et à la masse effective de l'exciton. Ainsi, la figure 2-7 (b) peut être traitée à l'aide de cette expression, moyennant l'ajustement de deux paramètres libres.

Mais ces courbes expérimentales peuvent également être traitées en utilisant un modèle plus simple. Ce modèle est basé sur la combinaison des deux régimes présentés précédemment. La particularité de ce modèle est d'imposer une transition stricte entre les deux régimes de confinement présentés ci-dessus. Ce choix peut paraître étrange au premier abord, mais sera confirmé par la suite avec les mesures. En considérant que la boîte est bien définie spatialement, le modèle est ainsi justifié. De plus, il est clair sur les mesures en champ magnétique (cf. figure 2-7 (b)), qu'il existe deux régimes bien distincts. Ainsi, en imposant l'existence des deux régimes dans deux domaines distincts de champ magnétique séparés par une valeur du champ  $B_C$  donnée, et en imposant une continuité entre ces deux domaines, il vient :

$$E = E_0 + \frac{e^2 \langle \rho^2 \rangle}{8\mu} B^2 \quad \text{pour } B < B_c = \frac{2\hbar}{e \langle \rho^2 \rangle}$$

$$E = E_0 - \frac{\hbar^2}{2\mu \langle \rho^2 \rangle} + \frac{\hbar e}{2\mu} B \quad \text{pour } B > B_c = \frac{2\hbar}{e \langle \rho^2 \rangle}$$

Ainsi avec cette unique fonction, un ajustement des données sur toute la gamme de champ magnétique peut être réalisé. Ce modèle a déjà fait ses preuves à de nombreuses reprises. [Hayne00] [Hayne04] [Maes04b] Dans cette analyse, le champ critique entre les deux domaines dépend uniquement du rayon de Bohr de l'exciton. L'ajustement de la courbe permet ainsi de déterminer le rayon de Bohr et la masse effective de l'électron de manière indépendante. Ce modèle a été utilisé dans le cadre de ce travail, du fait de sa simplicité d'utilisation, et de son bon accord avec l'expérience. Le détail de la discussion sur le choix de la méthode est entièrement présenté dans la thèse de doctorat de J. Maes.[Maes04]

#### 2.1.4.c Magnéto-photoluminescence : montage expérimental

Le montage expérimental permettant des mesures de luminescence sous fort champ magnétique est présenté en figure 2-8.

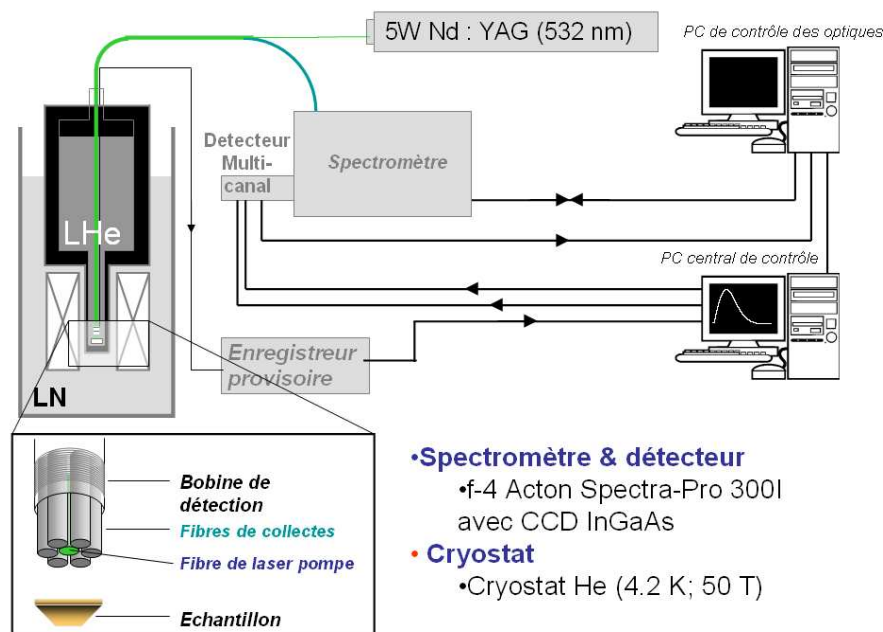


Figure 2-8 : Schéma de l'expérience de magnéto-photoluminescence utilisée dans le cadre de cette thèse, expérience réalisée à la KU Leuven (Belgique).

Un laser de pompe de type Nd:YAG (2 $\omega$ ) continu émettant à 532 nm est utilisé à une puissance d'environ 100 mW. L'échantillon est pompé à l'aide d'une fibre optique dans laquelle on a injecté le laser Nd:YAG. Le signal de luminescence est directement collecté par

l'ensemble des fibres présentes autour de la fibre d'injection et envoyé sur un détecteur linéaire à photodiodes InGaAs refroidi. Une impulsion de champ magnétique entre 0 et 50 T est générée par un ensemble de condensateurs se déchargeant tous en même temps dans une bobine.

Le détecteur InGaAs (temps d'acquisition de 500  $\mu\text{s}$  en utilisation standard) permet de réaliser jusqu'à 17 spectres pour différentes valeurs du champ magnétique, pendant l'impulsion de champ magnétique ( $\sim 20$  ms). En répétant l'opération sur plusieurs impulsions, mais avec une valeur crête de champ différente, il devient ainsi possible d'obtenir plus d'une centaine de spectres de photoluminescence sous champ magnétique variant de 0 à 50 T. L'évolution temporelle du champ magnétique est donnée en figure 2-9. Ainsi, un traitement de ces mesures peut enfin être réalisé afin d'en extraire les différents grandeurs présentées précédemment : masses effectives, rayons de Bohr et énergies de liaison de l'exciton.

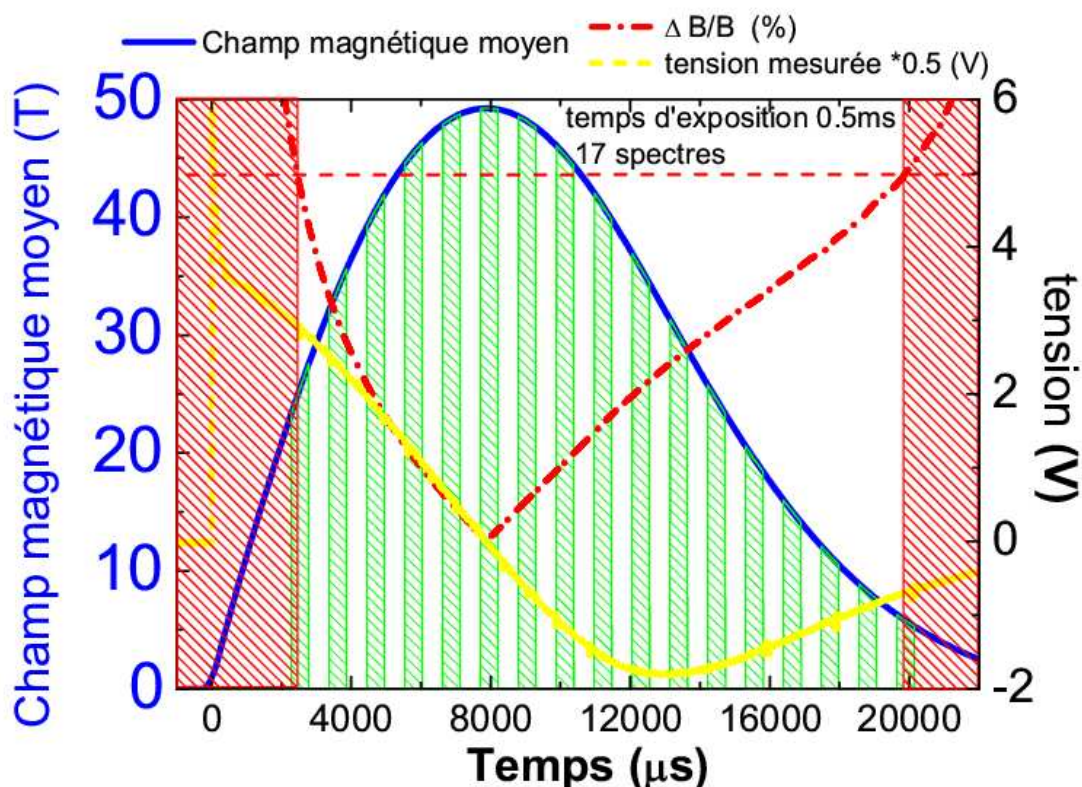


Figure 2-9 : Evolution temporelle du champ magnétique, et fenêtres d'acquisition de spectres optiques correspondant à une durée de 0.5 ms, temps caractéristique de la diode InGaAs de détection.



*Dans cette partie, les principales techniques expérimentales utilisées dans cette thèse pour la mesure des propriétés optiques fondamentales ont été présentées. Ainsi, les expériences d'absorption, de photoluminescence et de magnéto-photoluminescence ont été détaillées. La prochaine partie présente la mesure du coefficient d'absorption réalisée par spectroscopie FTIR.*

## **2.2 Mesure du coefficient d'absorption des boîtes quantiques par spectroscopie FTIR**

*Cette partie décrit les travaux réalisés à l'aide de la spectroscopie par transformée de Fourier FTIR, dont les principaux résultats ont été publiés dans l'article [CornetAPL04].*

### 2.2.1 Contexte de l'étude et travaux préliminaires

#### *2.2.1.a Motivations*

Au vu de la place attendue pour les boîtes quantiques dans les applications optoélectroniques pour les télécoms (lasers, amplificateurs optiques, absorbants saturables, etc.), ainsi que dans des domaines variés, comme les mémoires optiques, [Bimberg03] [Sugawara99] [Bimberg98] la connaissance profonde de tous les paramètres fondamentaux concernant ces boîtes est essentielle pour la bonne compréhension et l'optimisation des composants optoélectroniques. En particulier, l'une des caractéristiques optiques parmi les plus fondamentales est le coefficient d'absorption. Sa valeur est requise avec une grande précision pour la simulation des propriétés électroniques et optiques des composants.

De nombreux calculs ont été réalisés sur ces boîtes quantiques, afin d'estimer le coefficient d'absorption, [Cusack97] [Stier99] qui semble par contre difficile à mesurer expérimentalement de manière directe, comparativement à celui des puits quantiques. De nombreuses techniques de spectroscopie indirectes ont été utilisées afin d'essayer de déterminer le coefficient d'absorption des boîtes, comme la technique de photocourant, [Fry00] de capacitance, [Pettersen99] d'effet Stark, [Alèn03] d'excitation de photoluminescence, [Heitz00] ou encore de spectroscopie d'absorption calorimétrique. [Grundmann95b] Tous les spectres d'absorption présentés dans ces références sont présentés en unités arbitraires. Ils ne permettent donc qu'une simple comparaison des intensités relatives entre les différentes transitions, et non une estimation de la force d'oscillateur des différentes transitions optiques. La spectroscopie infrarouge par transformée

de Fourier (FTIR) a déjà été utilisée précédemment sur les boîtes quantiques, pour mesurer la différence de transmission d'un échantillon sous l'effet d'un champ électrique.[Warburton97] Nous présentons dans ce mémoire la première étude à notre connaissance quantitative et directe du coefficient d'absorption réalisée sur des boîtes quantiques InAs/InP, qui ont déjà montré une émission laser à 1.55  $\mu\text{m}$ . [Paranthoen02]

### *2.2.1.b Travaux préliminaires et choix de l'échantillon.*

Des mesures préliminaires réalisées au LENS avaient montré qu'il n'est pas possible de mesurer l'absorption sur un seul plan de boîtes quantiques, le spectromètre FTIR n'étant pas assez sensible. Le rapport signal sur bruit n'est, dans ces conditions, pas suffisant pour distinguer l'absorption du plan de boîtes. Il faut donc superposer les plans absorbants séparés par des couches d'InP appelées espaceurs, ou « spacer ». Un spacer trop important oblige à allonger considérablement les temps de dépôt en MBE. Si le spacer est trop mince, en revanche, un couplage électronique entre les différents plans de boîtes apparaît dont il faut tenir compte dans l'étude du système.[Miska05] De plus, dans une mesure d'absorption, l'échantillon tout entier doit être traversé, et ceci entraîne nécessairement un effet de cavité et des réflexions multiples de type Fabry-Pérot visibles sur les spectres d'absorption. Toutes ces remarques nous ont amené à définir soigneusement les paramètres de croissance de nos échantillons.

Un premier échantillon avec  $2 \times 6$  plans de boîtes quantiques, un spacer de 200 Å et un double cap de 30 Å a été étudié. Les effets de cavité du type Fabry-Pérot se sont avérés très gênants pour l'observation de l'absorption (figure 2-10 (a)). La période d'oscillation due aux effets de cavité était trop grande, et du même ordre de grandeur que la largeur du pic d'absorption des boîtes. Dans ces conditions, il était très difficile de séparer les deux contributions. Cette période étant identifiée comme la conséquence des réflexions multiples sur les parois de la couche épitaxiée, il a donc été décidé de choisir un spacer de 1200 Å pour s'affranchir des oscillations dues aux effets de cavités (figure 2-10 (b)).

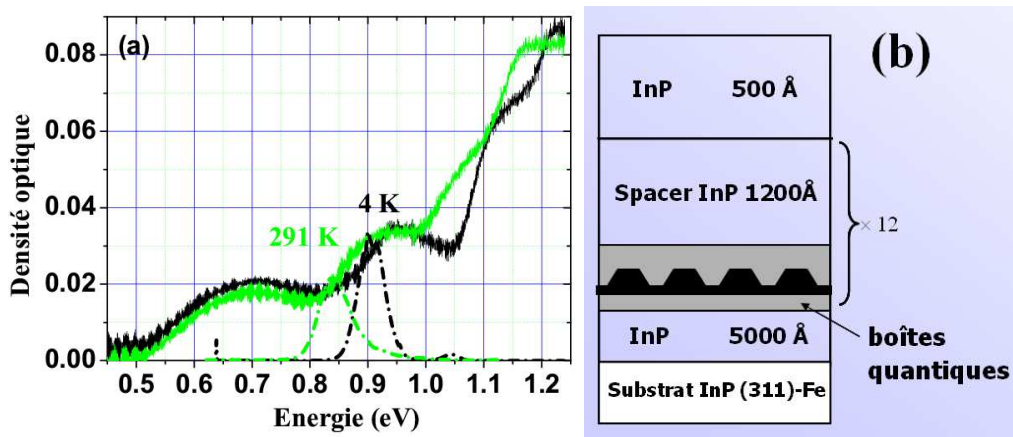


Figure 2-10 : (a) Les mesures d'absorption préliminaires sur un échantillon avec un spacer de 20 nm montrent qu'une mesure d'absorption n'est possible que si l'on s'affranchit des effets de cavité. (b) Une structure définitive avec un spacer de 120 nm est dessinée.

La période des oscillations observées sur les effets de cavité peut dans une première approximation être reliée à la taille de la cavité considérée (couche épitaxiée). Ainsi, plus le spacer est grand, plus la période des effets de cavité devient petite, permettant ainsi de distinguer le pic d'absorption des boîtes quantiques.

Les boîtes quantiques considérées sont des boîtes InAs/InP sur substrat (311)B, avec une densité surfacique de  $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . La technique de double cap a été utilisée pour contrôler la hauteur des boîtes quantiques, et donc leur énergie d'émission.[Paranthoen01] Le choix de 12 plans de boîtes quantiques est motivé par la nécessité d'atteindre une absorbance suffisamment forte pour être détectée par notre appareil de mesure. Cette structure possède des boîtes quantiques dont la transition fondamentale correspond à  $1.55 \mu\text{m}$  (0.8 eV) à température ambiante.[MiskaSST02]

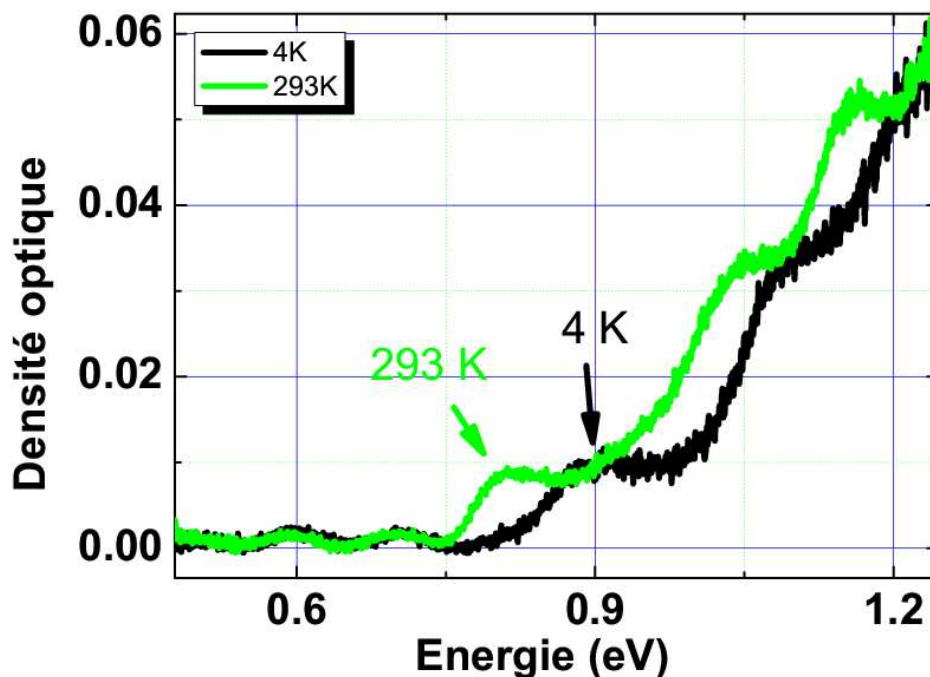
## 2.2.2 Mesures brutes et simulation des effets de cavité

### 2.2.2.a Mesures brutes de 4 K à 293 K

Des mesures à différentes températures sont réalisées, afin de différencier les effets de cavité (indépendants de la température) de l'absorption des boîtes quantiques (variant avec la température). Le faisceau d'analyse du FTIR a une puissance égale à  $16 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Le nombre maximum de paires électrons trous photo-générés, déterminé à l'aide des mesures préliminaires, est égale à  $1.25 \cdot 10^8$  par  $\text{cm}^2$ , ce qui est largement en dessous de la densité surfacique de boîtes quantiques, nous assurant de rester ainsi dans le régime linéaire d'absorption. Un substrat de référence d'InP (311)B est utilisé pour mesurer l'absorption

résiduelle ( $280 \text{ cm}^{-1}$ ), principalement liée à l'absorption des porteurs libres. La référence et l'échantillon de mesure ont été polis en même temps, ce qui assure une qualité de polissage identique et donc des coefficients de diffusion et réflexion aux interfaces similaires. Les mesures brutes obtenues sont présentées sur la figure 2-11. Sur ce schéma, les courbes d'absorbance sont présentées en densité optique pour l'échantillon complet à deux températures.

Des effets de cavité de type Fabry-Pérot (FPCE), provenant de la différence d'indice entre les différentes couches épitaxiées, sont visibles entre 0.6 et 0.8 eV. Comme le changement d'indice est faible comparé au décalage du gap dans les boîtes quantiques en fonction de la température, il est aisé d'identifier et de séparer les contributions des boîtes quantiques et des FPCE, qui ont les mêmes ordres de grandeur.



*Figure 2-11 : Mesures d'absorbance brutes sur l'échantillon complet. Des effets de cavité sont malgré tout visibles à basse énergie.*

Les pics d'absorbance des boîtes quantiques sont visibles à environ 0.8 et 0.9 eV respectivement à 293 K et 4 K. Ce décalage en énergie de ces pics avec la température est similaire à celui trouvé pour le matériau massif InAs avec la loi de Varshni, compris entre 50 et 100 meV. [Vurgaftman01] Nous avons simulé les effets de cavité, afin de pouvoir déterminer une valeur précise du coefficient d'absorption des boîtes quantiques, indépendamment de l'environnement.

2.2.2.b Simulation des effets de cavité

Afin de simuler les effets de cavité dans la structure pour s'en affranchir, et de déterminer ainsi l'absorption des boîtes quantiques, nous avons appliqué la méthode des matrices de propagation au cas des boîtes quantiques en « cavité ».[Chuang95] Cette méthode est basée sur le calcul des coefficients de réflexion et de transmission aux différentes interfaces de l'échantillon.[Folliot99] Le schéma de principe des matrices de propagation est proposé sur la figure 2-12. Les champs  $E_i^{+,-}$  représentent les amplitudes du champ électrique, où  $i$  est l'indice de la couche, + et - sont les sens de propagation.

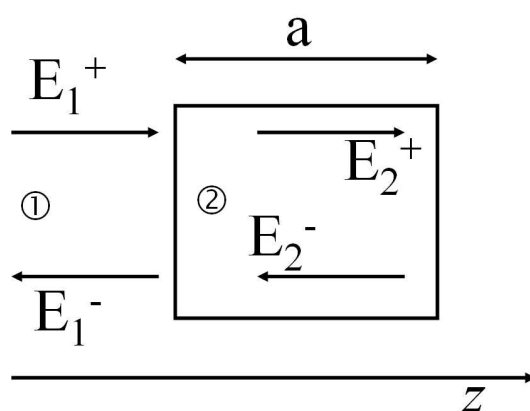


Figure 2-12 : Schéma de principe de la méthode des matrices de propagation

Les équations de propagations sont connues :

$$E_1(z) = e^{i\alpha z} (E_1^+ e^{-ik_1 z} + E_1^- e^{ik_1 z})$$

$$E_2(z) = e^{i\alpha z} (E_2^+ e^{-ik_2(z-a)} + E_2^- e^{ik_2(z-a)})$$

où  $k_i$  désigne le vecteur d'onde selon l'axe  $z$  dans la couche  $i$  et a pour expression :

$$k_i = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_i - i \frac{\alpha_i}{2}, \quad n_i \text{ est alors l'indice réel et } \alpha_i \text{ le coefficient d'absorption de la couche}$$

considérée.

En écrivant la continuité de  $E$  et de  $\frac{\partial E}{\partial z}$  à l'interface, on relie les différents coefficients par

la matrice  $A$  :

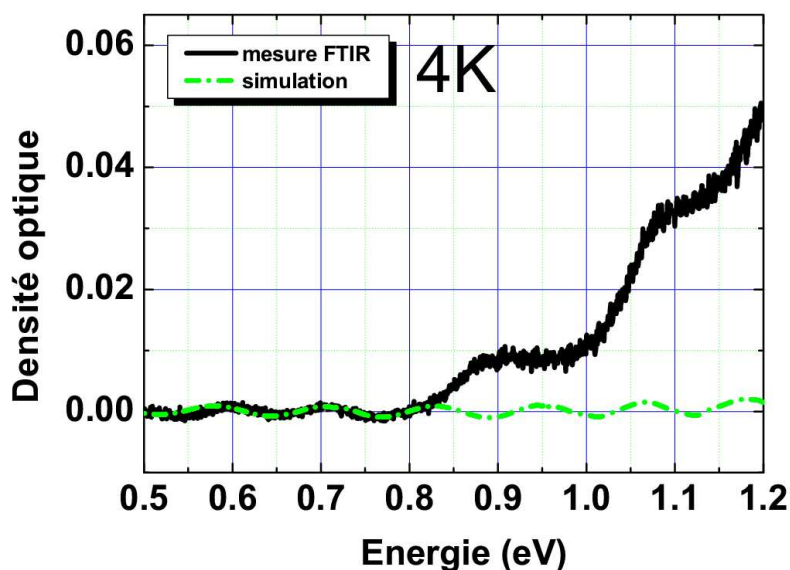
$$\begin{bmatrix} E_1^+ \\ E_1^- \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} e^{ik_2a} \left(1 + \frac{k_2}{k_1}\right) & e^{-ik_2a} \left(1 - \frac{k_2}{k_1}\right) \\ e^{ik_2a} \left(1 - \frac{k_2}{k_1}\right) & e^{-ik_2a} \left(1 + \frac{k_2}{k_1}\right) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_2^+ \\ E_2^- \end{bmatrix} = A \begin{bmatrix} E_2^+ \\ E_2^- \end{bmatrix}$$

On pose maintenant les coefficients r et t définis par :  $E_1^- = rE_1^+$  et  $E_2^+ = tE_1^+$  pour une onde se propageant vers les z croissants. Les coefficients r' et t' sont définis de la même manière pour une onde se propageant vers les z décroissants. On peut alors exprimer la matrice de propagation par la formule :

$$A = \begin{bmatrix} \frac{1}{t} & -\frac{r'}{t} \\ r & \frac{tt' - rr'}{t} \end{bmatrix}$$

En multipliant les différentes matrices de propagation des différentes couches de la structure étudiée entre elles, on en déduit finalement les coefficients de transmission et de réflexion de la structure globale, et donc sa densité optique par la même occasion.

Dans un premier temps, seuls les effets de cavité observables à basse énergie sur la courbe expérimentale ont été simulés. Dans cette simulation, prenant en compte les différentes épaisseurs et indices optiques des différentes couches, les oscillations observées sont à relier directement à l'épaisseur de la zone active, et donc du spacer. Un ajustement de la courbe expérimentale dans la première partie de la courbe [0.6 – 0.8 eV] peut donc être proposé sur la figure 2-13. Cet ajustement est réalisé en faisant varier l'épaisseur du spacer. La valeur déterminée par ajustement est de 116 nm, en très bon accord avec la valeur déterminée aux rayons X, qui est de 119 nm. L'amplitude des oscillations peut être en première approximation reliée aux différences d'indice dans la structure.



*figure 2-13 : Simulation des effets de cavité en l'absence de boîtes quantiques, et ajustement à la courbe expérimentale à basse température*

Pour réaliser ces simulations, un indice variant avec la longueur d'onde a été pris pour l'InP à partir de la référence [Adachi82], avec un coefficient d'absorption de  $8 \text{ cm}^{-1}$  à  $1.55 \mu\text{m}$ , ce qui est très faible, et n'a donc pratiquement aucune incidence sur la détermination du coefficient d'absorption. La couche active, composée en partie d'InAs et d'InP, peut être considérée d'épaisseur égale à environ  $3 \text{ nm}$ , et d'indice égal à  $3.5$ . Un changement de  $10 \%$  de la valeur de cet indice n'induit qu'une variation de l'amplitude des FPCE inférieure au bruit de mesure. Les variations de cet indice en fonction de la longueur d'onde sur la gamme d'énergie étudiée n'ont donc pas été prises en compte.

### 2.2.2.c Spectres d'absorption des boîtes quantiques après traitement numérique

Les spectres d'absorption des boîtes quantiques ont été obtenus numériquement de manière auto-cohérente. Un premier tableau de valeurs pour l'absorption d'une couche active est associé au programme des matrices de propagation afin de déduire la densité optique totale pour l'échantillon et de la comparer avec les mesures expérimentales. (cf. figure 2-14 (a)) En fonction de l'écart observé par rapport aux mesures, le programme ajuste les valeurs d'absorption et réinjecte les nouvelles valeurs trouvées dans les matrices. Par itérations successives, la convergence entre les mesures expérimentales et les densités optiques calculées est obtenue.

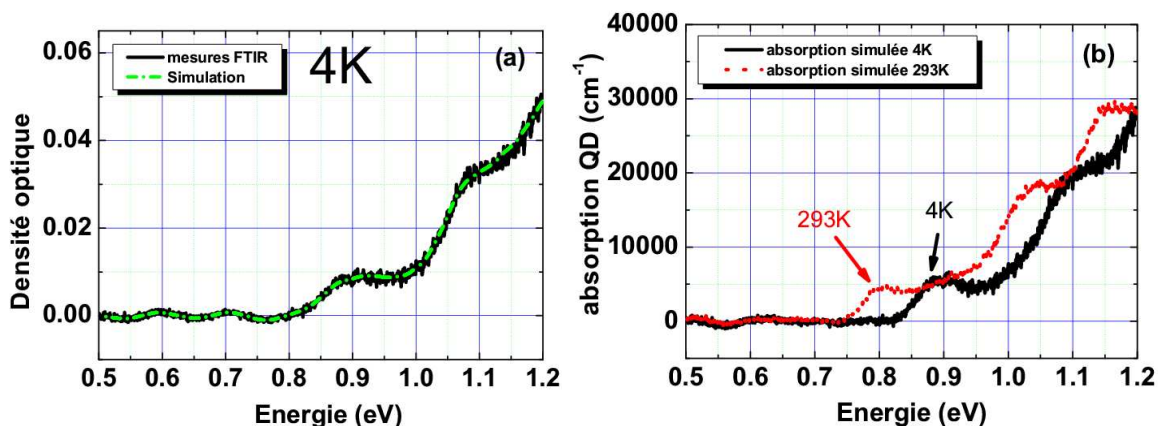


Figure 2-14 : Un programme auto cohérent permet d’extraire le spectre d’absorption d’un plan de boîtes quantiques. Le spectre d’absorbance de l’échantillon complet mesuré est ajusté par la simulation (a) dans laquelle a été injecté le spectre d’absorption complet pour un plan de boîtes quantiques (b), déterminé par essais successifs.

Ainsi, il a été possible d’extraire les spectres d’absorption pour une couche active (boîtes quantiques, couche de mouillage, et couche de recouvrement (qui n’absorbe presque pas dans la gamme de longueur d’onde qui nous intéresse)) considérée, en fonction de la température, entre 4 K et 293 K, comme indiqué sur la figure 2-14 (b).

### 2.2.3 Le coefficient d’absorption des boîtes quantiques

#### 2.2.3.a Influence de la température

Les spectres d’absorption concernant un plan de boîtes quantiques sont ainsi présentés sur la figure 2-15. En utilisant des fonctions d’ajustement de forme Gaussienne pour simuler l’élargissement associé à la distribution inhomogène des boîtes quantiques, les pics d’absorbance de la transition fondamentale des boîtes quantiques sont ainsi déterminés à 0.880 eV (4 K) et à 0.802 eV (293 K). En plus de ces pics d’absorbance, des mesures de photoluminescence sont également proposées sur la figure 2-15, pour le même échantillon. L’émission des transitions fondamentales est ainsi mesurée à 0.845 eV (4 K) et 0.785 eV (293 K). Le « Stokes shift » (SS) (décalage vers les hautes énergies) entre la photoluminescence et les mesures d’absorbance est ainsi mis en évidence pour les deux températures : 35 meV à 4 K, et 17 meV à température ambiante. Ce SS du à la thermalisation des porteurs, a déjà été observé précédemment pour des boîtes quantiques  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  sur substrat GaAs.[Patanè00b] Dans cette référence, il est montré que cette description n’est plus valide à basse température à cause de la compétition entre les processus de diffusion des porteurs et de recombinaison.



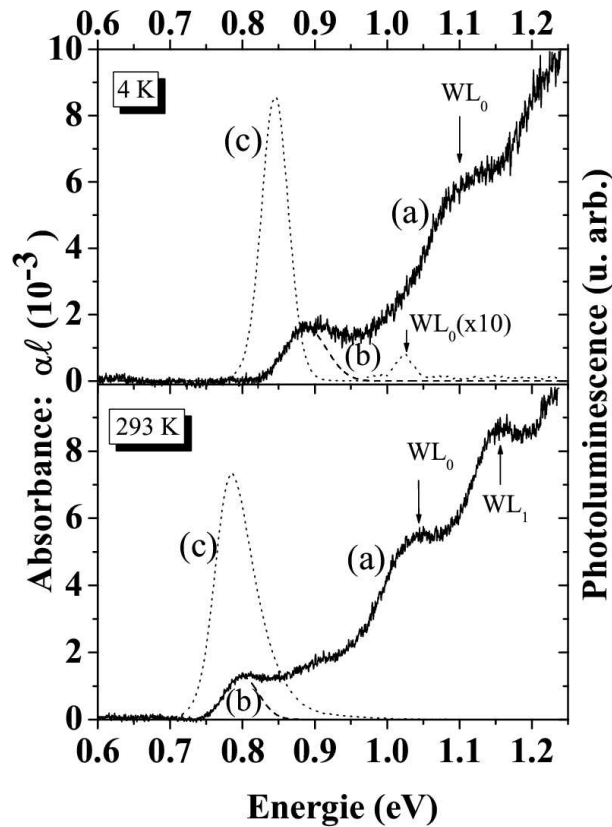


Figure 2-15 : Mesures d'absorbance FTIR pour un plan de boîtes prenant en compte les FPCE à 4 et 293 K (a). L'absorption des boîtes quantiques est extraite des spectres proposés en utilisant un ajustement gaussien (b). La photoluminescence du même échantillon est également présentée (c).

Dans notre cas, le comportement de ce SS avec la température peut ainsi être analysé en utilisant l'équation  $SS = 0.18W^2/k_bT$ , où  $W$  est la largeur à mi-hauteur du pic d'absorbance et  $T$  la température du cristal.[Patanè00b] Pour une largeur à mi-hauteur de 54 meV estimée sur le spectre d'absorbance à 4 K, le SS calculé (21 meV) est proche de celui mesuré (17 meV).

D'après les spectres d'absorbance présentés sur la figure 2-15, la transition fondamentale de couche de mouillage est également observée ( $WL_0$ ), autour de  $(1.100 \pm 0.020)$  (4 K) et  $(1.040 \pm 0.020)$  eV (293 K). Cette transition est aussi visible sur le spectre de photoluminescence à 1.020 eV (4 K), mais pas à 293 K, à cause de la capture efficace des porteurs dans les boîtes à une telle température.[Miska03b] Le décalage entre absorbance et luminescence sur cette transition de couche de mouillage est estimé égal à 80 meV, et peut être attribué à la capture des excitons sur les défauts d'interface,[Bastard84] même si le pointage de cette transition n'est pas aisé sur les spectres d'absorbance obtenus en FTIR.

La première transition entre états excités de couche de mouillage  $WL_1$  est également clairement visible à 1.150 eV (293 K). Ainsi, l'écart  $WL_0-WL_1$  est égal ici à 130 meV, en bon accord avec la valeur déduite par la technique de photoluminescence résolue en temps proposée dans les références [Miska03b] et [MiskaSST02].

### *2.2.3.b Mesure du coefficient d'absorption*

L'absorbance ( $\alpha l$ ) de la transition fondamentale de boîtes quantiques, pour une couche active contenant des boîtes quantiques de densité surfacique  $5.10^{10} \text{ cm}^{-2}$  et d'une couche de mouillage a été mesurée égale à  $1.65.10^{-3}$  et  $1.32.10^{-3}$  à 4 et 293 K respectivement, avec une précision de 20 %. L'absorbance des boîtes quantiques à température ambiante peut-être comparée à l'absorbance mesurée pour un échantillon comprenant 20 puits quantiques InGaAs/InP en accord de maille sur InP (8.5 nm/10 nm), émettant à 0.8 eV. La croissance d'un tel échantillon a été réalisée sur le même bâti d'épitaxie, pour deux orientations de substrat (table 2-1).

La même technique a été utilisée sur les spectres obtenus avec les puits quantiques pour s'affranchir des effets de cavité (FPCE). A 1.55  $\mu\text{m}$  et 293 K, l'absorbance d'un seul puits quantique est de  $7.80 \times 10^{-3}$  pour le substrat (311)B. Le rapport R entre l'absorbance des puits quantiques et celle des boîtes quantiques est environ égal à 6 pour une seule zone active considérée.

Ainsi, une zone active dans une structure laser aura besoin de six fois plus de plans de boîtes quantiques (InAs/InP) que de puits quantiques, pour obtenir la même absorbance en régime linéaire. Sur substrat (100), un seul puits quantique avec une absorbance de  $7.3 \times 10^{-3}$  à 1.55  $\mu\text{m}$  est équivalent à 5.5 plans de boîtes quantiques. Ces considérations permettent également de relier absorption et nombre d'atomes optiquement actifs à 1.55  $\mu\text{m}$  dans la structure.

Références	Ce travail	Ce travail	Ce travail	[Sugawara99]
Type de zone active	QD	QW	QW	QW
Composition de la zone active	(InAs/InP)	(InGaAs/InP)	(InGaAs/InP)	(InGaAs/InP)
Orientation du substrat	(311)B	(311)B	(100)	(100)
Absorbance : $\alpha l$	$1.32 \times 10^{-3}$	$7.80 \times 10^{-3}$	$7.30 \times 10^{-3}$	$9.00 \times 10^{-3}$
Epaisseur de la zone active	3.0	8.5	8.5	10.0
Coefficient d'absorption : $\alpha$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	4400	9176	8588	9000
Largeur à mi-hauteur du pic d'absorption (meV)	54	14	14	...

Table 2-1: Caractéristiques comparées des boîtes quantiques (QD) et puits quantiques (QW) sur substrat (311)B et (100) à température ambiante, et à la longueur d'onde de 1.55  $\mu\text{m}$ .

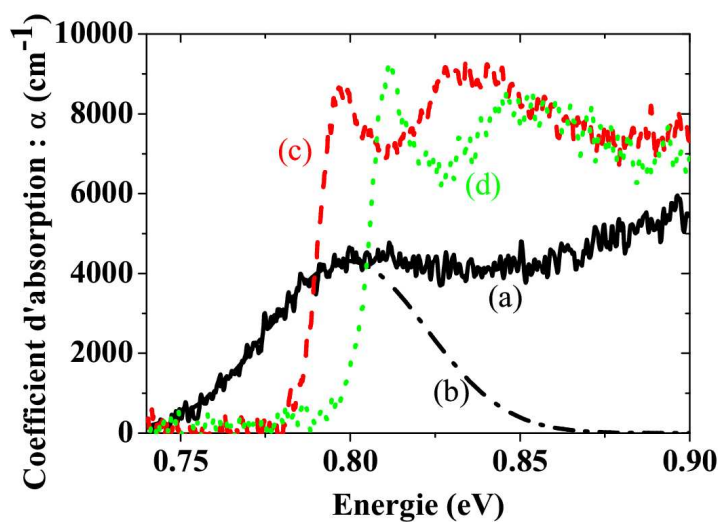


Figure 2-16 : Spectres d'absorption pour des boîtes quantiques InAs/InP et des puits quantiques InGaAsP/InP en  $\text{cm}^{-1}$  tenant compte des effets de cavité FPCE pour un plan de boîtes quantiques et un puits quantique à 293 K. (a) Absorption des boîtes quantiques avec un ajustement gaussien (b), de largeur à mi-hauteur 45 meV. Spectre d'absorption d'un puits quantique sur substrat (311)B (c) et sur substrat (100) (d).

### 2.2.3.c Lien entre absorption optique et nombre d'atomes actifs

En prenant en compte les épaisseurs associées aux puits quantiques (8.5 nm) et aux plans de boîtes quantiques (3 nm), ainsi que le facteur d'occupation de la surface (48 % pour une densité surfacique de  $5.10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ), le rapport entre le volume de matériau actif associé à un seul puits quantique, et à un plan de boîtes quantiques est proche de 6, comme le rapport R précédemment défini. Ce résultat, pourrait nous amener à la conclusion suivante : le paramètre essentiel est donc le nombre d'atomes « actifs » impliqués dans l'absorption (et donc le « volume actif »).[Klopf01]

Pour aller plus loin, en considérant que l'absorption de l'InP est négligeable ( $200 \text{ cm}^{-1}$ ) à  $1.55 \mu\text{m}$ , nous pouvons ainsi extraire le coefficient d'absorption à  $1.55 \mu\text{m}$  pour une zone active composée d'un puits quantique ou d'un plan de boîtes quantiques (table 2-1, figure 2-16).

L'absorption d'un puits quantique dans nos échantillons est égale à, respectivement 9176 et  $8568 \text{ cm}^{-1}$  pour les substrats (311)B et (100), pour une épaisseur de zone active de 8.5 nm, à  $1.55 \mu\text{m}$ . Le coefficient d'absorption, pour un plan de boîtes quantiques InAs/InP sur substrat (311)B est quant à lui égal à  $4400 \text{ cm}^{-1}$ .

Toutefois, toute comparaison directe entre coefficients d'absorption des puits et des boîtes serait hasardeuse, n'ayant à notre disposition que 2 échantillons. De plus, il faudrait pour cela prendre en compte les effets excitoniques, ainsi que les effets de largeur inhomogène caractéristiques des ensembles de boîtes quantiques. Ce point devra être développé dans de futurs travaux.

### 2.2.3.d Conclusion

Une mesure d'absorption a été réalisée sur un échantillon constitué de 12 plans de boîtes quantiques InAs/InP sur substrat (311)B. Un procédé de mesure et de simulation a été mis au point afin d'extraire l'absorption des boîtes quantiques des spectres bruts mesurés par

spectroscopie FTIR. A 1.55  $\mu\text{m}$ , l'absorbance des boîtes quantiques mesurée est égale à  $1.32 \times 10^{-3}$  pour un plan de boîtes quantiques, une densité surfacique de boîtes de  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , et une hauteur de 3 nm, permettant ainsi de déterminer un coefficient d'absorption de  $4400 \text{ cm}^{-1}$ . Nous avons ainsi montré qu'un puits quantique et six plans de boîtes quantiques sont équivalents en absorbance à 1.55  $\mu\text{m}$ .

*Une mesure du coefficient d'absorption a ainsi été présentée dans cette partie. Pour poursuivre l'étude des propriétés optiques fondamentales, des expériences de magnéto-photoluminescence sont montrées par la suite. L'exploitation de ces données amène à différencier les différents types de boîtes quantiques suivant le matériau utilisé pour les recouvrir.*

## **2.3 Influence du recouvrement des boîtes quantiques étudié par magnéto-photoluminescence**

*Cette partie décrit une partie des travaux réalisés à l'aide de la magnéto-photoluminescence à Leuven (Belgique).[CornetAPL05]*

### **2.3.1 Magnéto-photoluminescence sur des boîtes InAs/InP, ou InAs/alliage quaternaire.**

#### *2.3.1.a Motivations et cadre général de l'étude*

L'intérêt des boîtes quantiques n'étant plus à démontrer, [Bimberg99] nous allons nous focaliser ici tout particulièrement sur l'un des avantages classiquement attribué aux boîtes quantiques : le caractère 0D des états de boîte quantique (cf. chapitre 0). Un tel confinement 0D est de première importance, pour garantir l'insensibilité à la température des composants lasers. En suivant un des principaux critères habituellement considérés pour garantir une bonne insensibilité à la température des composants optoélectroniques, il est nécessaire que l'écart entre la transition fondamentale et la transition des niveaux excités soit supérieure à  $k_b T = 25 \text{ meV}$  à température ambiante. Cet écart est relié directement aux propriétés de confinement latéral de nos boîtes quantiques, qui feront l'objet de cette partie. De ce point de vue, les paramètres physiques tels que le rayon de Bohr, l'énergie de liaison et l'écart entre

transitions fondamentales et transitions de niveaux excités sont bien adaptés pour décrire l'effet de confinement latéral dans les boîtes quantiques.

Dans la procédure double cap utilisée (DC), [Paranthoen03] deux « cap » sont utilisés, soit deux étapes de recouvrement des boîtes. La compréhension de l'impact du premier « cap » et du second « cap » sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques est donc au centre du problème du confinement latéral étudié. Dans la suite, la notation boîte/1<sup>er</sup>cap/2<sup>ème</sup>cap est utilisée. Dans le système InP, les boîtes quantiques InAs/InP/InP sont d'habitude considérées comme boîtes quantiques de référence. [Paranthoen03] [CornetAPL04] Mais ce système a un confinement optique très limité, et n'est donc pas approprié pour les applications lasers. Les boîtes quantiques InAs/InP/Q1.18, où Q1.18 représente l'alliage quaternaire  $\text{In}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}_{0.435}\text{P}_{0.565}$  émettant à une longueur d'onde de 1.18  $\mu\text{m}$ , ont été utilisées au départ pour générer une émission laser. [Platz05] Récemment, des boîtes quantiques InAs/Q1.18/Q1.18 ont également été utilisées pour produire une émission laser, tout en s'affranchissant de l'effet de barrière de la couche d'InP pour la diffusion des porteurs. [Platz05] [CaroffJCG05] Dans ce travail, nous étudions les propriétés de confinement latéral par magnéto-photoluminescence, [Hayne04] [Raymond03] et photoluminescence sous forte puissance d'excitation, et nous allons montrer que le choix du matériau est crucial pour les applications lasers à 1.55  $\mu\text{m}$ .

### *2.3.1.b Échantillons étudiés*

Six échantillons comportant un seul plan de boîtes ont été étudiés ici. Les matériaux choisis sont respectivement InAs/InP/InP (échantillons A et A'), InAs/InP/Q1.18 (échantillons B et B') et InAs/Q1.18/Q1.18 (échantillons C et C'). La croissance des boîtes quantiques est réalisée sur substrat (311)B. Les échantillons étudiés sur les deux expériences sont différents, afin de s'adapter aux gammes de détection des détecteurs InGaAs étudiés. Les échantillons A, B et C sont réalisés pour émettre autour de 0.8 eV à basse température pour les expériences de magnéto-photoluminescence. [Paranthoen03] Les échantillons A', B' et C' sont réalisés pour émettre autour de 0.8 eV à température ambiante pour les expériences de photoluminescence sous forte puissance d'excitation. La figure 2-17 montre des images AFM de boîtes quantiques InAs déposées sur une couche d'InP (similaires à celles des échantillons A et A') (a) et des boîtes d'InAs déposées sur une couche de Q1.18 (similaires à celles des échantillons B, B', C et C').

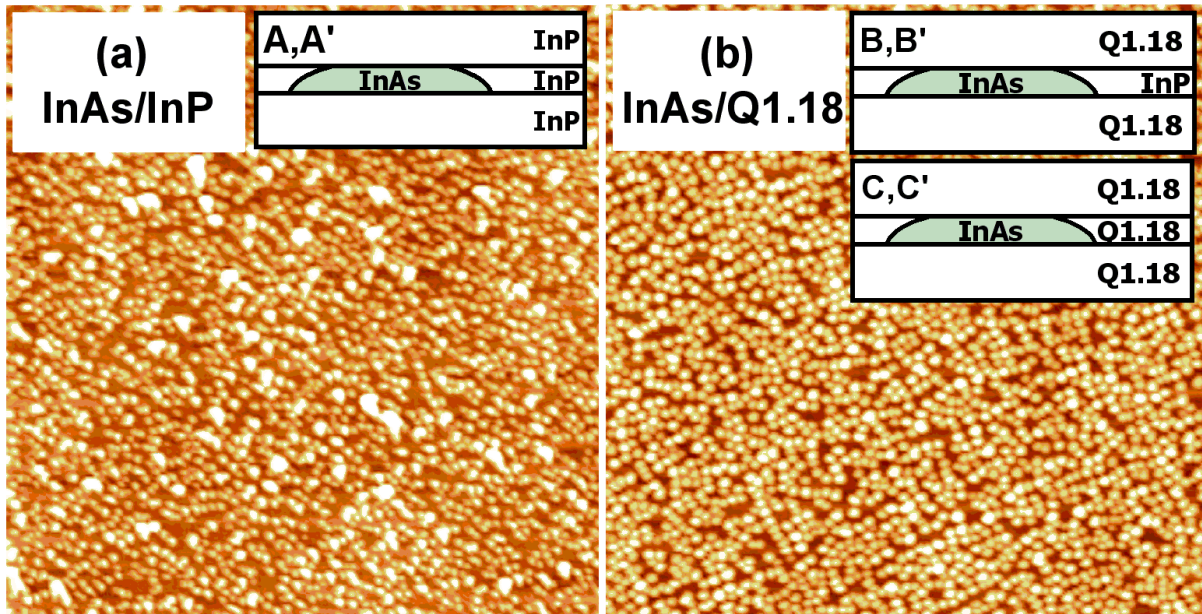


Figure 2-17 : Image AFM  $2 \times 2 \mu\text{m}^2$  de boîtes quantiques non recouvertes InAs/InP similaires aux échantillons A et A' (a), et InAs/Q1.18 similaires aux échantillons B, B', C et C' (b). Les densités surfaciques et les rayons moyens des boîtes sont similaires. Les hauteurs mesurées varient entre 0 nm (zones sombres correspondant à la couche de mouillage) et 8 nm (zones claires correspondant aux boîtes les plus hautes).

Les densités surfaciques mesurées sont égales à  $5.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  pour les boîtes déposées sur InP, et  $6.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  pour les boîtes déposées sur Q1.18. Les rayons moyens des boîtes sont voisins de  $(18 \pm 3 \text{ nm})$  pour les boîtes sur Q1.18, et  $(19 \pm 4 \text{ nm})$  pour les boîtes sur InP. Ces valeurs sont reportées en table 2-2. La similarité entre ces deux échantillons nous permet d'interpréter toute différence future observée dans la suite de l'étude entre les échantillons A, B et C, comme la conséquence de la procédure de recouvrement, et/ou de la différence de confinement induite par la différence de matériaux dans la barrière.

### 2.3.1.c Mesures sous champ magnétique

Les mesures de magnéto-photoluminescence sont réalisées dans un cryostat Hélium à 4.2 K, dans l'entrefer d'un électro-aimant pulsé avec un champ maximum de 50 T (cf. partie 2.1.4.c), avec un champ parallèle à l'axe de croissance z. [Hayne00] [Maes04b] La transition fondamentale observée en photoluminescence se décale vers les hautes énergies sous l'effet du champ magnétique. [Hayne00] [Hayne04] Le modèle excitonique décrit dans la partie 2.1.4.b est utilisé pour traiter les mesures. Ce décalage est quadratique lorsque le champ est suffisamment faible, puis devient linéaire lorsque le champ devient fort. A la limite entre les

deux domaines, la valeur de champ magnétique est appelée champ critique  $B_C$ , et ne dépend que du rayon de Bohr de l'exciton. Ainsi, la visualisation du champ critique donne directement une idée du rayon de Bohr de l'exciton. Il s'ensuit la détermination des masses effectives et énergies de liaison de l'exciton.

Cette analyse a donc été menée sur les trois échantillons considérés. Les valeurs pour les rayons de Bohr, les énergies de liaison et les masses effectives de l'exciton sont présentées dans la table 2-2.

Echantillons	Diamètre AFM (nm)	$E_{liaison}^X$ (meV)	$\sqrt{\langle \rho \rangle^2}$ (nm)	$\mu_r$ (unités de $m_0$ )	$\Delta E_1 / \Delta E_2$ (meV)
A et A' (InAs/InP/InP)	38	7	7.7	0.09	9/24
B et B' (InAs/InP/Q1.18)	36	7	7.8	0.09	10/23
C et C' (InAs/Q1.18/Q1.18)	36	12	6.9	0.07	26/39

*Table 2-2: Paramètres caractéristiques du confinement latéral pour les échantillons A, A', B, B', C et C'. Les diamètres des boîtes quantiques, les énergies de liaison  $E_{liaison}^X$ , rayons de Bohr  $\sqrt{\langle \rho \rangle^2}$ , masses effectives de l'exciton  $\mu_r$ , et l'écart en énergie entre la transition fondamentale, et les transitions des états excités  $\Delta E_1 / \Delta E_2$ .*

La figure 2-18 (a) représente l'évolution des spectres de photoluminescence avec un champ magnétique en augmentation pour l'échantillon A, à partir desquels sont tirés les paramètres obtenus dans la table 2-2. La figure 2-18 (b) représente l'évolution du pic de photoluminescence pour les échantillons B et C en fonction de  $B^2$  (la dépendance sous champ magnétique de l'échantillon A n'est pas présenté sur la même courbe par souci de clarté, mais est pratiquement identique à celle de l'échantillon B). La droite en pointillés représente l'extrapolation de l'ajustement linéaire de la courbe expérimentale pour l'échantillon C sur la gamme [0 ; 713 T<sup>2</sup>].



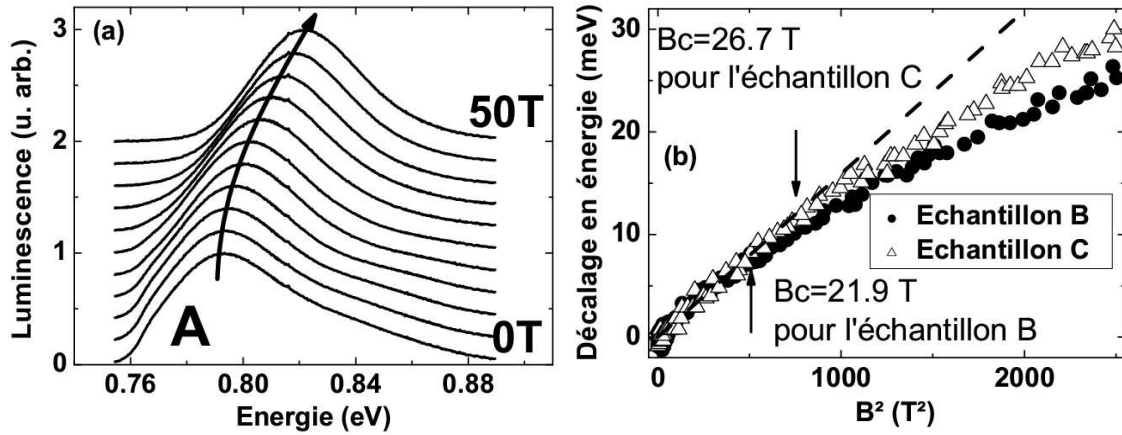


Figure 2-18 : Spectres de photoluminescence de la transition fondamentale pour diverses valeurs du champ magnétique appliquées sur des boîtes quantiques InAs/InP/InP (échantillon A) (a), et mesures équivalentes pour les échantillons B et C (b). L'évolution de la transition fondamentale est tracée en fonction du carré du champ magnétique.

Les deux courbes expérimentales présentées ici pour les échantillons B et C dévient du régime linéaire en  $B^2$  à partir d'un champ critique  $B_c$ . Le champ critique, ne dépendant que du rayon de Bohr de l'exciton, nous pouvons donc en déduire que l'extension spatiale de la fonction d'onde de l'exciton est plus petite pour l'échantillon C que pour les échantillons B et A (cf. table 2-2). Le premier « cap » apparaît très important pour le confinement latéral, qui est augmenté quand le Q1.18 est utilisé, plutôt que l'InP. L'énergie de liaison de l'exciton (table 2-2), est par ailleurs 70 % plus grande pour l'échantillon C que pour les échantillons A et B. Il est possible de remarquer que l'augmentation du confinement a lieu malgré une légère réduction de la masse effective de l'exciton visible sur l'échantillon C, de 0.07 fois la masse de l'électron libre en comparaison à 0.09 fois la masse de l'électron libre pour les échantillons A et B.

#### 2.3.1.d Interprétation

InP a un gap plus grand que le Q1.18, ce qui devrait entraîner un meilleur confinement, i.e. une plus grande énergie de liaison de l'exciton, et un plus petit rayon de Bohr.[Folliot98] [MiskaJPC02] [Miska03b] Les paramètres mesurés ici, comme l'énergie de liaison de l'exciton  $E_{liaison}^x$ , le rayon de Bohr de l'exciton  $\sqrt{\langle \rho \rangle^2}$ , ou la masse effective réduite de l'exciton  $\mu_r$ , indiquent le contraire. Ainsi, la différence de confinement entre les échantillons ne peut être expliquée par la nature du matériau barrière, mais ne peut être qu'une conséquence de la procédure de croissance. En effet, nous avons montré qu'une différence de confinement apparaît lorsque la composition du matériau de premier « cap » change. La force du confinement latéral est liée à deux paramètres principaux : la hauteur relative de la

barrière de confinement, et l'extension spatiale de la zone confinante (du potentiel de confinement). Alors que la hauteur de la barrière de confinement ne peut être changée, l'extension spatiale de la zone confinante n'est pas forcément constante durant la croissance. La diffusion latérale des atomes durant la croissance peut entraîner un gradient de composition dans la boîte quantique ainsi formée, et donc un gradient dans le potentiel de confinement de la boîte quantique considérée. Plusieurs mécanismes de croissance sont fondés sur cette diffusion, comme la ségrégation de l'Indium, le « demixing » ou l'« intermixing ».[Bruls02] Lorsque l'on compare nos résultats avec les études théoriques effectuées récemment au laboratoire,[Folliot98] [MiskaJPC02] [Miska03b] une plus grande différence entre théorie (calculs de type  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  du chapitre 1) et expérience (magnéto-photoluminescence et photoluminescence) est relevée sur les échantillons InP que sur les échantillons Q1.18. [Miska03b] En effet, ces calculs ne tiennent pas compte d'éventuels phénomènes de croissance qui pourraient intervenir lors du recouvrement des boîtes quantiques (étape de premier « cap »). En considérant que l'arrêt de croissance sous  $P_2$  augmente les échanges As/P durant la croissance (après le dépôt du premier « cap »),[Paranthoen03] l'intermixing latéral entre l'InAs et la première couche d'InP déposée durant la procédure DC peut expliquer cette différence. Cet effet d'« intermixing » entraîne donc un gradient de composition dans le plan latéral, réduisant le confinement latéral pour les échantillons InP (A et B). Ces échantillons A et B ayant le même premier cap, ont alors la même signature optique sous magnéto-photoluminescence. Cet effet serait alors plus faible lorsque le Q1.18 est utilisé comme matériau de premier « cap ». Ainsi, l'échantillon C a un meilleur confinement latéral que les échantillons A et B. Afin d'étudier les conséquences d'une telle différence sur les propriétés électroniques et optiques de nos boîtes quantiques, des expériences de photoluminescence sous haute puissance d'excitation ont été réalisés sur des échantillons similaires (A', B' et C').

## 2.3.2 Effets du confinement latéral sur les propriétés optiques

### 2.3.2.a *Etats excités et confinement latéral*

Les études précédentes réalisées au LENS ont montré des doubles émissions lasers distantes de 40 meV sous pompage optique dans les systèmes InAs/Q1.18/Q1.18,[Joulaud06] et InAs/InP/Q1.18,[Platz05] attribués à un effet laser à la fois sur la transition fondamentale, et sur la première transition entre états excités. Dans les mesures de photoluminescence résolue en temps, un écart de 50 meV a été choisi pour le traitement des données dans des

boîtes quantiques InAs/InP/InP.[MiskaSST02] [Miska03b] Toutefois, aucune mesure directe de cet écart n'a pu être réalisée jusqu'à présent.

L'expérience de photoluminescence sous forte puissance d'excitation dont le principe est expliqué dans la partie 2.1 a été utilisée ici. La puissance maximale atteinte est de  $170 \text{ kW.cm}^{-2}$ . Les spectres obtenus à partir des différents échantillons A', B' et C' sont présentés sur la figure 2-19.

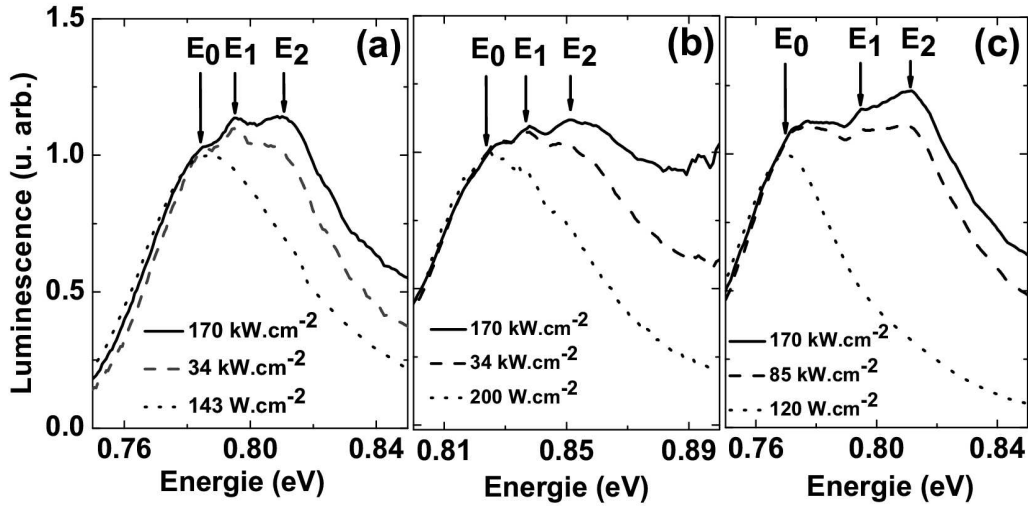


Figure 2-19 : Spectres de photoluminescence sous forte puissance d'excitation des échantillons A', B' et C' à température ambiante pour (a) des boîtes quantiques InAs/InP/InP avec des transitions d'états excités à  $E_1 = E_0 + 9 \text{ meV}$  et  $E_2 = E_0 + 24 \text{ meV}$ . (b) des boîtes quantiques InAs/InP/Q1.18 avec des transitions à  $E_1 = E_0 + 10 \text{ meV}$  et  $E_2 = E_0 + 23 \text{ meV}$ . (c) des boîtes quantiques InAs/Q1.18/Q1.18 avec des transitions à  $E_1 = E_0 + 26 \text{ meV}$  et  $E_2 = E_0 + 39 \text{ meV}$ . Ces valeurs sont reportées dans la table 2-2.

Les expériences de photoluminescence présentées ici sont réalisées pour plusieurs puissances de pompe afin d'identifier plus facilement les transitions associées aux états excités. Les écarts mesurés entre transitions fondamentales et transitions d'états excités sont reportés dans la table 2-2. La nature électronique de ces états excités (1S, 1P ou 1D) est encore mal connue. Toutefois, la forte dépendance en puissance et polarisation de ces états nous permet d'établir qu'il ne s'agit pas de différentes familles de boîtes, mais plutôt d'états électroniques excités. En conséquence, l'échantillon C' semble très différent des échantillons A' et B'. Plus le confinement latéral est fort, plus les transitions des niveaux excités sont éloignées de la transition fondamentale.[Schmidt97] Ainsi, ces mesures confirment que les boîtes quantiques InAs/Q1.18/Q1.18 possèdent le plus fort confinement latéral.

### 2.3.2.b Conséquences pour les lasers à boîtes quantique : Discussion

Ces considérations spectrales sont de première importance pour les applications laser. Un des principaux facteurs de qualité habituellement utilisé pour garantir l'insensibilité des

composants lasers à la température est donné par :  $\Delta E_1$  et  $\Delta E_2 > k_b T = 25$  meV à température ambiante. De ce point de vue, les échantillons A et B avec un premier « cap » d'InP paraissent peu adaptés pour les applications lasers, alors que l'échantillon C, possédant un « double cap » de Q1.18, se rapproche davantage de la condition d'insensibilité à la température des lasers à boîte quantique. De plus, les échantillons C et C' ont un meilleur confinement optique, amenant une meilleure injection des porteurs.[Platz05] L'insensibilité à la température des lasers à boîtes quantiques pourrait encore être améliorée en utilisant d'autres matériaux, ou en changeant l'allure des boîtes quantiques utilisées, et tout spécialement leur rapport de forme. Dans un tel système utilisant le Q1.18, de fortes densités surfaciques de boîtes quantiques peuvent également être atteintes,[CornetPRB05] permettant d'atteindre de très faibles densités de courant de seuil.[Platz05] [CaroffJCG05] Pour de telles densités de boîtes quantiques, nous montrerons au chapitre 3 que les écarts entre transition fondamentale et transition entre états excités sont légèrement modifiées à cause du couplage électronique latéral. Toutefois, les boîtes quantiques InAs/Q1.18/Q1.18 semblent posséder des propriétés permettant à la fois d'atteindre des basses densités de courants de seuil et de limiter la sensibilité à la température, deux des principaux critères de fonctionnement pour les lasers à boîtes quantiques.

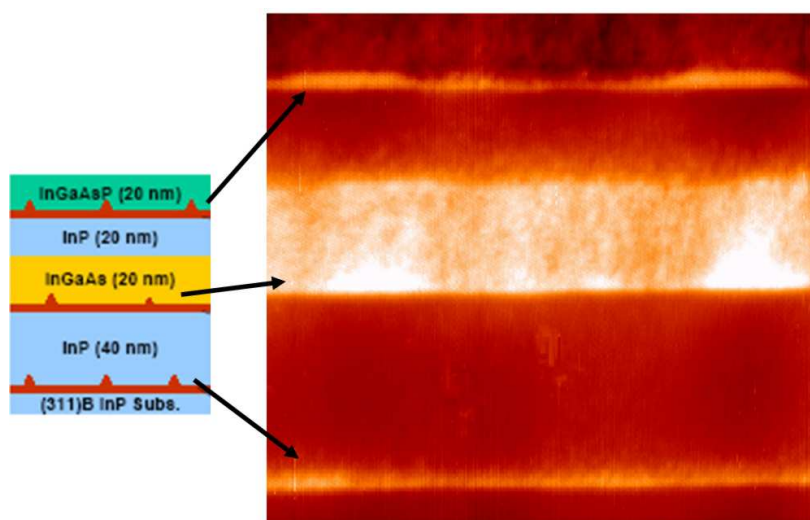
### 2.3.3 Conclusions et perspectives : confirmation par X-STM

#### *2.3.3.a Conclusions*

En conclusion, ce chapitre nous a permis d'étudier différents types de boîtes quantiques InAs/InP/InP, InAs/InP/Q1.18, et InAs/Q1.18/Q1.18 par magnéto-photoluminescence, et photoluminescence sous haute puissance d'excitation. Sur les deux premières structures, le confinement latéral est plus faible, ce qui est interprété comme une conséquence d'un phénomène de diffusion atomique de type « intermixing » durant la croissance. Ces propriétés électroniques rendent ces structures peu adaptées aux applications lasers d'autant plus que le premier cap InP est une barrière pour la diffusion des porteurs.[Platz05] D'un autre côté, les boîtes quantiques entièrement recouvertes d'alliage quaternaire Q1.18 ont une signature optique très différente, que nous associons à un fort confinement. L'influence et l'importance du premier « cap » sont ainsi démontrées. Le système des boîtes quantiques de type InAs/Q1.18/Q1.18 semble être le bon compromis entre faibles courants de seuil, et faible sensibilité à la température pour l'émission à 1.55  $\mu\text{m}$ .

### 2.3.3.b Confirmation par X-STM

L'étude précédente nous a permis de déduire des propriétés optiques des boîtes quantiques un certain nombre de renseignements structuraux, et de formuler des hypothèses à propos de certains mécanismes de croissance. Pour vérifier ces hypothèses, une étude par X-STM (cross-sectionnal scanning tunneling microscopy) a été réalisée à la TU Eindhoven.[OffermansPRB05] [OffermansphysE05] Cette méthode de caractérisation permet de sonder nos boîtes quantiques avec un pouvoir de résolution de l'ordre de grandeur de l'atome. Ainsi, toute diffusion d'atomes d'un milieu vers un autre milieu où sont présents des atomes différents, est visible à condition que le contraste chimique entre les deux types d'atomes soit suffisamment grand. La figure 2-20 représente ainsi un cliché de X-STM réalisé sur un échantillon contenant trois plans différents de boîtes quantiques, réalisé en coopération avec l'équipe de la TU Eindhoven.



*Figure 2-20 : Images de X-STM (cross-sectionnal scanning tunneling microscopy) d'un échantillon contenant des boîtes quantiques InAs/InP, InAs/InGaAs, et InAs/InGaAsP (Q1.18). Une seule étape de recouvrement est utilisée ici.*

Le premier plan contient ainsi des boîtes quantiques InAs/InP, le deuxième plan contient des boîtes quantiques InAs/InGaAs, (ternaire InGaAs accordé sur InP), et le troisième plan contient des boîtes quantiques InAs/Q1.18. Les boîtes ont un contour assez précisément défini quand le Q1.18 est utilisé, ce contour devient plus flou quand de l'InP ou du ternaire InGaAs accordé est choisi. Ceci confirme donc le fait qu'en utilisant l'InP, on favorise la diffusion d'atomes entre la boîte et la barrière, entraînant très nettement un défaut de confinement latéral dans de telles structures. Le manque de confinement latéral est donc confirmé, même si il ne s'agit pas à proprement parler du phénomène d'intermixing tel qu'il est décrit dans la

littérature. Cette étude toujours en cours permettra de définir les processus de croissance mis en jeu lors de la formation de ces boîtes quantiques. Toutefois, ces images ont été réalisées sur des échantillons n'utilisant pas la procédure double cap (DC). Il n'est donc pas possible de comparer directement ces images aux résultats expérimentaux précédents. De nouvelles études par X-STM seront réalisées prochainement afin de comprendre quels sont les mécanismes mis en jeu lors de la croissance d'échantillons InAs/InP et InAs/Q1.18 avec une procédure double cap. De plus, une étude spectroscopique complète sera également nécessaire, afin de s'assurer de la nature des états excités observés. (Étude de photoluminescence en puissance et polarisation notamment)

*Nous avons montré à partir d'expériences de magnéto-photoluminescence que l'utilisation de l'alliage quaternaire Q1.18 permet de mieux confiner les porteurs dans les boîtes.*

*Plus généralement, ce chapitre de thèse a permis de mettre en œuvre des outils de mesure permettant de mesurer les paramètres et caractéristiques fondamentales des boîtes quantiques. Les principales conclusions de ce chapitre sont les suivantes : (a) Un plan de boîtes quantiques possède un coefficient d'absorption de  $4400 \text{ cm}^{-1}$ . (b) L'absorbance d'un puits quantique est environ équivalente à l'absorbance de 6 plans de boîtes quantiques. (c) L'utilisation de l'alliage quaternaire 1.18 permet de mieux confiner les porteurs dans les boîtes quantiques. (d) L'utilisation de l'InP comme matériau barrière entraîne de la diffusion atomique entre l'InAs et l'InP. (e) Le choix de boîtes quantiques InAs/Q1.18 paraît être le meilleur compromis entre la possibilité d'atteindre de fortes densités surfaciques de boîtes quantiques (faibles courants de seuil) et un fort confinement (faible sensibilité à la température).*

*Dans la suite, nous allons nous intéresser plus particulièrement à l'effet des fortes densités surfaciques de boîtes sur les propriétés optiques et électroniques des boîtes quantiques. Le couplage latéral de boîtes quantiques sera ainsi étudié théoriquement et expérimentalement, et une discussion sera présentée sur les aspects négatifs et positifs de ce couplage pour les applications lasers.*



---

# CHAPITRE 3

---

## 3. Le couplage latéral de boîtes quantiques et ses conséquences

Nous présentons dans cette partie les résultats théoriques et expérimentaux obtenus dans le cadre de cette thèse concernant l'étude des échantillons avec des fortes densités surfaciques. Il est montré tout d'abord qu'en optimisant les conditions de croissance, il est possible d'atteindre de très fortes densités de boîtes quantiques. Celles-ci s'organisent alors dans le plan de croissance. Il est ensuite démontré par une méthode de calcul originale dans l'espace réciproque que des effets de couplage sont attendus sur de tels échantillons. Ces effets sont décrits, ainsi que leur conséquences sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques. Enfin, une étude expérimentale utilisant des moyens de caractérisation variés et complémentaires sur de tels échantillons est proposée. Elle tend à montrer l'existence du couplage latéral des boîtes quantiques. Une discussion est ainsi proposée sur l'influence de ce couplage dans les applications à boîtes quantiques.



## 3.1 Croissance de boîtes quantiques hautes densités : auto-organisation

*Cette partie a pour but de décrire comment, en optimisant les conditions de croissance, il est possible d'obtenir de très hautes densités de boîtes quantiques, et comment ces boîtes s'organisent dans le plan de croissance. Les principaux résultats présentés dans cette partie proviennent du travail de thèse de P. Caroff, [CaroffTh05] ou sont en cours de publication dans l'article [CornetPRB06b].*

### 3.1.1 Vers les hautes densités

Les plus récents développements au laboratoire FOTON-LENS ont porté sur l'étude de la croissance de boîtes quantiques en fortes densités.[CornetPRB05] [CaroffJJAP05] Cette étude est motivée par la recherche de densités de courants de seuil faibles pour les dispositifs laser. Les résultats les plus spectaculaires ont été obtenus dans le système InAs/Q1.18/Q1.18, sur substrat InP (311)B, où Q1.18 est l'alliage quaternaire InGaAsP utilisé pour le confinement optique dans la zone active du laser.

En diminuant le flux d'As, pour une même quantité d'InAs déposé, la densité surfacique de boîte (QDD) peut atteindre des valeurs aussi élevées que  $1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . La figure 3-1 représente les images AFM réalisées sur trois échantillons de respectivement 1, 3 et 6 plans de boîtes quantiques, séparés avec un espacement de 40 nm de Q1.18. L'image représente à chaque fois le dernier plan de QDs non recouverts. Une pointe AFM ultra-fine est utilisée pour la mesure (modèle BS-Cont du fabricant Budget Sensor, avec un rayon de courbure typique inférieur à 10 nm), afin de réduire au maximum les effets de pointe dans la détermination des rayons et de la morphologie des boîtes quantiques.

### 3.1.2 Auto-organisation

#### 3.1.2.a *Mise en évidence de l'auto-organisation*

Comme le montre la figure 3-1, plus l'empilement de plans de boîtes quantiques est important, plus l'organisation des boîtes dans le plan est marquée. La présence d'auto-organisation des boîtes quantiques est clairement démontrée par l'observation de maxima locaux d'intensité (« spots ») sur la transformée de Fourier (FFT) 2D des images présentées, dans les encarts de la figure 3-1. Les mesures AFM montrent que cette organisation est déjà présente depuis le premier plan de boîtes quantiques, et devient vraiment conséquente sur le troisième plan.

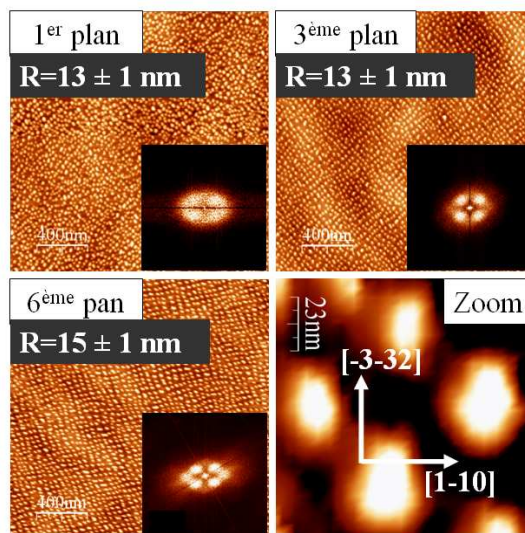


Figure 3-1 : Image ( $2\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m}$ ) de microscope à force atomique (AFM) sur 3 échantillons avec 1, 3 et 6 plans de boîtes quantiques empilés. Un zoom sur l'image AFM de l'échantillon contenant 6 plans de boîtes quantiques est également proposé, avec les directions cristallographiques. Les directions cristallines sont ici exceptionnellement définies par rapport à un substrat d'orientation (113)B. Les rayons moyens des boîtes quantiques sont également indiqués, ainsi que la transformée de Fourier 2D des images en encart.

La figure 3-2 (a) représente les transformées de Fourier à 2D (2D-FFT), les diagrammes d'auto-corrélations, et les distances moyennes  $a$  entre les boîtes, pour les échantillons non-cappés utilisés dans cette étude. L'auto-corrélation est ici de première importance, car elle permet de quantifier l'organisation des boîtes dans le plan sur les échantillons considérés.

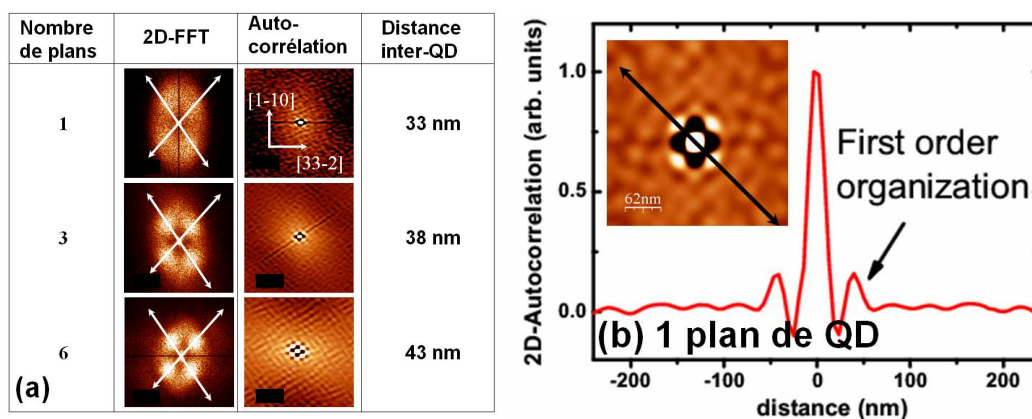


Figure 3-2 : (a) Table représentant les transformées de Fourier 2D des images AFM, les images d'auto-corrélations, et les distance moyennes inter-QD en fonction du nombre de plans de boîtes quantiques. (b) Une projection du spectre d'auto corrélation 2D montre qu'un ordre à courte distance apparaît y compris sur le premier plan.[CornetPRB06b]

Comme l'indique la figure d'autocorrélation en coupe sur la figure III-2 (b), l'organisation présentée précédemment est déjà présente pour le premier plan, au moins pour les plus

proches voisins, à courte distance, alors que l'échantillon avec 6 plans de boîtes quantiques a une organisation à longue distance (au moins jusqu'au 6<sup>ème</sup> voisin). Ce phénomène a déjà été observé et expliqué par Xu et al.[Xu01], qui ont démontré que, même pour un seul plan de boîtes quantiques, une organisation dans le plan peut apparaître quand une forte densité de boîtes est obtenue, et plus particulièrement pour les substrats d'orientation (N11). Pour de tels substrats, les boîtes quantiques tendent à s'organiser suivant la direction du plus petit module d'Young, i.e. suivant la direction de plus petite déformation. Cet aspect peut également être compris de la manière suivante : pour une telle densité de boîtes quantiques dans le plan, une nucléation aléatoire résulterait en une grande perte d'énergie. Ainsi, une organisation périodique apparaît dans le plan afin de minimiser l'énergie du système.[Lippen04] Dans des empilements consécutifs de plans de boîtes, cette organisation est accrue par le champ de contrainte induit par les plans précédents. Ceci a été démontré par Tersoff et al. qui ont modélisé le champ de contrainte dans les empilements de plans de boîtes quantiques.

### 3.1.2.b Topologie du réseau de boîtes quantiques et interprétation

Le zoom présenté sur la figure 3-1 montre que les boîtes quantiques sont allongées suivant la direction  $[-2 \ 3 \ 3]$ ,[Fréchengues99] [Fréchengues99b] tandis que la direction principale du réseau de boîtes est alignée suivant la direction de facile déformation (environ  $45^\circ$  par rapport à la direction  $[-2 \ 3 \ 3]$  ).[CaroffTh05] Ainsi, les axes principaux du réseau ne sont ni les directions  $[-2 \ 3 \ 3]$ , ni  $[0 \ 1 \ -1]$ , axes privilégiés de croissance des boîtes quantiques. Ces boîtes quantiques ayant une forme anisotrope, une sensibilité à la polarisation de la luminescence de ces boîtes quantiques est attendue. Dans un tel système, il est alors possible d'envisager deux directions préférentielles de polarisation : une pour les boîtes, l'autre pour le réseau.

La figure 3-3 montre l'évolution de la densité de boîtes quantiques, et du facteur de compacité en fonction du nombre de plans de boîtes quantiques empilés à partir des images AFM de la figure 3-1,[CornetPRB05], ( $C = \pi R^2/a^2$ , rapport entre la surface occupée par les boîtes quantiques, sur les images, et la surface totale de l'image). Les rayons de boîtes correspondants à ces échantillons sont donnés dans la figure 3-1. Toutes les valeurs présentées ici ont été extraites des images AFM en utilisant le logiciel « SPM-image magic ». Etant donné qu'une pointe ultra-fine est utilisée, et que le rapport d'aspect vertical des boîtes est très faible (la hauteur typique des boîtes quantiques non recouvertes est d'environ 5 nm), les images AFM sont supposées être en grande partie peu sensibles aux effets de convolution par la forme de la pointe.

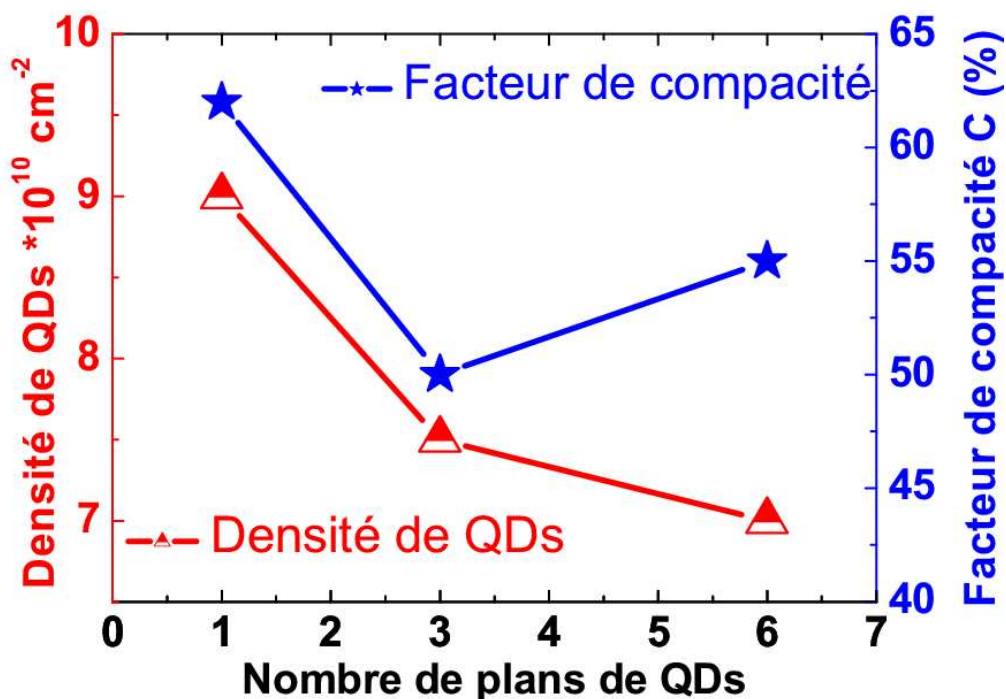


Figure 3-3 : Evolution du facteur de compacité et de la densité de boîtes quantiques en fonction du nombre de plans de boîtes quantiques empilés.

Comme le montre la figure 3-3, la densité surfacique de boîtes quantiques décroît quand le nombre de plans empilés augmente, mais la valeur reste toujours forte en moyenne (entre  $7 \times 10^{10}$  et  $9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ).

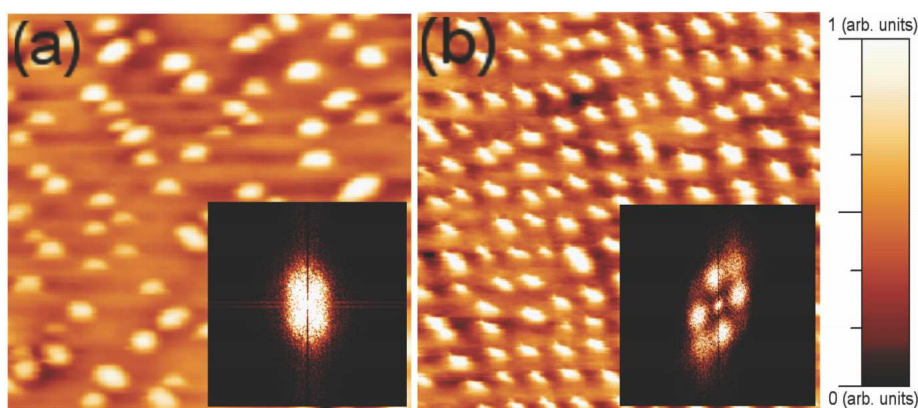


Figure 3-4 : Images AFM ( $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$ ) d'un échantillon contenant 6 plans empilés de boîtes quantiques, avec (a) une faible densité de boîtes quantiques de  $4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , et (b) une haute densité de boîtes de  $7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Les zones claires représentent la hauteur maximale des boîtes quantiques (i.e. environ 6 nm). Les encarts représentent la transformée de Fourier 2D de l'image correspondante.

Le facteur de compacité décroît pour un nombre de plans de boîtes variant de 1 à 3 (les boîtes ont le même rayon, mais la densité décroît). Ce facteur de compacité redevient ensuite

plus grand pour 6 plans (la densité surfacique de boîtes est quasiment constante, alors que le rayon moyen des boîtes augmente). Il faut toutefois garder à l'esprit que ces trois points de mesures ne sont pas suffisants pour dégager une tendance significative d'évolution des différents paramètres. Ils permettent simplement de donner des mesures AFM pour des échantillons dont la luminescence sera étudiée dans la partie 3.3.

Sur la figure 3-4, l'organisation latérale des boîtes est comparée sur des échantillons comprenant 6 plans de boîtes quantiques, avec (a) des faibles densités, et (b) des hautes densités. L'échantillon haute densité révèle ainsi une forte organisation latérale en translation et en orientation, absente pour l'échantillon à faible densité. Ainsi, cela démontre clairement que l'organisation latérale bien qu'amplifiée par le processus d'empilement, a son origine dans les hautes densités surfaciques de boîtes. Sur ces images, la question du couplage latéral entre les boîtes quantiques est soulevée. Les fonctions d'onde électroniques dans les boîtes quantiques doivent alors être sensibles à ces effets de hautes densités et de périodicité de ce réseau de boîtes.

*Dans cette partie, les principales techniques de croissance pour atteindre des fortes densités de boîtes ont été présentées. Avec de telles densités, il a été démontré qu'une organisation apparaît, pouvant faire penser à un éventuel couplage latéral entre boîtes. Des calculs ont ainsi été mis en place, afin de comprendre quelles sont les conséquences de ce couplage pour les boîtes quantiques, et sont présentées dans la suite.*

## **3.2 Description théorique du couplage entre boîtes quantiques, importance de la couche de mouillage**

*Cette partie décrit les travaux théoriques réalisés afin de décrire le couplage latéral de boîtes quantiques, dont les principaux résultats ont été publiés dans l'article [CornetPRB05].*

### **3.2.1 Contexte de l'étude**

#### *3.2.1.a Motivations et position du problème*

La méthode double cap présentée précédemment permet de tronquer des boîtes quantiques initialement peu élevées, en hauteur, jusqu'à une hauteur d'environ 3 nm pour une émission à 1.55  $\mu\text{m}$ . [Paranthoen03] Dans un tel système, la formation d'une couche de mouillage d'environ 1 nm est une conséquence directe du mode de croissance Stransky-Krastanov. Avec une hauteur de boîte du même ordre de grandeur que celle de la couche de mouillage, et des fortes densités surfaciques de boîtes quantiques, la question de l'effet de la proximité entre la

couche de mouillage sur les états de boîte, ainsi que du couplage électronique entre boîtes quantiques devient légitime.

### 3.2.1.b *Etat de l'art sur le sujet.*

Cette idée selon laquelle des boîtes en fortes densités pourraient avoir une influence les unes sur les autres n'ayant jamais été exploitée auparavant, il est intéressant de rassembler dans une même partie les différentes données dont nous disposons dans la littérature pour mener à bien cette étude. Des études spectroscopiques précédentes ont déjà analysés les états fondamentaux des boîtes quantiques (GS), les états excités (ES), et les états de couche de mouillage (WL), par différents moyens de caractérisation, comme la photoluminescence, [Paranthoen03] [CornetAPL04], la spectroscopie infra-rouge par transformée de Fourier FTIR, [CornetAPL04] et les expériences de photoluminescence résolue en temps (TRPL). [MiskaSST02] [Miska03b] [Jang06] Dans les références [Paranthoen03] et [CornetAPL04], deux pics de photoluminescence sont obtenus à basse température, interprétés comme étant les contributions des transitions fondamentales des boîtes quantiques et de la couche de mouillage respectivement. Ainsi, en considérant la couche de mouillage et les boîtes quantiques, nous avons réussi à obtenir une description des niveaux électroniques profonds de ces boîtes quantiques, en utilisant des calculs de type  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande, [MiskaJPC02] ou de type  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit bandes. [CornetPRB06] Dans les boîtes quantiques InAs/InP, [CornetAPL04] [MiskaSST02] [Miska03b] un continuum en énergie est également observé entre les niveaux d'énergie de boîtes quantiques et de couche de mouillage. Kammerer et al. ont déjà montré l'influence de l'environnement de boîtes quantiques InAs/GaAs sur la structure électronique. [Kammerer01, -02, -02b, -02c] Melnik et al. ont montré que les états de boîtes quantiques sont affectés par la présence de la couche de mouillage, d'après un calcul prenant en compte un modèle d'équation à une bande. [Melnik02] L'approche de Johnson et al. est également à souligner. En effet, afin de se rapprocher le plus des conditions de croissance réelles, ils ont étudié un motif de 30 boîtes quantiques. Des états partiellement localisés dans la couche de mouillage, et des états de trous légers partiellement délocalisés sont simulés pour des boîtes quantiques InAs/GaAs. [Johnson03 -02] Ces résultats ont permis d'interpréter les résultats expérimentaux de Robinson et al. [Robinson00 -01 -99] Dans ces calculs, des conditions aux limites périodiques sont choisies, afin de mieux décrire les états de couche de mouillage qui ont une extension spatiale infinie. Cependant l'influence de la densité surfacique de boîtes quantiques (QDD) sur les propriétés électroniques des boîtes quantiques n'a pas été étudiée.

Pour décrire correctement le système {états localisés de boîtes quantiques (QD) ; états infiniment étendus de couche de mouillage (WL)}, nous proposons ici une nouvelle approche.[Bryant89] [Tkach00] Nous allons présenter la structure électronique calculée de manière extrêmement simple dans l'espace réciproque d'un super-réseau 2D de boîtes quantiques cylindriques InAs/InP sur une couche de mouillage. Le couplage électronique entre les boîtes quantiques et la couche de mouillage, et le couplage électronique entre les boîtes elles même sera ainsi étudié.

### 3.2.2 Principe du calcul dans l'espace réciproque

*Des calculs préliminaires dans l'espace réciproque ont été présentés dans la thèse de doctorat de C. Platz. [Platz04]*

#### 3.2.2.a Equation de Schrödinger pour la bande de conduction

Notre but est donc ici de décrire la bande de conduction de l'ensemble du système {QD+WL}. L'étude présentée ici est volontairement limitée à la bande de conduction, car si ils existent, les effets de couplage sont sensibles avant tout sur les électrons, au vu de la différence de masses effectives entre électrons et trous (mobilité plus grande pour les électrons). Plusieurs méthodes de calcul conventionnelles, comme les différences finies, sont basées sur l'utilisation d'une « boîte de calcul » permettant de définir une zone particulière de l'espace dans laquelle est minimisée l'énergie du système considéré.[Melnik02] [Robinson00-01-99] [Lee04] Les boîtes quantiques doivent être alors suffisamment éloignées des limites de la boîte de calcul. Ces conditions aux limites classiques ne permettent donc pas de rendre compte d'états délocalisés et infiniment étendus, pour des objets comme la couche de mouillage. Pour y remédier, une description dans l'espace réciproque 2D de notre système périodique est proposée.[Bryant89] [Tkach00] En développant les fonctions d'onde sur une base de fonctions d'onde planes 2D de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , il est possible assez facilement de décrire des états de continuum, et le couplage entre des états de WL et des états de QD. La transformée de Fourier (FT) de l'équation de Schrödinger de type  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  1 bande est ainsi résolue pour les états électroniques de la bande de conduction :

$$\langle \vec{k}' | -\frac{\hbar^2}{2} \vec{\nabla} \frac{1}{m^*(\vec{r})} \vec{\nabla} \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}} | \vec{k} \rangle + \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}} \langle \vec{k}' | V(\vec{r}) | \vec{k} \rangle = E \langle \vec{k}' | \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}} | \vec{k} \rangle$$

Le potentiel de confinement est égal à  $V_0 = 423$  meV dans tout le volume confinant, i.e. dans tout le volume composé d'InAs (QD et WL). Les autres parties de la structure (parties composées d'InP) ont un potentiel nul :  $V = 0$ . [Miska04] Dans cette approche simple, des masses anisotropes (verticalement et horizontalement) et inhomogènes (InAs et InP) sont choisies pour la partie cinétique du Hamiltonien.[MiskaJPC02] La FT du potentiel est calculée de manière analytique :  $V_{\vec{k},\vec{k}'} = \langle \vec{k}' | V(\vec{r}) | \vec{k} \rangle$ . Pour améliorer la convergence du calcul, la diagonalisation du Hamiltonien peut être réalisée numériquement, sur une base mixte de fonctions de Wannier localisées  $|\varphi_n(\vec{r})\rangle$  et d'ondes planes  $|\vec{k}\rangle$  :[Bryant89][Tkach00]

$$|\Psi(\vec{r})\rangle = \sum_n c_n |\varphi_n(\vec{r})\rangle + \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}} |\vec{k}\rangle$$

Les états localisés de Wannier sont des fonctions de type Bessel compatibles avec la symétrie  $C_{\infty v}$  des boîtes isolées.[Le Goff93]

### 3.2.2.b Utilisation d'un réseau périodique

Afin de résoudre l'équation de Schrödinger dans l'espace réciproque, de manière efficace et rapide, il est nécessaire de séparer les dimensions du problème. Une méthode de quadrature Gaussienne est utilisée pour résoudre le problème dans la direction z. Le problème considéré ici rend compte d'un réseau périodique de boîtes quantiques 2D dans le plan (x,y), comme indiqué sur la figure 3-5 (a). La zone de Brillouin associée à un réseau 2D carré est présentée sur la figure 3-5 (b), avec la zone irréductible associée, et les vallées et points particuliers. L'effet de réseau permet ainsi d'obtenir des courbes de dispersion dans l'espace réciproque (figure 3-5 (c)). Sur de telles courbes, les états « non dispersifs »  $E_0$  et  $E_1$  représentent les niveaux d'énergie 1S et 1P des états confinés des boîtes quantiques, et  $E_{WL}$  les états « dispersifs » 2D de couche de mouillage.

En réalité, des effets minibandes (élargissement des niveaux d'énergie) peuvent apparaître sur les états de boîtes quantiques (cf. encart de la figure 3-5 (c)), lorsque des effets de couplage entre les boîtes quantiques sont présents. Ces effets de minibandes dépendent essentiellement de la périodicité du réseau envisagée (i.e. de la distance inter-QDs) et peu de la symétrie du réseau. Dans un cas réel, les boîtes quantiques ne sont pas toutes similaires, et les niveaux d'énergie d'une boîte quantique à l'autre sont différents, ce qui doit diminuer les effets de minibandes).



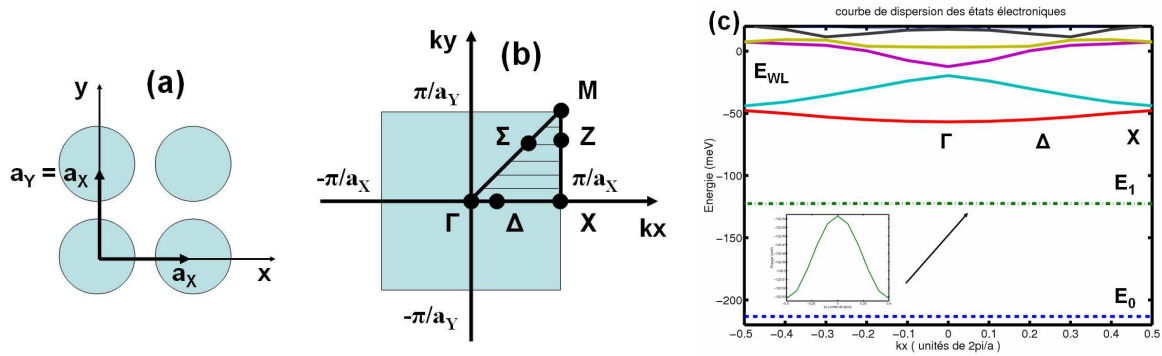


Figure 3-5 : Réseau de boîtes quantiques cylindriques vu du dessus (a), et représentation du réseau dans l'espace réciproque (b), avec sa zone de Brillouin, et sa zone irréductible. Des courbes de dispersion sont ainsi obtenues dans l'espace réciproque (c), pour la bande de conduction. L'encart de la figure est un zoom sur la dispersion du niveau  $E_1$  montrant un faible effet de mini-bande.

### 3.2.2.c Application à un réseau hexagonal de boîtes cylindriques

Les calculs sont réalisés sur la bande de conduction de boîtes quantiques InAs/InP (311)B. Dans une première approche, ces boîtes sont considérées comme des objets cylindriques, (figure 3-6).

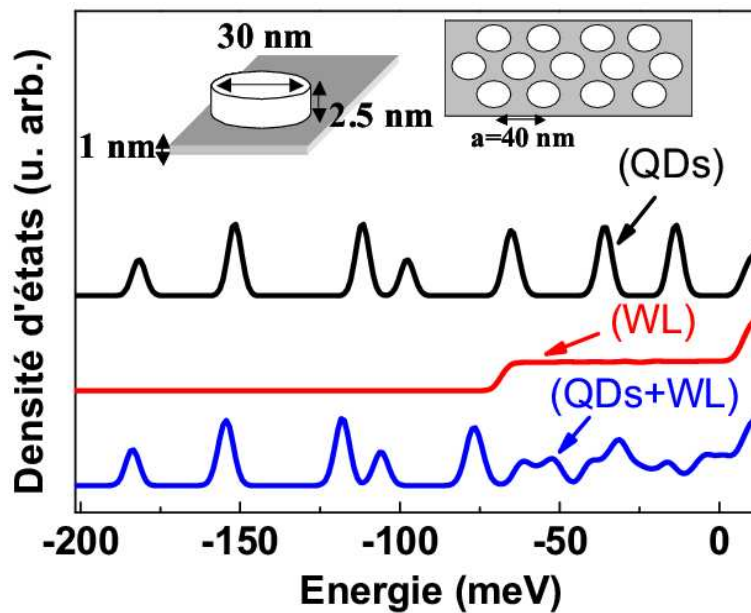


Figure 3-6 : Densité d'états électroniques d'un super-réseau hexagonal de boîtes quantiques (QDs), d'une couche de mouillage (WL) et d'un super-réseau de boîtes quantiques sur une couche de mouillage (QD + WL), avec une compacité de 51 %. La différence entre les systèmes  $\{QDs\} + \{WL\}$  et  $\{QDs + WL\}$  est une mise en évidence des effets de couplage. L'encart de la figure montre les boîtes quantiques, la couche de mouillage et leur dimensions.

Cette approximation de boîtes cylindriques permet de simplifier les calculs, et de bien distinguer les effets de réseau sans avoir en plus d'éventuels effets liés à l'anisotropie des

boîtes quantiques. Des essais ont été faits pour traiter le cas des bâtonnets quantiques, et les résultats de ces calculs sont similaires en ce qui concerne la description générale du couplage électronique. Une étude plus approfondie de l'effet de l'anisotropie est nécessaire, et en particulier pour les boîtes que nous avons étudiées expérimentalement (figure 3-1).

Les rayons des boîtes quantiques choisies sont égaux à  $R = 15$  nm, et ils dépassent de la couche de mouillage de  $L = 2.5$  nm. L'épaisseur de la WL (Hw) est prise égale à 1 nm,[Paranthoen03] portant ainsi la hauteur totale de confinement dans la boîte quantique à 3.5 nm. L'inclusion des états de Wannier dans la base de fonctions d'onde permet d'avoir une meilleure convergence des calculs, pour décrire le système {QDs + WL}, étant donnée la géométrie du problème considérée. Les calculs sont appliqués à un réseau de boîtes hexagonal 2D, où les QDs sont situées aux noeuds du réseau considéré (cf. Figure III-6). Le facteur de compacité  $C$  (rapport entre la surface couverte par les QDs, et la surface totale), pour un réseau hexagonal est égal à :  $C = \frac{2\pi R^2}{\sqrt{3}a^2}$ , où  $a$  est le paramètre du réseau. Le réseau hexagonal est le réseau 2D permettant d'obtenir la plus forte compacité, ce qui a justifié notre choix pour cette première étude.

La FT du potentiel pour ce réseau de boîtes est égale à :

$$V_{\vec{k},\vec{k}'_{QD}} = -V_0 \frac{2\pi R^2 L}{\sqrt{3}a^2} j_1 c \left( \frac{|\vec{G}_t - \vec{G}'_t| R}{a} \right) \times \text{sinc} \left( \frac{|k_z - k'_z| L}{2} \right) e^{-ik_z \left[ \frac{(L+Hw)}{2} \right]}$$

avec  $j_1 c(x) = J_1(2\pi x)/\pi x$  et  $\text{sinc}(x) = \sin(x)/x$  où  $J_1$  est la fonction de Bessel du premier ordre,  $\vec{G}_t$  est un vecteur du réseau réciproque dans le plan (x,y), et  $k_z$  est la projection du vecteur d'onde  $\vec{k}$  suivant l'axe z. La FT du potentiel pour la couche de mouillage est égale à :

$$V_{\vec{k},\vec{k}'_{WL}} = -V_0 Hw \text{sinc} \left( |k_z - k'_z| Hw/2 \right) \delta(\vec{G}_t - \vec{G}'_t)$$

L'expression finale de la FT du potentiel pour la structure complète est la somme des deux potentiels :

$$V_{\vec{k},\vec{k}'} = V_{\vec{k},\vec{k}'_{QD}} + V_{\vec{k},\vec{k}'_{WL}}$$

Il faut noter que si des masses effectives différentes sont considérées pour les boîtes (InAs) et la barrière (InP), une contribution supplémentaire pour le potentiel de confinement doit être ajoutée. Cette contribution possède aussi une FT analytique.

### 3.2.3 Principaux résultats sur le couplage

#### 3.2.3.a Effet du couplage sur les états de boîte quantique

Les densités d'états électroniques pour les QDs seules (avec dans ce cas  $L = 3.5$  nm), la WL seule, et l'association des deux QDs + WL, sont reportés sur la figure 3-6, pour un paramètre du réseau  $a = 40$  nm (i.e. un facteur de compacité de  $C = 51$  %). Un profil Gaussien de largeur à mi-hauteur 5 meV est ajouté pour convoluer artificiellement les spectres calculés, afin de rendre compte de l'élargissement inhomogène. La densité d'états du système global {QDs + WL} est différente de la somme des densités d'états des systèmes indépendants {QDs} (0D), et {WL} (2D), et plus particulièrement dans la gamme d'énergie des niveaux confinés [-100 ;0] meV. La modification des spectres en énergie démontre clairement les effets de couplage QDs/WL. La densité d'état 2D de la WL devient ainsi fragmentée. Il n'est pas possible de séparer les contributions des QDs et de la WL. Le système {QDs + WL} doit donc être considéré comme un système unique, ne pouvant être dissocié. Dans la gamme d'énergie [-200 ; -100] meV, la densité d'états 0D des QDs est par contre similaire au premier ordre pour les systèmes {QDs} et {QDs + WL}. Un petit décalage en énergie (inférieur à 10 meV pour les premiers états confinés) est la seule conséquence des effets de couplage.

Cet effet de couplage est fortement dépendant de la densité surfacique de boîtes (QDD). Le couplage entre les boîtes est logiquement fortement augmenté pour un grand facteur de compacité  $C$ , i. e. pour une haute QDD. Afin d'estimer l'influence de la couche de mouillage sur ce couplage, il est possible de tracer l'évolution des niveaux d'énergie des boîtes quantiques avec ou sans la WL, en fonction du facteur de compacité  $C$ . La figure 3-7 représente cette variation pour les niveaux d'énergie 1S, 1P et 1D dans les boîtes quantiques.

Dans la limite des boîtes isolées (infiniment loin les unes des autres, i. e.  $C = 0$ ), les états 1P et 1D sont dégénérés à cause de la symétrie cylindrique. La levée de dégénérescence de ces états est donc une conséquence du couplage latéral entre boîtes quantiques.

Pour une faible QDD, i.e. pour une valeur de  $C$  dans la gamme [0 ; 64] % (Figure 3-7, domaine (a)), on peut remarquer une différence en énergie entre les deux systèmes considérés : {QDs + WL} et {QDs}. [Melnik02] Cette différence est intrinsèquement liée à la différence de confinement dans les structures considérées.[Lee04] En présence d'une couche de mouillage, la fonction d'onde électronique dans les boîtes quantiques peut alors s'étendre plus facilement dans la barrière (de plus faible énergie), ce qui permet de stabiliser le système par rapport à la situation initiale. Cet effet est d'autant plus important que les niveaux

d'énergie considérés sont hauts (1P, 1D ou supérieurs..), à cause de la plus grande extension spatiale des fonctions d'onde associées. Nos calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  huit-bandes prédisent le même effet (chapitre 1).

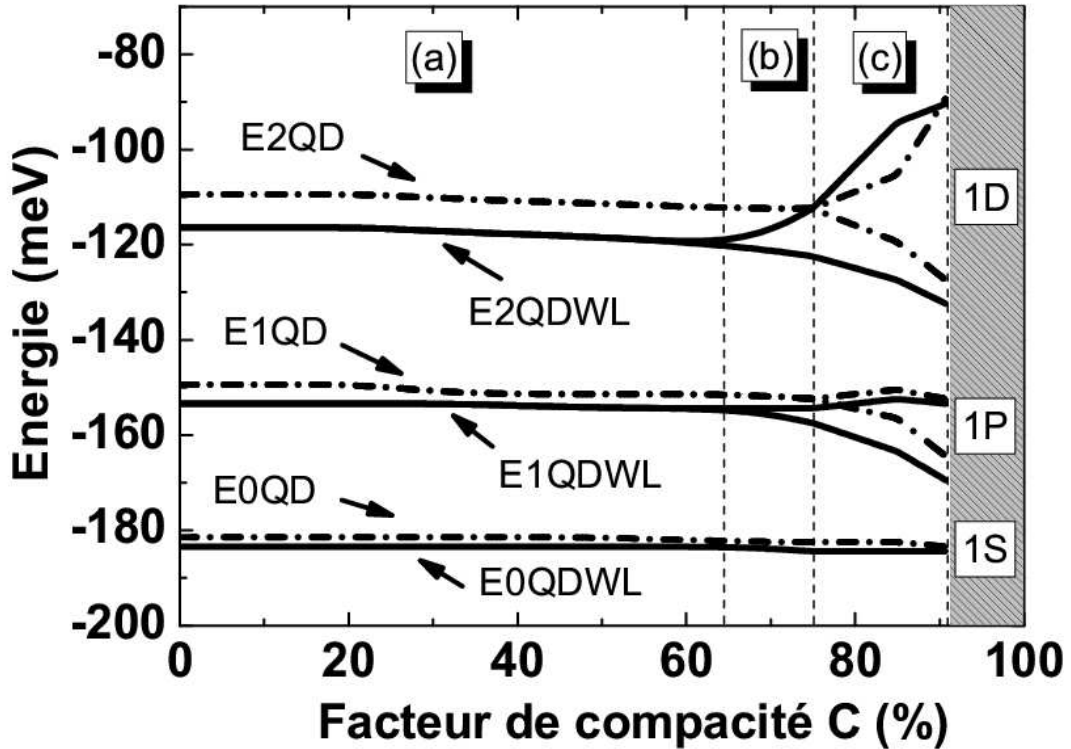


Figure 3-7: Comparaison entre les systèmes {QDs + WL} et {QDs}, pour les énergies des niveaux 1S (E0QD), 1P (E1QD) et 1D (E2QD), en fonction du facteur de compacité. Nous avons défini 3 zones de couplage : la zone de faible couplage QD/WL (a), la zone de couplage inter-QD assisté par la WL (WLaiQD) (b) et la zone de couplage direct entre boîtes quantiques (c).

Dans le domaine (a), le couplage QD/WL est clairement visible sur les états de plus haute énergie (cf. figure 3-6), mais le couplage inter-QDs est négligeable (pas de levée de dégénérescence, ou d'effets mini-bandes).

Pour un facteur de compacité compris entre  $C = 64\%$  et  $C = 75\%$  [Figure 3-7, domaine (b)], i.e. pour des densités comprises entre  $8.4 \times 10^{10}$  et  $1.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , qui n'est pas la plus haute valeur obtenue expérimentalement en densités surfaciques de boîtes quantiques sur substrat InP :  $1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , [Jang04] [CaroffJJAP05] une nette différence est observée entre les systèmes {QDs + WL} et {QDs}. La dégénérescence des états P et D n'est levée (à cause du couplage inter-QDs) que dans le cas du système {QDs + WL}, et non dans le cas du système {QDs}. La figure 3-8 représente les densités d'états électroniques pour les systèmes {QDs + WL} et {QDs}, pour un facteur de compacité de  $75\%$  ( $1.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ). L'état 1S ne change pas sensiblement. L'état 1P, qui est deux fois dégénéré pour des boîtes isolées, devient

légèrement non dégénéré en présence de la couche de mouillage (le pic associé à ce niveau d'énergie s'élargit, et baisse en intensité). Ceci est la première preuve du rôle important de la couche de mouillage dans le couplage inter-QDs. Enfin, une forte levée de dégénérescence est observée sur l'état 1D également dégénéré deux fois pour des boîtes isolées, en présence de la couche de mouillage.

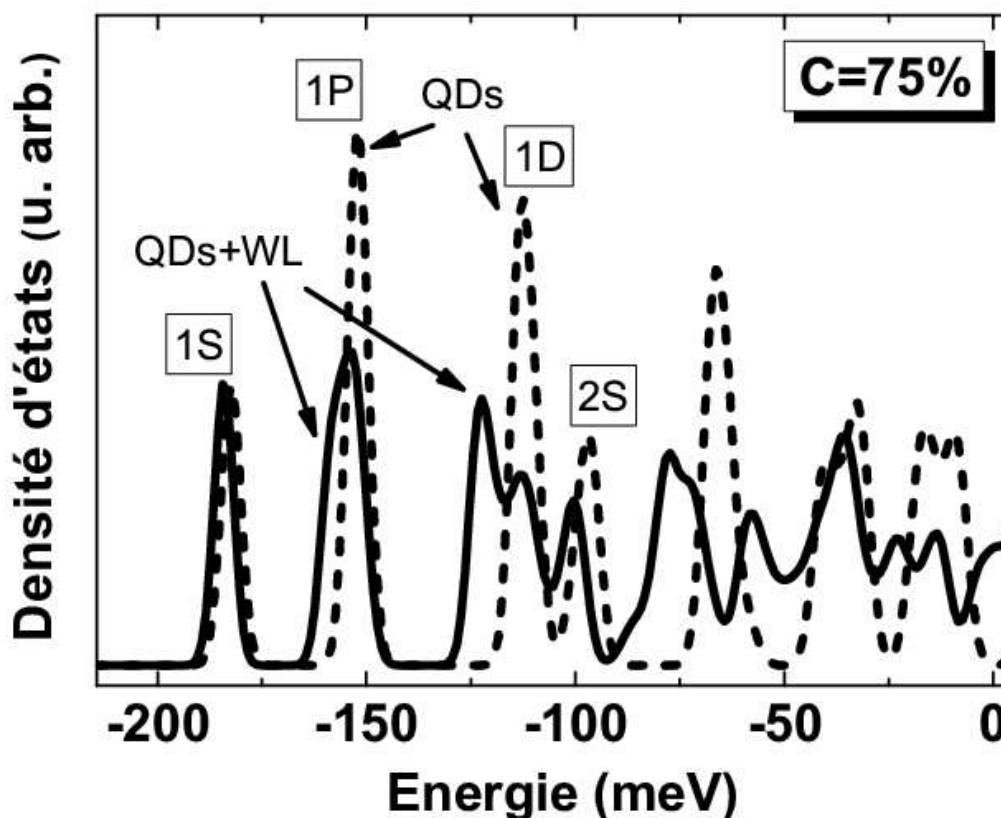


Figure 3-8 : Densités d'états des systèmes {QDs + WL} et {QDs}, pour un facteur de compacité de  $C = 75\%$ . La figure montre l'influence de la WL sur la levée de dégénérescence et les effets de mini-bandes sur les niveaux d'énergie.

Sur la figure 3-8, l'amplitude de la densité d'états associée au niveau 2S diminue en présence de la WL. Cette diminution de l'amplitude est en fait due à un élargissement spectral du niveau d'énergie, c'est l'effet de mini-bande. Ces effets de mini-bandes sont encore plus visibles sur les états de plus hautes énergies. Les états excités des QDs perdent alors leur caractère 0D. La densité d'états est très différente de celle du système {QDs}. C'est une deuxième démonstration du rôle prépondérant de la couche de mouillage dans le couplage inter-QDs. Sur la figure 3-7, domaine (b), la couche de mouillage augmente fortement le couplage initialement très faible entre les boîtes quantiques. C'est ce phénomène que nous avons appelé couplage inter-QDs assisté par la WL (WLaiQD) dans la publication [CornetPRB05].

Pour un facteur de compacité de  $C = 75 \%$  à  $C = 91 \%$  [Figure III-7, domaine (c)] ( $91 \%$  est le facteur de compacité maximum pour un super-réseau 2D hexagonal de boîtes quantiques), une levée de dégénérescence des niveaux d'énergie a lieu quelque soit le système envisagé, {QDs + WL} ou {QDs}. Dans cette configuration, chaque boîte est très proche de ses voisins. Ce sont des conditions de couplage fort. Dans le domaine (c), il y a donc à la fois du couplage direct inter-QDs, et du couplage de type WLaiQD. Pour  $C = 91 \%$ , la différence pour les densités d'états entre les systèmes {QDs + WL} et {QDs} est alors très faible. Chaque boîte est en contact direct avec ses voisines. Le couplage direct inter-QDs est donc le phénomène dominant, et la couche de mouillage n'a plus d'effet prépondérant sur la structure électronique. De telles densités ( $> 1.6.10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ) de boîtes quantiques n'ont, à notre connaissance, pas été atteintes en pratique dans le système InAs/InP.

### 3.2.3.b *Effet du couplage sur les états de couche de mouillage*

Au vu de ce qui précède, il est clair que la WL augmente le couplage latéral inter-QD, en modifiant la densité des états électroniques des boîtes quantiques. Mais il est maintenant également possible d'étudier l'influence du couplage sur les états de couche de mouillage. La figure 3-6 montre une modification de la densité d'états de la WL, dans la gamme d'énergie [-75 ;0] meV. Cet effet peut être corrélé avec les spectres d'absorption expérimentaux (figure 2-15),[CornetAPL04] et les spectres de photoluminescence résolue en temps,[MiskaSST02] [Miska03b] qui montrent l'existence d'états excités de couche de mouillage. Nous proposons ainsi d'interpréter la structuration des transitions optiques de couche de mouillage, comme une conséquence du couplage inter-QD assisté par la WL. Dans la vision traditionnelle (non couplée) des boîtes quantiques, les états de boîtes quantiques ont un caractère purement 0D, et les états de couche de mouillage, un caractère purement 2D. D'après nos calculs, les états de QD et de WL ne sont pas clairement distincts sur les spectres obtenus. Notre hypothèse, d'après les résultats des calculs, est de considérer que ces états de hautes énergies n'ont ni un caractère purement 0D, ni un caractère purement 2D. Ce sont des états hybrides à caractère 0D/2D. En conséquence, les fonctions d'onde électronique dans la gamme d'énergie [-75 ;0] meV doivent être localisées en partie dans les boîtes quantiques, et en partie dans la couche de mouillage. Une fonction d'onde électronique dans l'espace réel correspondant à l'un des états de plus basse énergie de la couche de mouillage peut être visualisée (figure 3-9), en utilisant la FT des états propres issus du calcul pour un super-réseau 2D hexagonal de boîtes quantiques cylindriques. Les densités de probabilité électronique d'un état de WL sont

calculées pour une configuration non couplée ( $C = 8\%$ ) et une configuration couplée ( $C = 75\%$ ), et représentées dans le plan  $(x,y)$ .

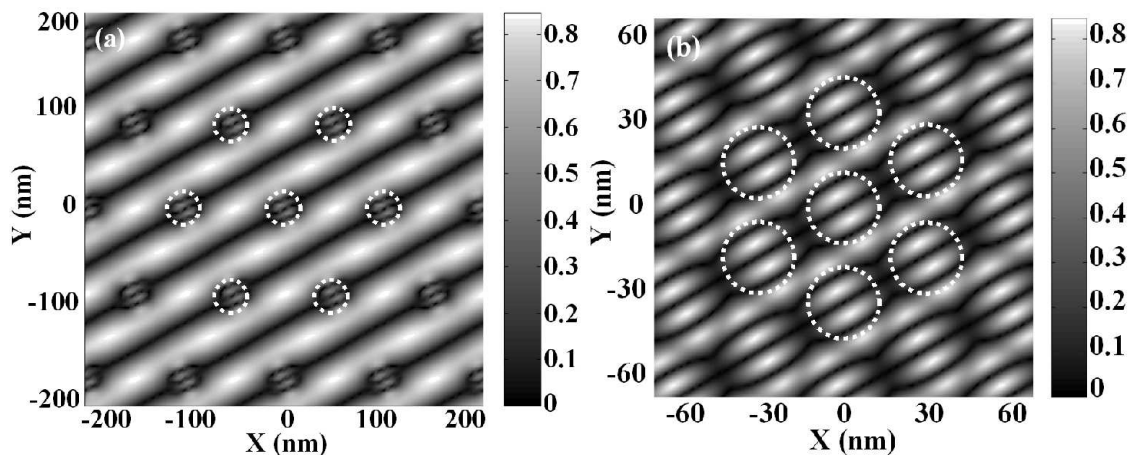


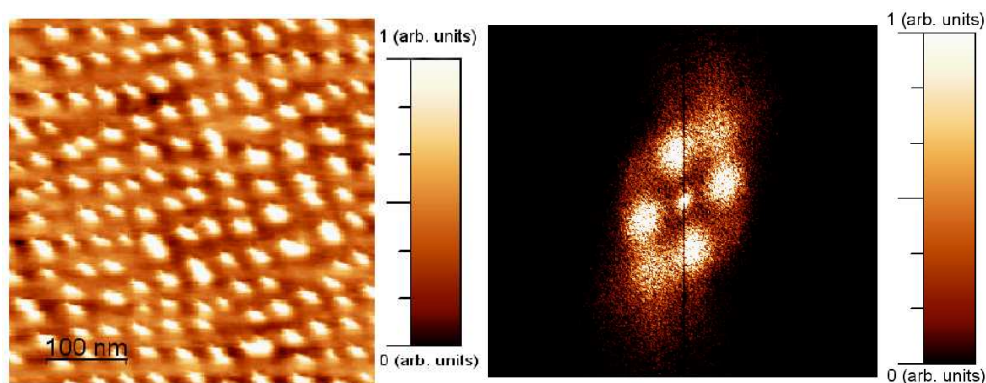
Figure 3-9 : Densités de probabilité (unité arbitraire) d'un état de couche de mouillage pour un super-réseau 2D hexagonal de boîtes quantiques cylindriques sur une couche de mouillage (WL). Cet état de WL est représenté pour une situation découplée (a), et couplée (b). Les états de couche de mouillage perdent leur caractère 2D avec le couplage.

Les cercles blancs représentent les positions des boîtes quantiques cylindriques dans le plan  $(x,y)$ . Les zones blanches représentent les maxima de densité de probabilité (0.84 en unités arbitraires). Dans la configuration « non-couplée », la densité électronique est localisée en majeure partie dans la couche de mouillage (à l'extérieur des QDs). Dans la situation « couplée », une grande partie de la fonction d'onde s'étend dans la région définie par la boîte quantique. Il y a même un maximum local de la densité dans cette région. De plus, dans la configuration non couplée, la fonction d'onde électronique est infiniment délocalisée suivant un axe incliné dans le plan  $(x,y)$ . Dans des conditions de couplage suffisamment fort, cet état de WL semble remplir préférentiellement certaines zones du plan  $(x,y)$ , conférant un caractère « pseudo-0D » à la fonction d'onde. Ceci confirme la nature hybride des états de couche de mouillage 0D/2D pour des fortes compacités. Le même type d'analyse sur l'ensemble du spectre en énergie montre que les états de QDs les plus profonds restent bien localisés (surtout l'état 1S), même dans des conditions de couplage assez fort. D'un autre côté, les états de plus basse énergie de la WL, perdent leur caractère 2D, et les états de plus haute énergie de QDs perdent leur caractère 0D. Ceci explique ainsi pourquoi la WL contribue à structurer la densité d'états électroniques lorsque le couplage augmente.

### 3.2.4 Application à des réseaux réels de boîtes quantiques

Toutes les valeurs déterminées ici pour les densités surfaciques de boîtes quantiques et les facteurs de compacité ne peuvent pas être comparés précisément à celles déterminées dans la première partie de ce chapitre 3. En effet, le logiciel comportant l’outil statistique permettant de traiter une image AFM dans son ensemble n’était pas disponible au laboratoire au moment de cette étude. Ainsi, les densités et les facteurs de compacité ont été déterminés à partir d’une taille moyenne de boîtes quantiques, et d’une distance inter-boîtes moyenne, en supposant que les boîtes forment un réseau carré périodique. Ceci a pour conséquence de légèrement surévaluer les densités et les facteurs de compacité présentés ici.

Du point de vue des composants, le couplage peut avoir un effet positif sur les taux de capture de la barrière vers la boîte quantique, et sur la redistribution des porteurs entre les boîtes quantiques, à condition de conserver un caractère atomique sur l’état fondamental de QDs.[Ducommun04] Cet effet est attendu pour une forte densité de boîtes quantiques. Une telle densité, comme nous l’avons montré précédemment, est attendue lorsque le quaternaire Q1.18 est utilisé avec un faible flux d’As pour faire croître les boîtes quantiques sur substrat (311)B.[CaroffJCG05b] [CaroffJJAP05] La figure 3-10 (a) montre une image AFM caractéristique de ces boîtes quantiques InAs/InGaAsP (cf. première partie de ce chapitre).



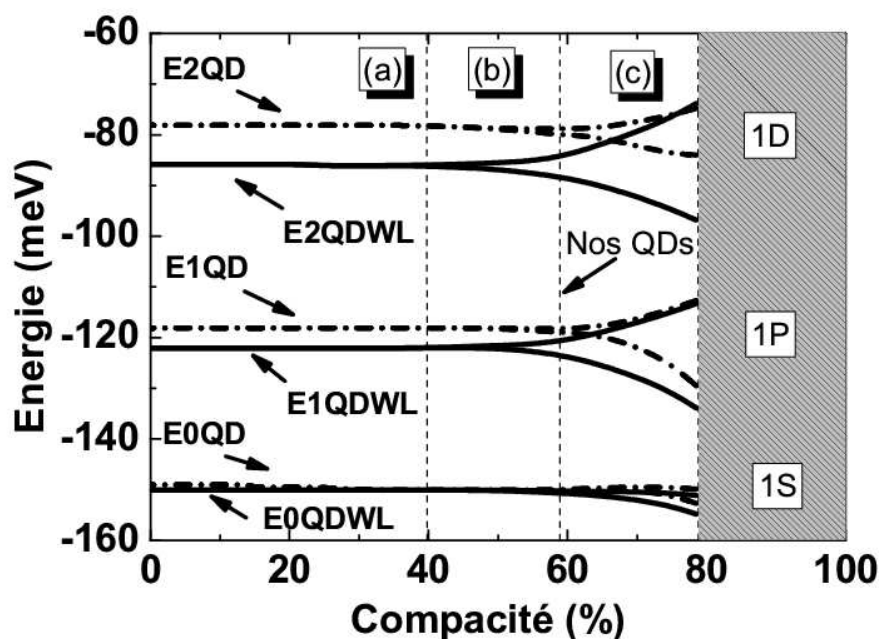
*Figure 3-10 : Images AFM ( $0.5 \times 0.5$ )  $\mu\text{m}^2$  de boîtes quantiques InAs/InGaAsP, montrant un réseau carré de boîtes quantiques en forte densité en première approximation (a). La 2D-FT de cet échantillon est également présentée pour justifier la modélisation du système par un réseau carré (b).*

La densité de boîtes quantiques est ici supposée égale à  $8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , et le rayon moyen est d’environ 15 nm sur cet échantillon. Les boîtes quantiques sont organisées selon un réseau 2D (presque) carré (fig. 3-10 (b)). Un réseau 2D carré de boîtes quantiques a donc été aussi considéré pour le calcul de la structure électronique. Pour une telle structure, le potentiel de confinement est maintenant égal à  $V_0 = 391 \text{ meV}$  dans tout le volume de confinement pour



simuler le remplacement d'InP par l'alliage quaternaire Q1.18 dans la barrière. Le facteur de compacité  $C$  est égal à  $C = \pi R^2/a^2$  (réseau carré), avec  $a$ , périodicité du réseau. La valeur de compacité maximale ( $C = 78\%$ ) est plus faible que dans le cas hexagonal. La figure 3-11 montre l'évolution des niveaux d'énergie électroniques 1S, 1P et 1D en fonction du facteur de compacité avec ou sans couche de mouillage.

Les effets de couplage apparaissent alors pour un facteur de compacité plus bas que dans le réseau hexagonal étudié précédemment (la distance inter-boîte jouant un rôle important dans ces effets de couplage).



*Figure 3-11 : Evolution des niveaux d'énergie 1S, 1P, et 1D dans les systèmes {QDs + WL} et {QDs} en fonction du facteur de compacité d'un réseau carré de boîtes quantiques InAs/InGaAsP. Les effets de couplage faible (a), du couplage inter-QDs assisté par la WL (b) et du couplage fort inter-QDs (c) sont montrés. Les calculs prédisent un couplage assisté par la WL pour l'échantillon de la fig. 3-10.*

Une flèche indique que nos boîtes quantiques ont un facteur de compacité de 59 %, ce qui est à la limite entre les domaines (b) (couplage inter-QDs assisté par la WL) et (c) (couplage inter-QDs direct). D'après ces calculs, un effet de mini-bande dû à la présence de la WL est attendu pour la structure électronique (états de plus haute énergie). La partie suivante présente ainsi des résultats expérimentaux venant à l'appui de ce calcul pour mettre en évidence le couplage latéral, et sonder l'impact de ce couplage sur les composants lasers à boîtes quantiques.

Une méthode de calcul originale dans l'espace réciproque a donc été développée dans cette partie, et a permis de rendre compte de manière simple des phénomènes de couplage entre boîtes quantiques, en présence d'une couche de mouillage. Les phénomènes de couplage indirect, censés apparaître sur les échantillons de hautes densités disponibles au laboratoire, doivent avoir une signature optique correspondant à des effets de mini-bandes sur les états excités de boîtes quantiques (visibles par photoluminescence), ou de délocalisation de la fonction d'onde (visibles par magnéto-photoluminescence). La prochaine partie présente ainsi une série de mesures de magnéto-photoluminescence, de photo-luminescence, et d'électro-luminescence, réalisés sur des échantillons fortes densités, avec comme objectif de démontrer qu'il peut exister du couplage latéral entre boîtes quantiques, et que ce couplage peut avoir un rôle positif sur les composants à boîtes quantiques.

### **3.3 Mise en évidence expérimentale, conséquences sur la redistribution des porteurs**

Cette partie décrit une part des travaux réalisés à l'aide de la magnéto-photoluminescence à Leuven (Belgique), couplés à des études expérimentales de photo-luminescence et d'électro-luminescence faites au laboratoire dont les principaux résultats sont publiés dans l'article [CornetPRB06b].

#### **3.3.1 Le couplage latéral des boîtes quantiques par l'expérience**

##### *3.3.1.a Motivations et cadre général de l'étude*

Classiquement, plusieurs études ont été réalisées sur des boîtes quantiques uniques, [Varoutsis05] [Baier04] ou sur des plans des boîtes quantiques indépendants, pour les applications aux composants optoélectroniques. [Rastelli04] Plus récemment, des « doubles boîtes quantiques » (deux boîtes quantiques couplées latéralement) ont été développées afin de réaliser du calcul quantique. D'un autre côté, des boîtes couplées verticalement ont été utilisées afin d'améliorer les caractéristiques des composants lasers à boîtes quantique, [Sugawara99] [Miska05] et également comme point de départ pour le calcul quantique. Dans tous ces composants, le problème de l'injection des porteurs est crucial. Le principal défi est d'amener le maximum de porteurs dans les boîtes quantiques, avec le minimum d'énergie, ce qui implique qu'il faut atteindre une redistribution efficace des porteurs de charge entre les boîtes. Actuellement, la redistribution des porteurs de charge a été exclusivement discutée en terme de redistribution thermique entre les boîtes, en passant par la

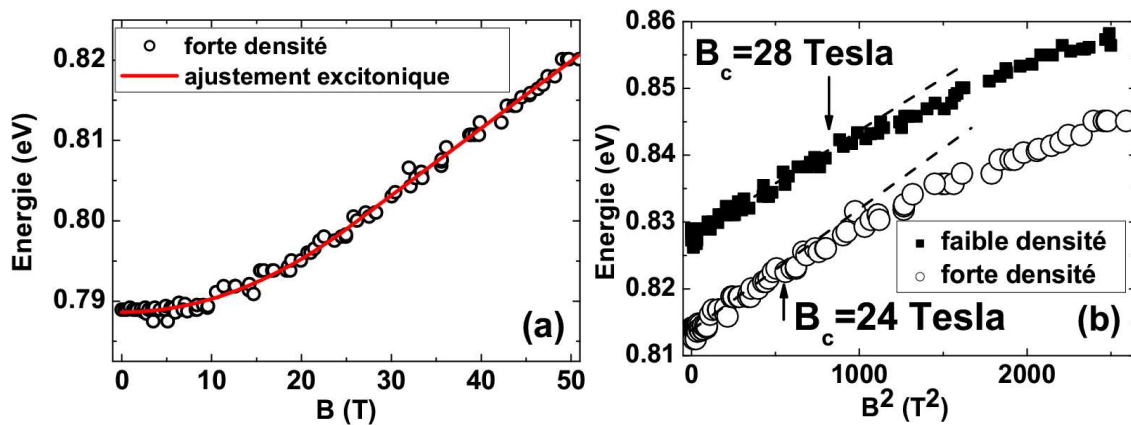
barrière (WL ou matrice de Q1.18). [Markus05] [Grundmann00] Dans le système classiquement étudié InAs/GaAs, ceci est raisonnable, car l'épaisseur de la WL est beaucoup plus faible que la hauteur des boîtes quantiques, laissant ainsi une énergie de confinement beaucoup plus grande, et les états de couche de mouillage séparés de  $\sim 200$  meV de la transition fondamentale de boîtes quantiques. L'effet tunnel des porteurs est le plus souvent négligé dans les calculs.[Markus05] [Grundmann00] Cependant, dans le système InAs/InP, la hauteur typique de boîtes quantiques émettant à  $1.55 \mu\text{m}$  est d'environ 2-3 nm, alors que l'épaisseur typique de la couche de mouillage est de 1 nm. Les états de couche de mouillage sont énergétiquement plus proches dans un tel système ( $\sim 140$  meV), et les effets du couplage latéral de boîtes quantiques doivent être considérés, comme le montrent les calculs réalisés dans la partie précédente. Il est à remarquer que cette méthode de calcul a été développée parallèlement par Gunawan et al.[Gunawan05] et notre groupe.[CornetPRB05] de façon indépendante. Les calculs réalisés dans la partie précédente peuvent donc se résumer comme suit : il existe trois différents régimes de couplage, (a) le régime de faible couplage (les fonctions d'onde n'interagissent pas entre elles), (b) le régime de couplage intermédiaire (couplage assisté par la WL), où seuls les états de plus haute énergie sont couplés, et voient l'apparition de mini-bandes, et de délocalisation de la fonction d'onde, (c) le régime de couplage fort, où les boîtes se touchent quasiment, et les fonctions d'onde sur tous les niveaux d'énergie sont couplées directement.

### *3.3.1.b La magnéto-photoluminescence et le couplage*

Une des façons de sonder l'extension latérale spatiale de la fonction d'onde dans la boîte quantique, est de réaliser des mesures de photoluminescence (PL), sous haut champ magnétique, appliqué suivant la direction de croissance. Les expériences de magnéto-photoluminescence ont été réalisées dans les mêmes conditions que décrites dans le chapitre 2.[Hayne04] [Raymond04] Le traitement des mesures est réalisé avec le modèle excitonique décrit dans le chapitre 2. Les mesures sont réalisées sur deux échantillons contenant respectivement un plan de boîtes quantiques en basse densité, et un plan de boîtes quantiques en forte densité (cf. figure 3-12 (a)), émettant autour de 0.8 eV à basse température. La figure 3-12 ci-dessous montre l'évolution des pics de luminescence en fonction du champ magnétique (a), et du champ magnétique au carré (b).

Comme nous ne prenons en compte que l'évolution de la transition fondamentale, et que nous ne considérons pas les variations d'intensité de luminescence, les effets de remplissage des boîtes par les porteurs de charge qui dépendent de la densité de boîtes quantiques ne sont

pas considérés ici.[Sidor06] Ainsi (cf. chapitre 2), les diamètres de Bohr de l'exciton déduits des mesures sont respectivement égaux à 13 nm pour l'échantillon à faible densité de boîtes (QDD), et 15 nm pour l'échantillon avec les fortes QDD. En prenant l'échantillon à faible QDD comme référence, il est possible de définir un coefficient de confinement standard pour ces boîtes quantiques :  $\Gamma_0 = \frac{D_{X0}}{D_{D0}} = 0.3421$ , où  $D_{X0} = 13$  nm et  $D_{D0} = 38$  nm sont respectivement les diamètres de Bohr des excitons, et les diamètres de boîtes mesurés par AFM.



*Figure 3-12 : (a) Evolution du pic de luminescence en fonction du champ magnétique appliqué suivant la direction de croissance pour l'échantillon à forte densité de boîtes quantiques, avec sa courbe d'ajustement excitonique. (b) Evolution du pic de luminescence en fonction du carré du champ magnétique pour les échantillons forte densité et faible densité (un décalage artificiel de la courbe forte densité de 20 meV a été introduit pour la présentation). Le champ critique de transition entre les régimes linéaires et non-linéaires est indiqué par des flèches.*

A partir des mesures AFM présentées dans la figure 3-2, il est ainsi possible de calculer le coefficient de confinement « couplé » défini par  $\Gamma_C = \frac{D_{XC}}{D_{DC}} = 0.5 = 1.5 \Gamma_0$ , où  $D_{XC} = 15$  nm et  $D_{DC} = 30$  nm sont respectivement les diamètres de Bohr de l'exciton, et les diamètres mesurés par AFM de nos boîtes quantiques pour l'échantillon à forte QDD. Ce résultat montre que la fonction d'onde est de même dimension ou même s'étale un peu plus pour l'échantillon à forte QDD, alors que la taille des boîtes est plus petite.

Dans un régime de confinement fort, [Maes04b] [Bimberg98] cette observation pourrait être expliquée par une extension de la fonction d'onde hors de la boîte quantique. Dans le système InAs/InP, Maes et al. [Maes04b] ont montré que le confinement est faible, quand la dimension typique des nanostructures considérées est plus grande que 8 monocouches

atomiques (environ 2.5 nm). L'augmentation de la taille des nanostructures entraîne alors un accroissement de l'extension spatiale de la fonction d'onde. Au contraire, si le confinement est fort, i.e. quand la dimension typique des nanostructures considérées est plus petite que 8 monocouches atomiques, une réduction de la taille caractéristique de la nanostructure entraîne un accroissement de l'extension spatiale de la fonction d'onde. Ici, si l'on applique ces considérations à notre étude, une dimension latérale typique de nos boîtes quantiques d'environ 30 nm implique que nous sommes latéralement en régime de confinement faible et loin du régime de confinement fort. Ceci nous permet plutôt d'interpréter la délocalisation de la fonction d'onde de l'exciton comme une conséquence directe du couplage latéral entre les boîtes quantiques, comme décrit précédemment dans la partie 2 de ce chapitre.[CornetPRB05] Les états excités de nos boîtes quantiques ne peuvent être sondés avec le montage expérimental de magnéto-photoluminescence, à la longueur d'onde de pompe disponible, l'échantillon brûle avant que nous puissions atteindre des densités de porteurs suffisantes. Cependant, des mesures de photoluminescence en puissance réalisées au laboratoire permettent de caractériser les transition excitées des boîtes quantiques.

### 3.3.1.c *Photoluminescence sous haute puissance d'excitation*

Des expériences de photoluminescence polarisée sous haute puissance de pompe ont donc été réalisées sur deux échantillons InAs/Q1.18/Q1.18 à faible (échantillon C' du chapitre 2) et forte QDD, émettant à 0.8 eV à température ambiante. La puissance de pompe sur les échantillons est utilisée à son maximum :  $170 \text{ kW.cm}^{-2}$ . Le but de cette expérience est ici de déterminer les transitions fondamentales et excitées avec une bonne précision, plutôt que d'étudier le remplissage des boîtes quantiques en fonction de la puissance du laser de pompe, sur les échantillons à faible et forte QDD. Cette étude pourrait d'ailleurs être menée ultérieurement au laboratoire. De plus, la forme anisotrope des boîtes quantiques entraîne une dépendance en polarisation de la photoluminescence (cf. partie 1). En effet, dans de telles boîtes quantiques anisotropes, les fonctions d'onde doivent être alignées avec un maximum d'extension spatiale suivant la direction  $[-2 \ 3 \ 3]$ , et un minimum d'extension spatiale suivant  $[0 \ 1 \ -1]$ . En considérant toutefois que l'état fondamental fortement localisé a une symétrie (type 1S) qui s'écarte peu de la symétrie  $C_{\infty v}$  présentée au chapitre 1, il doit être assez insensible à la polarisation. D'un autre côté, pour les états excités de type 1P, une levée de dégénérescence est attendue (cf. chapitre 1). Ces états sont supposés être très sensibles à la polarisation : la luminescence d'un des états excités doit avoir une force d'oscillateur plus grande pour un faisceau polarisé suivant la direction  $[0 \ 1 \ -1]$  ou  $[-2 \ 3 \ 3]$ . La figure 3-13

montre les spectres de photoluminescence polarisés suivant les directions  $[-2\ 3\ 3]$  et  $[0\ 1\ -1]$  pour les faibles (a) et fortes (b) densités. Ces spectres sont normalisés par rapport au maximum d'intensité de la transition fondamentale. En considérant la transition  $E_2$  précédemment définie, un minimum d'intensité est alors observé suivant la direction  $[0\ 1\ -1]$ , et un maximum suivant  $[-2\ 3\ 3]$ .

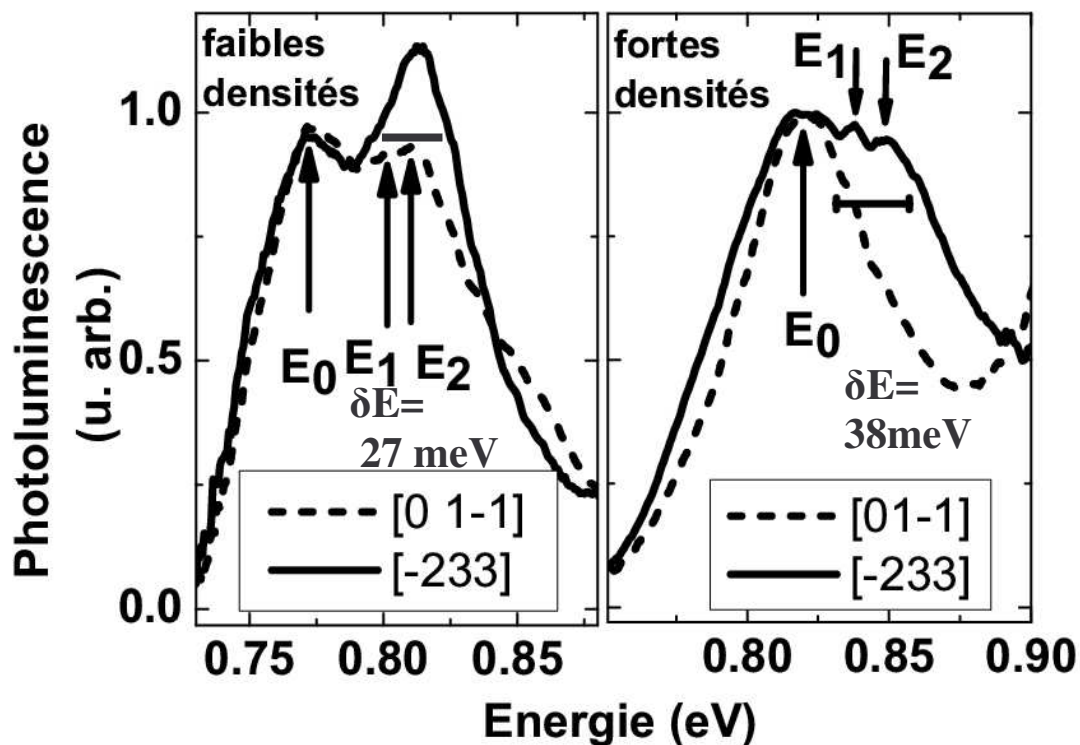


Figure 3-13 : Dépendance en polarisation de la photoluminescence sous forte puissance d'excitation ( $170\text{ kW.cm}^{-2}$ ). L'échantillon basse densité montre un écart entre transition fondamentale et excitée égal à  $\Delta E = 41\text{ meV}$ , alors que l'échantillon avec de fortes densités montre un écart moyen égal à  $\Delta E = 23\text{ meV}$ , et un effet mini-bande.

La transition excitée  $E_1$  n'est pas clairement identifiable, et en particulier pour l'échantillon à faible densité. La transition excitée  $E_2$  est partiellement polarisée suivant la direction  $[-2\ 3\ 3]$ . Pour l'échantillon à faible QDD, la différence entre la transition fondamentale et la transition excitée est de  $\Delta E = E_1 - E_0 = 41\text{ meV}$ . Cette mesure permet également de mettre en évidence la luminescence associée à la WL à  $0.94\text{ eV}$ , et celle associée au matériau barrière à  $1.18\ \mu\text{m}$  ( $1.05\text{ eV}$ ) à température ambiante, qui ne sont pas montrées ici par souci de clarté. La transition entre états excités a une largeur de raie à mi-hauteur égale à  $\delta E = 27\text{ meV}$  pour les faibles QDD. Pour l'échantillon à forte QDD, la zone de transition entre états excités n'a plus la même allure. Au lieu d'être bien définie, la transition entre états excités est plus large, et plus proche de la transition fondamentale. En prenant la valeur moyenne pour les deux

transitions  $E_1$  et  $E_2$  entre états excités, la différence entre la transition fondamentale et la transition excitée est  $\Delta E = 23$  meV. Cette observation peut être interprétée comme une conséquence directe du couplage latéral. En effet, des boîtes quantiques avec un grand rayon (faibles densités) doivent normalement avoir leur transition entre états excités plus proche de la transition fondamentale que des boîtes quantiques dont le rayon est plus petit (fortes densités). Or, nous mesurons exactement l'inverse, ce qui peut être attribué à un effet direct du couplage latéral entre boîtes,[CornetPRB05] comme nous l'avons déjà fait pour les mesures du rayon de Bohr de l'exciton dans la partie précédente. De plus, la largeur à mi-hauteur de cette transition est d'environ  $\delta E = 38$  meV pour les fortes densités. Cet élargissement de la transition peut être attribué à un effet de minibandes, résultant également du couplage latéral inter-QD. Le modèle utilisé dans la partie précédente,[CornetPRB05] prévoit également une levée de dégénérescence des niveaux d'énergie excités P et D. Dans ces mesures, la levée de dégénérescence n'est pas mise en évidence de manière distincte, même si deux pics  $E_1$  et  $E_2$  semblent apparaître sur la figure 3-13 (b). Si l'on regarde maintenant plus en détail la transition fondamentale, aucun effet de mini-bande n'est visible. La faible délocalisation de la fonction d'onde et le manque d'effet mini-bande sur l'état fondamental est cependant toujours cohérent avec les calculs réalisés précédemment, et nous permet de supposer que le système est dans le régime intermédiaire de couplage (couplage inter-QD assisté par la WL). Le principal point démontré ici est que les échantillons à faible et forte QDD ont une signature optique différente, avec des effets mini-bandes qui semblent apparaître, et un décalage vers les basses énergies des transitions entre états excités pour les fortes QDD. Ces données, combinées à celles obtenues par la magnéto-photoluminescence sont des arguments en faveur de l'existence du couplage latéral, via les états excités de boîtes quantiques. Il convient toutefois de rester prudent ici, car les écarts en énergie  $\Delta E$  sont du même ordre de grandeur que les largeurs  $\delta E$  estimées pour les pics. Il n'est donc pas facile de séparer les différentes contributions.

### 3.3.2 Conséquences du couplage latéral sur la redistribution des porteurs de charge

#### 3.3.2.a *Etude expérimentale de la largeur spectrale de l'émission laser*

Dans la partie précédente, nous avons présenté plusieurs arguments expérimentaux en faveur de l'existence d'un couplage latéral dans les boîtes quantiques InAs/Q1.18/Q1.18 aux fortes densités. Un tel phénomène doit avoir une influence assez nette sur la redistribution des porteurs de charges entre les boîtes quantiques pour des taux de remplissage des boîtes encore

plus élevés. La redistribution des porteurs de charge entre les boîtes quantiques est souvent attribuée à l'excitation thermique des ces porteurs de charges (électrons et trous), vers des niveaux d'énergie supérieurs délocalisés de barrière (incluant la couche de mouillage), et peuvent être modélisées à l'aide de modèles dynamiques, à l'image du modèle de paires abordé dans le chapitre 4.[Grundmann00] Dans notre cas, notre résultat précédent montre que la diffusion thermique n'est pas le seul moyen d'obtenir la redistribution des électrons et des trous, mais que le couplage électronique (effet tunnel) doit également être considéré. Pour cette raison, nous nous limiterons à une description qualitative de la manière dont les porteurs de charge se redistribuent, et allons étudier celle-ci à partir d'expériences d'électroluminescence présentées et discutées dans la suite.

Deux échantillons InAs/Q1.18/Q1.18 à faible et forte QDD ont donc été préparés pour obtenir de l'électroluminescence. Chaque échantillon contient trois plans de boîtes quantiques, les boîtes quantiques ont à priori la même hauteur, et émettent à la même longueur d'onde, le tout contrôlé par la méthode de double cap. Des structures lasers sont ainsi réalisées avec une largeur de cavité de 100  $\mu\text{m}$ , une hauteur de 100  $\mu\text{m}$ , et une longueur de cavité de 3 mm. Les facettes du laser ne possèdent pas de traitement de surface. Les spectres d'émission de ces structures lasers ont donc été mesurés entre 110 K et 300 K sous modulation directe (impulsions de 0.5  $\mu\text{s}$ , et taux de répétition de 2 kHz). [CaroffAPL05] 110 K est la température la plus basse pouvant être atteinte sur notre banc de mesure d'électroluminescence. A cette température,  $k_bT$  est donc beaucoup plus petit que les différences d'énergies typiques entre nos transitions optiques dans ces boîtes quantiques (entre 20 et 40 meV).

Les spectres d'électroluminescence à 110 K pour les échantillons à forte QDD ( $C_{T0}$ ), et pour les échantillons faible QDD ( $U_{T0}$ ) pour des courants d'injection correspondant à 1.5 fois le courant de seuil laser, sont présentés sur la figure 3-14.

Une large différence de largeur spectrale entre les deux spectres d'électroluminescence est visible sur la figure 3-14. Les lasers étant assez largement multimodes, les spectres d'électroluminescence se composent d'un grand nombre de pics voisins. Pour cette raison, plutôt que d'utiliser la « largeur à mi-hauteur » pour caractériser la fenêtre d'émission du laser, nous avons choisi de redéfinir la fenêtre d'émission spectrale comme étant la largeur du spectre d'émission limité à un dixième du maximum d'intensité. Avec cette définition, les largeurs spectrales mesurées sont de 5.5 meV et 13 meV respectivement pour les échantillons



fortes et basses QDD, avec une erreur de mesure d'environ 1 meV, ce qui donne un rapport de 2.4 entre les largeurs mesurées.

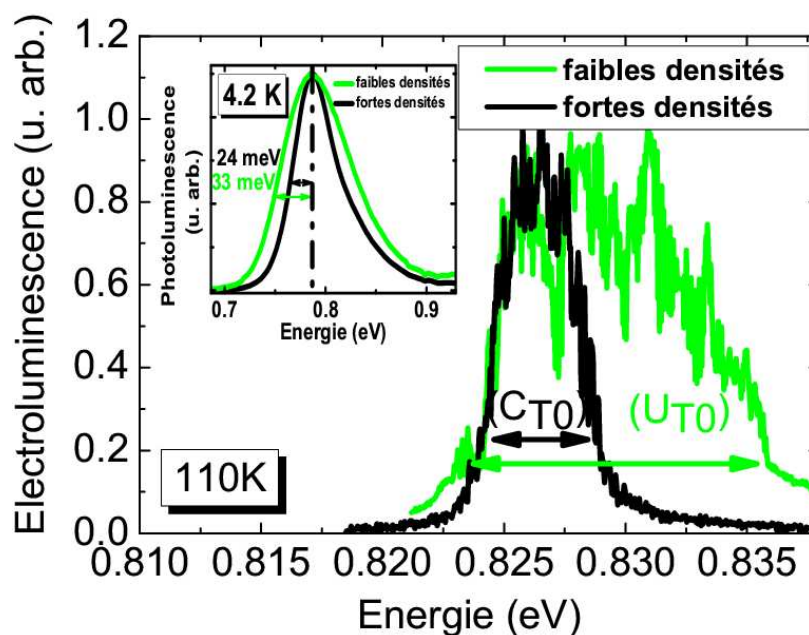


Figure 3-14 : Emissions lasers mesurées par électroluminescence à 110 K pour des échantillons à faible et forte densités de boîtes quantiques. Les largeurs spectrales d'émission laser révèlent une grande différence entre les deux lasers. L'encart représente l'émission en photoluminescence des échantillons correspondants à faible et forte QDD, à 4.2 K. La différence de largeur de photoluminescence (largeur inhomogène) ne permet pas d'expliquer la différence de largeur observée en électroluminescence.

En ne prenant pas en compte le couplage électronique, et en supposant qu'à 110 K, les principaux effets thermiques sont bloqués (redistribution thermique), la différence entre les deux échantillons devrait être liée aux largeurs inhomogènes. Ces largeurs inhomogènes à mi-hauteur mesurées par photoluminescence sur ces échantillons sont de 48 meV pour les fortes densités de boîtes, et 66 meV pour les basses densités (encart de la figure 3-14). Cela donne un rapport de largeur inhomogène de 1.4 entre les deux échantillons à la différence du rapport de 2.4 mesuré en électroluminescence sur la figure 3-14. Pour les comparer, il faut d'abord tenir compte des différences de température. L'augmentation de largeur pour la photoluminescence entre 4 K et 110 K est au grand maximum égale à 20 %.[ParanthoenTh01] Cela ne suffit pas à expliquer une telle différence entre les largeurs mesurées en électroluminescence. En effet, la figure 3-15 montre l'évolution de la largeur spectrale de l'émission laser à 1.5 fois le courant de seuil en fonction de la température. Alors que l'échantillon à forte QDD a une largeur spectrale quasiment constante de 5 meV, la largeur spectrale de l'échantillon à faible QDD décroît fortement jusqu'à une température de 180 K, et est presque constante entre 180 K et 300 K.

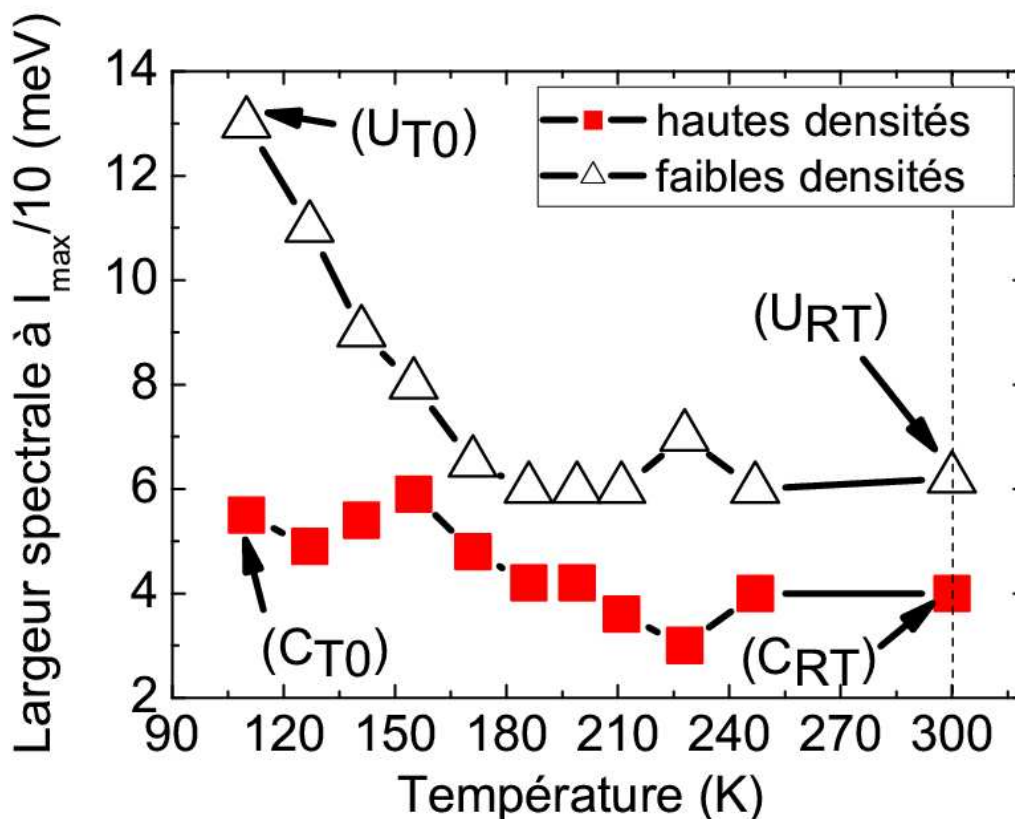


Figure 3-15 : Largeurs spectrales des émissions lasers en fonction de la température pour les échantillons à faible QDD et forte QDD.

Notre interprétation de l'évolution des largeurs de raie laser présentées sur la figure 3-15 est la suivante : si la redistribution des porteurs n'existe pas, ou est très peu efficace, alors toutes les boîtes quantiques de l'échantillon participent à l'émission laser indépendamment, et la largeur du spectre d'émission laser se rapproche de la largeur inhomogène.[Grundmann00] [Sugawara05] Si la redistribution est efficace, alors tous les porteurs se redistribuent préférentiellement vers une famille de boîtes quantiques sur laquelle le gain sera maximum. Dans ce cas, la largeur du spectre d'émission laser se rapproche de la largeur homogène (environ 150  $\mu\text{eV}$  à 4K).[Saint-Girons06] Il reste donc à expliquer pourquoi la redistribution paraît plus favorable pour l'échantillon à forte densité.

La figure 3-16 est une représentation schématique des deux mécanismes de redistribution en compétition pour (a) des boîtes non couplées, et (b) des boîtes couplées latéralement. Le premier mécanisme (a) est la redistribution thermique classique  $R_T$  : un porteur sur l'état fondamental de boîte quantique peut être thermiquement excité vers la barrière (Q1.18), puis capturé par une autre boîte quantique. Le processus  $R_T$  est fortement dépendant de la température. Le second mécanisme (b) décrit ici est le mécanisme de redistribution des

charges par effet tunnel via le couplage inter-QD assisté par la WL :  $R_C$ . Dans ce cas, un porteur dans un état fondamental de boîte quantique peut atteindre des niveaux d'énergie supérieurs (en particuliers les états hybrides 2D/0D). Ils passent dans une autre boîte par effet tunnel à travers la barrière de potentiel. Le processus  $R_C$  nécessite donc moins d'énergie (thermique) que le processus  $R_T$  et entraîne donc une meilleure efficacité de redistribution des porteurs. Autrement dit, pour une même énergie thermique, il y aura plus de transferts de porteurs boîte/boîte si  $R_C$  est présent ( $R_T$  est toujours présent quelque soit l'échantillon considéré). Dans ces diagrammes, les densités de probabilités associées à chaque niveau d'énergie sont représentées en échelle de gris. La couleur noire équivaut à une probabilité de 1, et le blanc équivaut à une probabilité de 0.

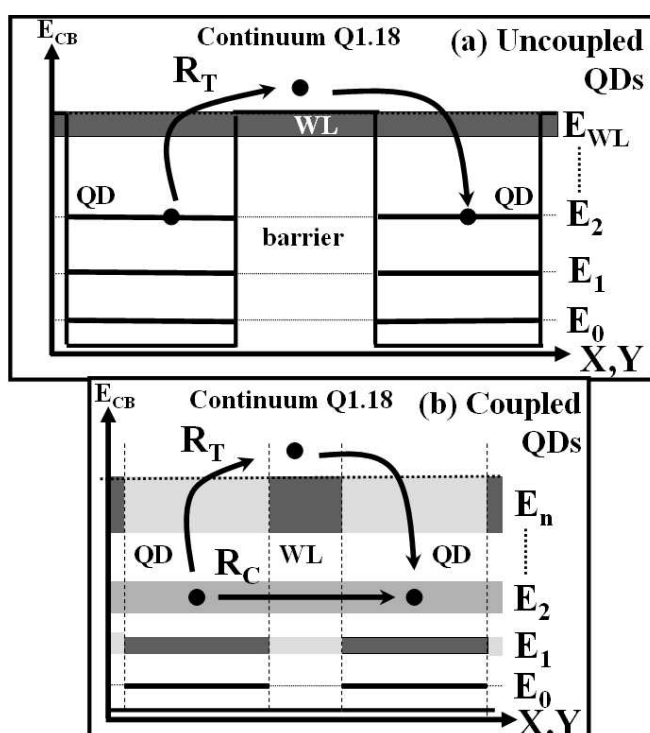


Figure 3-16 : Représentation schématique [CornetPRB06b] du diagramme en énergie de la bande de conduction pour (a) des QDs découplées, et (b) pour des boîtes couplées latéralement. La densité de probabilité électronique associée à chaque niveau d'énergie est représentée en échelle de gris (blanc = 0 et noir = 1). Les deux mécanismes de redistribution sont : la redistribution thermique  $R_T$ , et la redistribution par effet tunnel assisté par la WL  $R_C$ .

Le diagramme en énergie des boîtes couplées révèle des mini-bandes délocalisées pour les états excités (cf. partie 3.2). Ces états hybrides 0D-2D, s'étendent spatialement à travers la couche de mouillage, mais avec une partie principale localisée malgré tout dans la boîte quantique. [CornetPRB05] On peut supposer qu'entre 180 et 300 K, les deux mécanismes  $R_T$  et  $R_C$  sont tous les deux actifs. Aucune différence notable dans l'évolution de la largeur

spectrale avec la température ne peut être relevée entre les deux échantillons. Pour des températures plus basses (entre 110 K et 180 K), le processus  $R_T$  devient moins actif. Pour l'échantillon à faible QDD, la redistribution des porteurs de charge devient beaucoup moins efficace et la largeur spectrale de l'émission laser commence à augmenter. Pour l'échantillon à forte QDD, les porteurs de charge continuent à se redistribuer entre les boîtes quantiques, via le processus  $R_C$ . Finalement, dans la limite des basses températures (0 à 110 K), nous devrions nous attendre à voir la largeur spectrale de l'échantillon à forte QDD augmenter à son tour, ce que nous n'avons pas pu tester expérimentalement au laboratoire.

### 3.3.3 Discussion

#### 3.3.3.a *Largeur inhomogène et recouvrement des fonctions d'onde*

Nous avons décrit dans les parties précédentes un ensemble de mesures réalisées sur des échantillons à faible et forte QDD de boîtes InAs/InP qui tendent toutes à montrer la présence d'un couplage latéral entre boîte assisté par la WL. Ce couplage est décrit théoriquement dans la partie 3-2, et permet selon nous de mieux redistribuer les porteurs entre les différentes boîtes quantiques. Il y a cependant deux aspects dans les expériences réelles, qui ne sont pas pris en compte dans les calculs décrits précédemment (partie 3.2), et doivent être examinés à présent : **l'effet de la largeur inhomogène, et l'effet du recouvrement des fonctions d'onde entre les boîtes quantiques.**

La largeur inhomogène dans nos échantillons de boîtes quantiques a pour principale conséquence une variation des niveaux d'énergie d'une boîte à l'autre. [Sugawara05] [Markus05] [Grundmann00] L'impact d'un tel élargissement inhomogène sur les propriétés thermiques de redistribution, et sur l'effet laser a déjà été étudié précédemment. Grundmann a démontré que si la largeur inhomogène est beaucoup plus grande que la largeur homogène ce qui est notre cas),[Grundmann00] alors les boîtes quantiques participent à l'effet laser indépendamment les unes des autres. **Ainsi, tant que l'état fondamental n'est pas affecté par le couplage (induisant une augmentation de largeur homogène), aucune conséquence fâcheuse n'est attendue en ce qui concerne l'inversion de population de l'état fondamental nécessaire pour l'effet laser**

La largeur inhomogène affecte le couplage lui-même. Le couplage (effet tunnel) est maximum pour deux niveaux boîtes quantiques lorsque les énergies des deux états concernés sont égales. Dans le cas des boîtes quantiques, le couplage est usuellement considéré dans le contexte d'états fondamentaux de boîtes couplées verticalement, séparés par une fine couche

de matériau barrière. Plusieurs groupes ont déjà travaillé sur ce type de couplage, avec par exemple des empilements de boîtes InAs/GaAs, [Maes04c] [Fafard00] [Colocci99] InAs/InP, [Miska05] InP/GaInP, [Zundel97] [Provoost99], et InGaAs/InGaAsP. [Jang06] **Il a donc déjà été démontré que les boîtes peuvent être couplées électroniquement même si elles ne sont pas parfaitement identiques.**

Dans notre étude, nous considérons un couplage latéral, et non vertical entre les boîtes quantiques. Ceci réduit la probabilité de couplage entre les boîtes quantiques car le recouvrement entre fonctions d'onde ne peut être aussi grand que dans le cas d'un couplage vertical. D'un autre côté, nous ne considérons pas uniquement deux boîtes quantiques ou un réseau vertical 1D, mais un réseau quasi-infini de boîtes quantiques organisées à 2D dans le plan de croissance. Une deuxième différence entre les boîtes couplées verticalement, et latéralement, est la barrière à franchir par effet tunnel. Dans les boîtes couplées verticalement, la barrière est plus haute car elle est composée du matériau de recouvrement (Q1.18 dans notre cas), alors que pour les boîtes couplées latéralement, le matériau à franchir par effet tunnel est en partie le même (InAs dans la WL) que celui des boîtes quantiques. Une troisième différence est que **nous ne discutons pas du couplage entre états fondamentaux des boîtes quantiques, mais entre états excités, dont l'extension spatiale est typiquement entre 1.5 et 2 fois celle de l'état fondamental.** [Sidor06] [Stier99] [Guffarth01]

Pour un seul plan de boîtes, le degré d'organisation latérale est faible, ce qui devrait réduire un peu l'effet mini bande, et le couplage. La distance moyenne entre boîtes est toutefois relativement petite (33 nm), et à peine plus grande que le diamètre des boîtes (26 nm). L'effet tunnel à travers les états excités de boîtes est donc attendu. Pour les échantillons contenant 3 et 6 plans de boîtes quantiques, la distance inter-QD devient plus grande, avec respectivement 38 et 43 nm (cf. partie I), mais l'organisation latérale et le diamètre des boîtes augmentent. **Ainsi, le couplage dépend à la fois de la distance inter-QD, du degré d'organisation, et du diamètre des boîtes quantiques. Ces trois paramètres varient avec le nombre de plans empilés, mais nous pensons que la variation d'un de ces paramètres doit être en partie compensée par la variation des deux autres.**

### 3.3.3.b Effet sur les courants de seuil lasers

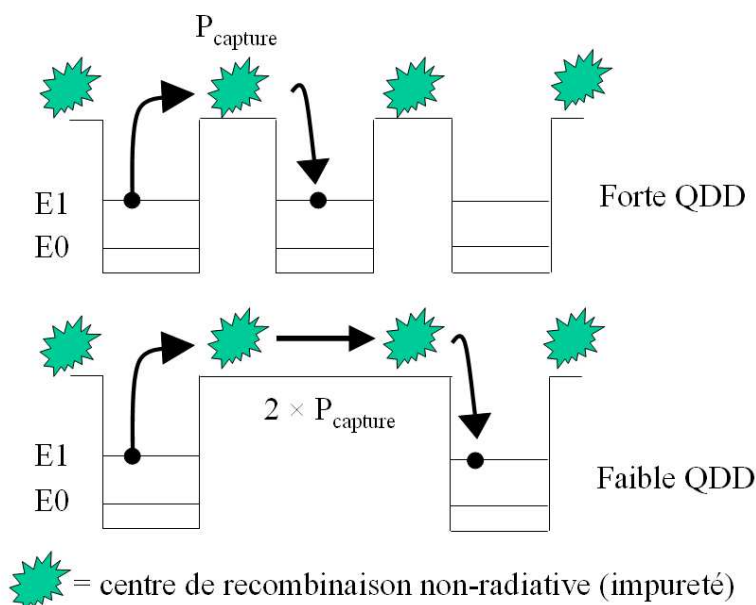
Une analyse complète sur l'optimisation des courants de seuil dans les lasers à boîtes quantiques a déjà été réalisée dans de précédents travaux. [CaroffAPL05] [CaroffTh05] [ParanthoenTh01] [Platz04] [Platz05] Ces courants de seuils dépendent essentiellement du gain et de l'efficacité de l'injection dans la zone active. [Bimberg98] Les densités de courants

de seuils (i.e. les densités de courants à laquelle l'émission laser arrive) sont égales à  $J_{\text{highQDD}}^{\text{T0}} = 32 \text{ Acm}^{-2}$  pour la configuration ( $C_{\text{T0}}$ ) et  $J_{\text{lowQDD}}^{\text{T0}} = 39 \text{ Acm}^{-2}$  pour la configuration ( $U_{\text{T0}}$ ) à 110 K (Fig. 3-15). A température ambiante, les densités de courants de seuil sont égales à  $J_{\text{highQDD}}^{\text{RT}} = 190 \text{ A.cm}^{-2}$  pour la configuration ( $C_{\text{RT}}$ ) et  $J_{\text{lowQDD}}^{\text{RT}} = 520 \text{ A.cm}^{-2}$  pour la configuration ( $U_{\text{RT}}$ ). Les accroissements observés entre les valeurs de courants de seuil à basse température et à température ambiante sont classiquement attribués au renvoi des porteurs dans la barrière (augmentation des pertes par recombinaison non-radiative).[Asryan02]

Les rapports entre les courants de seuil à basse température et température ambiante sont ici respectivement égaux à  $J_{\text{highQDD}}^{\text{RT}} / J_{\text{highQDD}}^{\text{T0}} = 5.9$  et  $J_{\text{lowQDD}}^{\text{RT}} / J_{\text{lowQDD}}^{\text{T0}} = 13.3$ . La différence entre les deux rapports peut être ici interprétée comme une conséquence de la présence d'effet tunnel dans la structure laser possédant une forte QDD. Alors que la redistribution est en partie bloquée pour l'échantillon à faible QDD à basse température, la redistribution des porteurs continue par effet tunnel dans l'échantillon à fortes QDD. Un tel procédé a d'ailleurs été imaginé pour augmenter l'efficacité d'injection dans les lasers à boîtes quantiques.[Asryan03]

Toutefois, ces différents accroissements de courants de seuil ne peuvent être seulement interprétés comme une conséquence directe d'une redistribution par effet tunnel. Les effets liés à l'augmentation de la densité par exemple peuvent venir expliquer aussi ces différences d'accroissements de courants de seuil (figure 3-17). Si l'on considère deux échantillons à faible et forte QDD avec la même concentration de défauts non-radiatifs, alors la probabilité de capture d'un électron par un défaut est deux fois plus grande pour l'échantillon à faible QDD (en considérant que la distance inter-boîte est deux fois plus grande sur cet échantillon).

Toutefois, ces descriptions qualitatives devront être complétées par des mesures à basse température (4K), afin de déterminer quantitativement l'importance relative de ces phénomènes.



*Figure 3-17 : Illustration de l'effet de la densité surfacique de boîtes quantiques sur la redistribution des porteurs. Pour une concentration de défauts non-radiatifs équivalente, la probabilité de capture par ces défauts est deux fois plus petite sur l'échantillon à forte QDD (pour une distance inter-boîte deux fois plus petite).*

### 3.3.3.c Les boîtes quantiques couplées dans les composants

Le couplage latéral pourrait être considéré comme une source de dégradation des propriétés des boîtes quantiques, en supprimant leur caractère 0D. Toutefois, si des boîtes non-couplées ont une structure électronique de type atomique, elles ont aussi une moins bonne efficacité pour la redistribution des charges par effet tunnel. Nous pensons qu'un régime de couplage intermédiaire (sur les états excités) peut être avantageux s'il permet de conserver la structure 0D de l'état fondamental (ce qui est crucial pour l'inversion de population), tout en augmentant l'efficacité de redistribution des porteurs de charge grâce aux états excités couplés. Cela doit également améliorer la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques, car le couplage implique des effets de minibandes. En supposant ainsi que les temps de relaxation sont plus rapides dans les boîtes quantiques couplées que dans celles non-couplées, les lasers à boîtes quantiques couplées devraient avoir une meilleure réponse dynamique aux hautes fréquences de modulation (bande-passante plus grande en fréquence). En revanche, l'écart entre les transitions optiques fondamentale et excitée semble réduit dans les échantillons à forte densité (cf. figure 3-13) ce qui peut avoir des conséquences néfastes pour le chirp.

*Le couplage latéral de QDs et ses conséquences sur la redistribution des porteurs dans les QDs ont été étudiés. Il a été démontré qu'il était possible de faire croître des boîtes quantiques en fortes densités, possédant alors une auto-organisation dans le plan. Une méthode de calcul originale a été développée dans ce travail de thèse afin de décrire le couplage latéral dans un tel réseau de boîtes quantiques. Ces calculs permettent de décrire des effets de mini-bandes et de délocalisation de la fonction d'onde électronique. Enfin, la notion de couplage latéral est utilisée pour interpréter des résultats expérimentaux obtenus par magnéto-photoluminescence, photoluminescence polarisée, et électroluminescence. Les conséquences sur la redistribution des porteurs dans les lasers sont discutées qualitativement. Ainsi, si le régime de couplage est bien choisi (régime intermédiaire), alors il peut être bénéfique pour les composants à base de boîtes quantiques.*

*Dans la suite, nous allons nous intéresser plus particulièrement aux effets de dynamique liés au niveau fondamental dans les boîtes quantiques. Une mesure des durées de vie de l'exciton et du biexciton est ainsi proposée.*





---

# CHAPITRE 4

---

## 4. Dynamique des transitions optiques interbandes dans les boîtes quantiques

Nous présentons dans cette partie les résultats expérimentaux portant sur l'étude de la dynamique des transitions dans les boîtes quantiques. Ce chapitre explicite dans un premier temps les motivations qui nous ont amené à étudier les dynamiques des transitions dans les boîtes quantiques. Nous montrons ensuite la nécessité de connaître précisément les valeurs des durées de vie des niveaux d'énergie pour affiner les modèles de simulation des composants. Dans un deuxième temps, le dispositif expérimental de mesure pompe-sonde utilisé pour mesurer les durées de vie est présenté. Enfin, à partir des mesures effectuées en pompe-sonde, nous montrons comment les durées de vie de l'exciton et du biexciton dans les boîtes quantiques ont pu être déterminées. Les conséquences en vue des applications visées sont finalement discutées.

## 4.1 La dynamique des transitions dans les boîtes quantiques : Position du problème

*Cette partie a pour but d'expliquer pourquoi une connaissance précise des temps de vie associés aux différentes transitions dans les boîtes quantiques est nécessaire pour la bonne compréhension des composants tels que les absorbants saturables, ou les lasers modulés. Les travaux présentés dans cette partie 4.1 ont été développés conjointement dans le cadre des travaux de thèse de P. Miska, [Miska03] K. Veselinov, et de moi-même.*

### 4.1.1 Aspects dynamiques des composants optoélectroniques

#### 4.1.1.a Généralités

Dans le cadre de l'étude des boîtes quantiques InAs/InP pour les télécommunications à longue distance à 1.55  $\mu\text{m}$  (cf. chapitre 0), la transmission d'information par fibre optique s'effectue par modulation de l'intensité lumineuse du laser exciteur à l'entrée de la fibre. Cette modulation est le plus souvent externe (donc indirecte). Or les boîtes quantiques sont envisagées pour la fabrication de lasers à modulation directe. Cette dernière méthode nécessite une capacité de réponse accrue de la structure aux variations de courant imposées, et jusqu'à des fréquences les plus élevées possibles, afin de transmettre un maximum d'informations. La réponse d'un tel système aux variations de courant dépend de la capacité du système à évacuer rapidement et efficacement les porteurs arrivés dans les boîtes quantiques, sous forme de photons. De la même manière, pour la régénération du signal optique sur les longues distances, des absorbants saturables sont parfois utilisés, et doivent impérativement avoir une dynamique rapide.

Ainsi, la durée de vie des porteurs sur les niveaux d'énergie des boîtes quantiques, avant leur recombinaison sous forme de photons, est une grandeur fondamentale pour améliorer les performances des composants à boîtes quantiques. Elle dépend d'ailleurs d'un temps radiatif (associé au niveau d'énergie lui-même), et d'un temps non-radiatif (associé à la relaxation non-radiative des niveaux d'énergie supérieurs vers des niveaux plus bas en énergie), et dépend donc de la température. Logiquement, plus la durée de vie associée à ces transitions optiques est courte, plus la réponse en modulation du composant final sera rapide. Il faut noter que d'autres temps caractéristiques interviennent comme les temps de capture des porteurs ou les temps de relaxation intra-boîte. La connaissance précise de la durée de vie des transitions des boîtes quantiques est donc ici encore une information cruciale pour comprendre et simuler le fonctionnement de tels composants.

4.1.1.b Remplissage des boîtes : effets multiexcitoniques

Afin de préciser le type des transitions et les dynamiques associées, un schéma de principe de la structure électronique envisagée dans les boîtes quantiques InAs/InP est présenté figure 4-0.

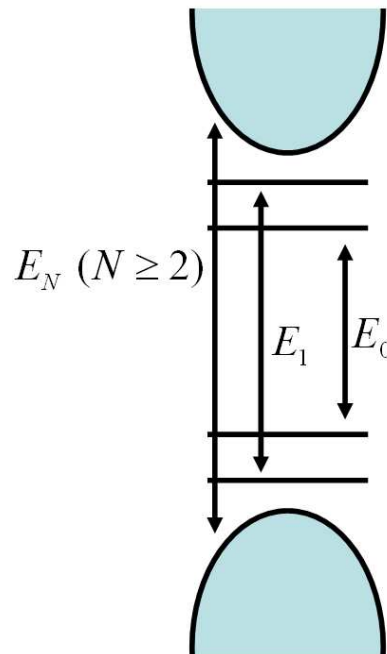


Figure 4-0 : Schéma Description de la structure électronique considérée dans ce chapitre.

Dans toute l'analyse développée dans cette partie, seuls deux niveaux d'énergie confinés dans la boîte quantique seront considérés, avec une dégénérescence de deux (dégénérescence de spin...). Dans un souci de simplification, nous ne considérons que des niveaux de paires (boîtes non chargées). Comme il a été présenté dans le chapitre 1, sur substrat (311)B, les transitions ne sont pas dégénérées, même pour des boîtes dont la géométrie possède la symétrie  $C_{3v}$ . Les boîtes n'étant très probablement pas cylindriques, l'hypothèse de considérer les deux transitions  $E_1$  et  $E_2$  de type 1P comme non dégénérées est encore plus justifiée. La transition fondamentale  $E_0$  correspond donc à l'état excitonique  $X_0$  et l'état biexcitonique  $XX_0$ . La transition excitée  $E_1$  correspond à  $X_1$  et  $XX_1$ . Les niveaux d'énergie supérieurs tels que  $E_2$  sont considérés comme appartenant à un continuum en énergie. Cette hypothèse est justifiée par le fait que seuls les deux premiers niveaux d'énergie confinés de la boîte quantique participent à l'émission laser.[Platz05] De plus, les propriétés optiques des composants à  $1.55 \mu\text{m}$ , sont liées à la transition fondamentale de nos boîtes quantiques. Ainsi, autant le détail de ce qui se produit sur les premiers niveaux d'énergie est essentiel, autant la

connaissance des mécanismes exacts de relaxation sur les niveaux d'énergie supérieurs n'est pas cruciale pour le sujet qui nous intéresse.

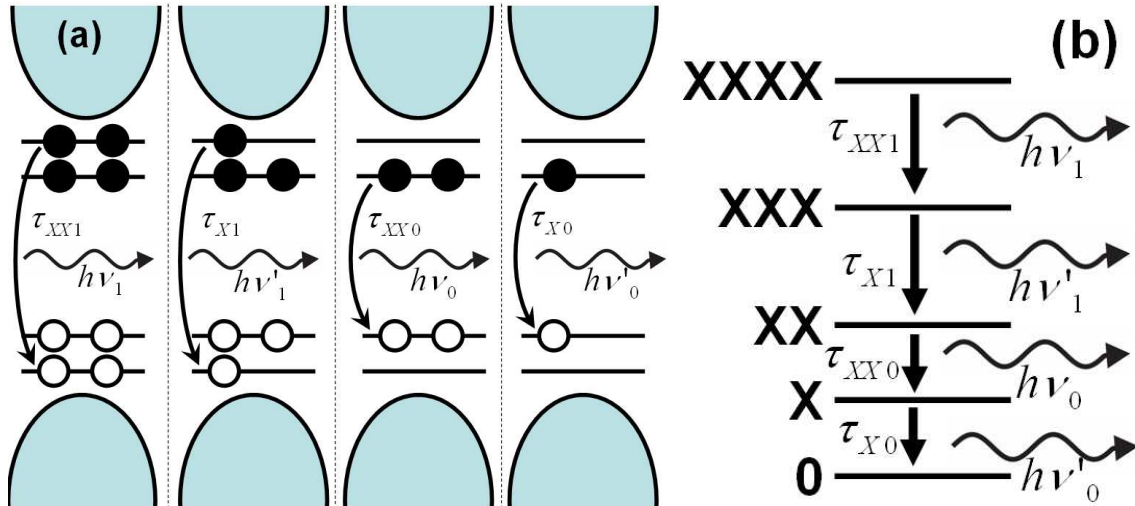


Figure 4-1 : Schéma en énergie des niveaux, transitions, et durées de vie associées de nos boîtes quantiques (a), et exemple de relaxation en cascade (b).

La figure 4-1 représente un schéma des transitions énergétiques et des durées de vie dans nos boîtes quantiques. Les temps caractéristiques associés aux deux premiers niveaux d'énergie confinés peuvent être séparés en deux contributions sur chaque niveau : le temps caractéristique pour passer de deux paires à une paire, et le temps caractéristique pour passer de 1 paire à 0 paire sur ce même niveau. On parlera par la suite d'état biexcitonique ou excitonique sur le niveau (i) considéré, associés aux temps de relaxation  $\tau_{XXi}$  et  $\tau_{Xi}$ . Ces temps ne sont pas a priori égaux, car les configurations biexcitoniques, et excitoniques sont différentes. A ces transitions sont également associées des énergies  $h\nu_i$  et  $h\nu'_i$ , qui sont à priori différentes, d'après les calculs présentés dans le chapitre 1 (l'énergie de liaison du biexciton par rapport à l'exciton est d'environ 1.5 meV). Cette énergie de liaison du biexciton est très faible en comparaison avec l'écart en énergie entre les deux niveaux  $E_0$  et  $E_1$  et la largeur inhomogène. Elle sera négligée dans la suite de l'étude ( $h\nu_i \approx h\nu'_i$ ). Le système d'étude étant maintenant défini, une simulation des propriétés dynamiques optiques des composants à boîtes quantiques passe par la définition d'un modèle de paires d'électrons et de trous.

### 4.1.2 Simulation des effets de dynamique dans les composants

#### 4.1.2.a Modèle de paires à 5 réservoirs

Dans le modèle de paires utilisé, la différence entre l'état biexcitonique, et l'état excitonique n'est pas prise en compte, en première approximation ( $\tau_{XXi} = \tau_{Xi} = \tau_i$ ), pour le niveau  $i$ . Le schéma de principe du modèle de paires utilisé ici pour simuler la dynamique des composants lasers ou de luminescence est présenté sur la figure 4-2.

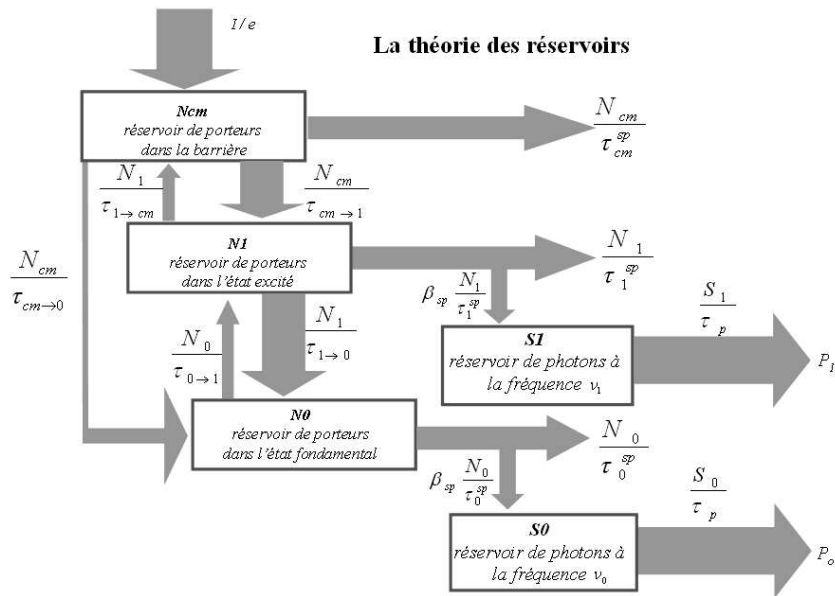


Figure 4-2 : Schéma de principe du modèle de réservoirs utilisé pour simuler le comportement dynamique de luminescence et des lasers à boîtes quantiques.

$N_i$  représente le nombre de paires électrons-trous présents dans le réservoir  $i$ , i.e. le nombre d'électrons et de trous présents simultanément sur le  $i^{\text{ème}}$  état en énergie de leurs bandes respectives (CB ou VB). La « barrière » considérée ici représente tous les niveaux d'énergie supérieurs aux deux premiers niveaux confinés de boîtes quantiques et notamment les niveaux d'énergie dans la couche de mouillage.

$\tau_{i-f}$  représente le temps caractéristique associé au passage d'une paire électron trou d'un réservoir  $i$ , à un réservoir  $f$ .

$S_i$  représente le nombre de photons à la fréquence  $h\nu_i$  du réservoir  $S_i$ .

$\tau_i^{sp}$  représente le temps caractéristique associée à l'émission spontanée d'un photon par le niveau d'énergie  $i$ .

$\beta_{sp}$  est la proportion du nombre de photons émis par émission spontanée pouvant participer à l'émission laser (i.e. émis dans l'axe de la cavité, avec la bonne polarisation, et la bonne

énergie). Ce coefficient n'est à priori pas constant, et dépend du nombre de photons dans la cavité.

$I/e$  représente le nombre de charges injectées dans le système, directement dans la barrière. C'est la modulation plus ou moins rapide de ce paramètre qui permet de tester la réponse du système à différentes fréquences d'excitation.

$P_i$  est la puissance laser émise à la fréquence  $h\nu_i$ .

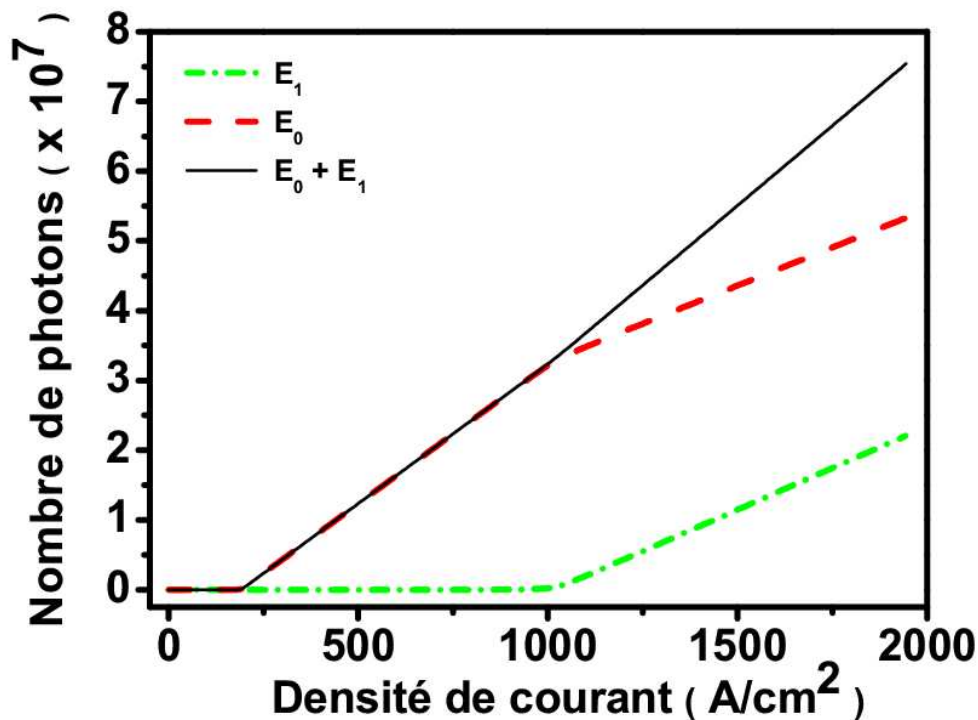
$\tau_p$  est le coefficient de pertes dans la cavité laser considérée.

Il est également important de noter qu'un « canal d'injection » direct de la barrière vers le niveau fondamental a été considéré dans ce modèle. Ce canal d'injection reflète en réalité l'injection par effet Auger mesuré par Miska et al. en photoluminescence résolue en temps. [Miska05] [Miska03b] Tous ces paramètres sont cruciaux pour comprendre la réponse sous modulation des lasers à boîtes quantiques.

Ce modèle a servi sous une forme moins développée, pour interpréter dans un premier temps les mesures de photoluminescence résolues en temps, réalisée par P. Miska et al. [Miska05] [Miska03b]

#### 4.1.2.b Equations dynamiques, et composants laser

Dans un tel modèle, il est possible d'écrire les équations dynamiques de conservation de nombre de particules dans chaque réservoir (annexe A). [Berg01] [Markus05] Certains termes de ces équations peuvent être commentés plus précisément ici.  $I$  représente l'intensité injectée dans le laser (i.e. proportionnel au nombre de porteurs arrivant effectivement dans les boîtes quantiques), c'est cette intensité qui peut être modulée ou non. Les temps caractéristiques associés aux différents niveaux d'énergie apparaissent sous la forme de termes du type  $(A+CN)$  pour différents coefficients  $A$  et  $C$ , pour prendre en compte l'effet Auger. Le couplage des réservoirs de porteurs se fait par l'intermédiaire du gain linéarisé (coefficient  $a$ ) et du coefficient d'émission spontanée  $\beta_{sp}$ . Ces équations, résolues analytiquement dans le cas stationnaire, permettent d'obtenir dans un premier temps des caractéristiques statiques de type  $P(I)$ , puis dans un deuxième temps, après avoir choisi un point de fonctionnement, la réponse du laser ou des propriétés de luminescence à une excitation dépendante du temps  $P(t)$ . La figure 4-3 est un exemple de caractéristique  $P(I)$  obtenue avec un tel modèle, ou l'effet de la double émission laser sur deux niveaux d'énergie observé par Platz et al. [Platz05] est simulé. La simulation montre ici la possibilité de définir deux seuils différents pour l'émission laser.



*Figure 4-3 : Caractéristique  $P(I)$  (Puissance émise en fonction de l'intensité injectée) simulée, et mise en évidence de l'effet de la double émission laser des deux niveaux d'énergie sur les propriétés optiques de tels lasers à boîtes quantiques.*

Ainsi, en injectant des porteurs, la transition fondamentale  $E_0$  atteint en premier l'inversion de population, et participe à l'effet laser : c'est le premier seuil. L'effet laser étant atteint (et donc le régime stationnaire sur l'état fondamental également), l'augmentation du nombre de porteurs aide alors à peupler le premier niveau excité  $E_1$ , et à atteindre ainsi l'inversion de population sur cette transition : c'est le deuxième seuil laser. En poussant plus loin l'intensité injectée dans le système, une saturation (non présentée ici) de la puissance laser est observée, quand les deux premiers niveaux d'énergie sont saturés.

Des expériences de photoluminescence résolue en temps (non résonantes) ont été menées dans de précédentes études pour déterminer les temps caractéristiques du système.[MiskaSST02] La photoluminescence résolue en temps est basée sur l'observation du signal de photoluminescence en fonction du temps, juste après l'excitation de l'échantillon. Les porteurs sont donc d'abord envoyés dans les niveaux de haute énergie, et ces niveaux émettent les premiers. Puis, les porteurs qui ne se sont pas encore recombinaés se désexcitent non-radiativement sur les niveaux d'énergie plus bas, et finissent par se recombinaer à leur tour. Au final, il est ainsi possible de déterminer les durées de vie des différents niveaux d'énergie, et en particulier les durées de vie radiatives excitoniques associées à la transition fondamentale  $E_0$  ( $\tau \sim 1000$  ps à 10 K, pour des boîtes InAs/InP (311)B de hauteur 2 nm



excitées par un laser Titane-Saphire impulsif accordable entre 680 et 1080 nm). [MiskaSST02] [Miska03b] Ces mesures ont été complétées par des calculs de durées de vie qui ont permis d'aboutir à des durées de vie radiative excitonique entre 800 ps et 850 ps suivant la taille de la boîte quantique considérée. [Miska03] Ces valeurs sont mesurées de manière non résonante, et ne sont donc pas complètement déconvoluées des durées de vie des autres niveaux d'énergie, en particulier dans le système InAs/InP où les niveaux d'énergie supérieurs sont très proches.

Afin d'obtenir des mesures plus précises des temps de vie associés à ces transitions, et pour se rapprocher des conditions d'opérations in situ des composants à 1.55  $\mu\text{m}$ , les précédentes études sont donc complétées dans les parties qui suivent par des mesures de pompe-sonde résonante sur les boîtes quantiques étudiées.

*Dans cette partie, les motivations et les enjeux pour étudier la dépendance dynamique des phénomènes dans les boîtes quantiques ont été présentées. Un modèle dynamique a ainsi été développé et appliqué au cas de nos boîtes quantiques. Le manque de données concernant les temps caractéristiques des transitions étudiées démontre la nécessité d'obtenir expérimentalement ces temps de vie. La prochaine partie montre comment obtenir de telles mesures avec la pompe-sonde.*

## **4.2 Dispositif expérimental pompe-sonde en transmission**

*Cette partie décrit l'expérience de pompe-sonde utilisée pour la mesure des dynamiques de transitions dans les boîtes quantiques. [Guézo04]*

### **4.2.1 Principe de la mesure**

Les techniques de mesures pompe-sonde résonante à impulsions femtosecondes sont classiquement utilisées au laboratoire pour exciter des porteurs dans les multipuits quantiques, [Guezo03] [Guezo03b] [Gicquel04] et analyser les processus de recombinaison. De très faibles durées de vie des porteurs dans des puits quantiques dopés fer peuvent être ainsi atteints (290 fs), en incorporant du fer dans des multipuits quantiques InGaAs/InP. [Gicquel04] La difficulté est ici de transposer ces techniques de mesures aux

boîtes quantiques. En effet, nous avons montré au chapitre 2 que l'absorbance dans les boîtes quantiques est environ six fois plus faible pour un plan de boîtes quantiques que pour un puits quantique. Il faut donc disposer de suffisamment de matière pour garder une absorbance toujours supérieure à la limite de détectivité du montage.

Un faisceau de forte intensité (dit « pompe ») génère de façon résonante des excitons, biexcitons, ou multiexcitons. Electrons et trous se recombinent alors au bout d'un certain temps, c'est la durée de vie (multi-)excitonique. De tels processus dynamiques, souvent rapides (de l'ordre de la ps), peuvent être mis en évidence grâce à l'utilisation d'impulsions femtosecondes. En effet, un second faisceau, de faible intensité (« sonde »), et de même longueur d'onde, vient sonder les phénomènes physiques engendrés par la pompe à un temps ultérieur. L'évolution temporelle de l'absorption de ce faisceau par la structure (avant et après la pompe) permet de caractériser l'absorption non-linéaire du matériau. Les effets qui interviennent dans la saturation de l'absorption de la sonde sont essentiellement dus aux effets multi-excitoniques qui saturent l'absorption excitonique. La figure 4-4 illustre le principe d'une mesure pompe-sonde. L'évolution temporelle de la transmission différentielle normalisée (DTR) de la sonde est mesurée. Cette DTR est définie telle que :[Guézo04]

$$\frac{\Delta T}{T_0} = \frac{T(N) - T_0}{T_0} = e^{\Delta\alpha \cdot L} - 1$$

où  $T(N)$  est la transmission de la sonde en présence de la pompe, où  $N$  est la densité de porteurs injectés par la pompe, et  $T_0$  est la transmission de la sonde en absence de pompe.

La variation d'absorption  $\Delta\alpha = \alpha_0 - \alpha(N)$  est la différence entre l'absorption linéaire ( $\alpha_0$ ) et l'absorption non-linéaire ( $\alpha(N)$ ).  $L$  correspond à la longueur de la zone absorbante constituée par les boîtes quantiques, le substrat n'absorbant pas à ces longueurs d'ondes. Pour de faibles variations de la transmission différentielle, celle-ci est proportionnelle à la variation d'absorption.

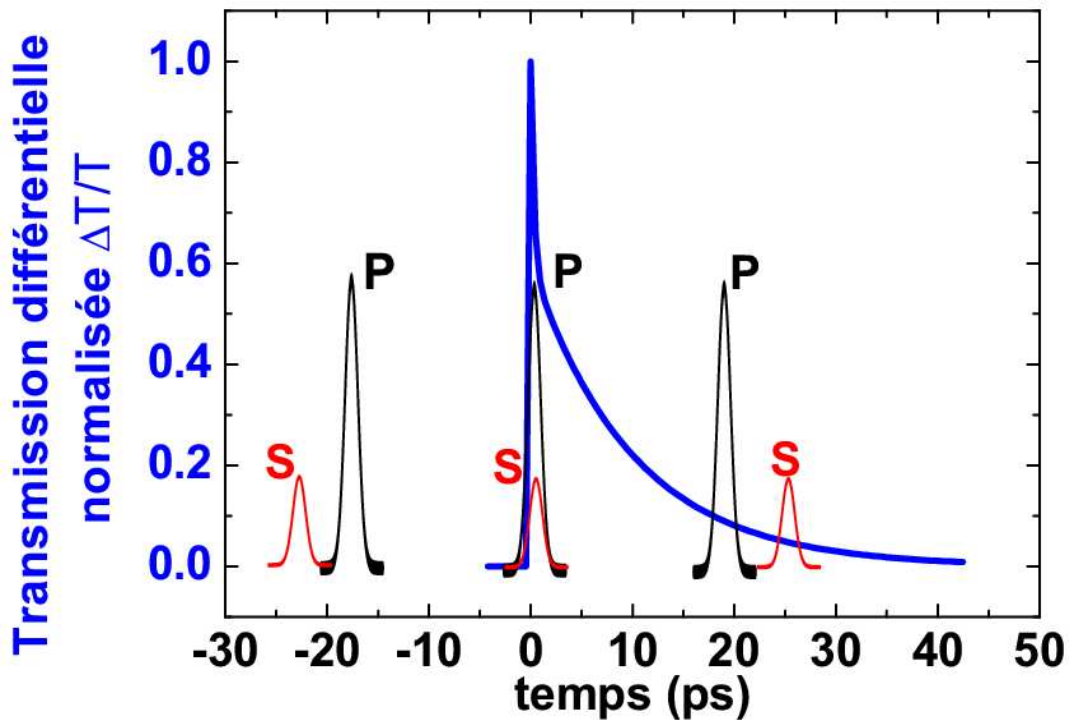


Figure 4-4: Principe d'une mesure pompe-sonde : évolution de la transmission de la sonde en fonction du retard qu'elle présente par rapport à la pompe. Les positions relatives dans le temps des impulsions femtosecondes de sonde (petite impulsion) et de pompe (grande impulsion) sont indiquées schématiquement.

## 4.2.2 Montage expérimental

### 4.2.2.a Description de l'expérience

Le dispositif mesurant de telles non-linéarités dans les boîtes quantiques est représenté dans la figure 4-5 dans sa configuration en transmission. Un laser Ar de forte puissance (13W), multi-raies, pompe en continu un laser Titane-Saphir (Ti-Sa), dont le blocage de modes permet la génération d'impulsions femtosecondes (de largeur 80 fs) à une cadence de 82 MHz. La puissance en sortie de ce second laser est de l'ordre de 2.3 W. La longueur d'onde qu'il délivre ( $\lambda = 810$  nm) permet de pomper un oscillateur paramétrique optique. Ce dernier fournit des impulsions de largeur à mi-hauteur de 130 fs, à un même taux de répétition (82 MHz), dans la gamme de longueurs d'onde de 1.35  $\mu\text{m}$  à 1.6  $\mu\text{m}$  (puissance moyenne en sortie de l'ordre de 250 mW). L'impulsion laser en sortie de l'oscillateur paramétrique est séparée en deux faisceaux polarisés perpendiculairement, à l'aide d'un cube séparateur. La répartition de la puissance des deux faisceaux est contrôlée par la rotation de la lame  $\lambda/2$  placée avant le cube séparateur, et la plus grande intensité est dirigée sur le chemin de la pompe. Le faisceau sonde est encore atténué par une densité optique de 3.

Expérience "pompe-sonde"

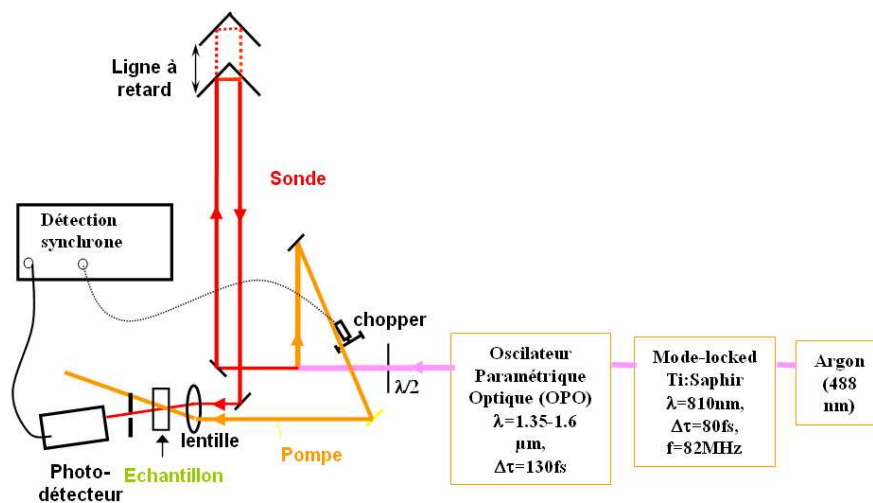


Figure 4-5: Banc de mesures pompe-sonde en transmission.

Le trajet de ce faisceau « sonde » comprend une ligne à retard. Les deux faisceaux (pompe et sonde) sont focalisés précisément sur l'échantillon à l'aide d'une lentille à gradient d'indice, de façon à ce que leur recouvrement spatial soit parfait. Le diamètre des tâches focales à  $1/e^2$  a été évalué à  $60 \mu\text{m}$  [Marceaux01]. La ligne à retard est contrôlée par un moteur pas-à-pas de résolution  $1 \mu\text{m}$ . On détecte l'intensité transmise par la sonde à l'aide d'une photodiode InGaAs, la pompe étant atténuée à l'aide d'un polariseur croisé par rapport à la sonde et d'une discrimination spatiale du faisceau pompe sur le détecteur. Une détection synchrone et un chopper permettent d'améliorer le rapport signal-sur-bruit. Un hacheur mécanique permet de détecter la transmission différentielle quand il est placé sur le faisceau pompe, ou  $T_0$  quand il est placé sur la sonde. Nous disposons également d'un carrousel de densités optiques. La résolution temporelle de la mesure pompe-sonde est limitée par la largeur de l'impulsion (130 fs).

4.2.2.b Difficultés expérimentales

Parmi les difficultés expérimentales rencontrées avec ce type de mesures pompe-sonde, nous pouvons citer à titre d'exemples l'alignement optique des faisceaux de pompe et de sonde en sortie de l'oscillateur paramétrique optique et le recouvrement spatial et temporel des spots de pompe et sonde au niveau de l'échantillon. Concernant ce dernier point, le recouvrement spatial s'effectue de manière visuelle, d'où une difficulté expérimentale à satisfaire cette condition. Le recouvrement spatial supposé parfait est cependant atteint en maximisant le signal reçu par la détection synchrone. Lorsque les recouvrements spatiaux et temporels sont bien réalisés, les faisceaux de pompe et de sonde, en principe en configuration

de polarisations croisées, interfèrent cependant suffisamment pour gêner assez considérablement la mesure au niveau du 0 temporel. Ces interférences sont expliquées par les taux de dépolarisation partiels, engendrés par les différents éléments optiques présents sur le trajet de la lumière.

Enfin, la principale difficulté rencontrée est essentiellement liée à la faible absorbance des boîtes quantiques comparée aux puits quantiques (1 puits = 6 plans de boîtes quantiques en absorbance, cf. chapitre 2). Cette dernière remarque est de première importance, car elle va considérablement compliquer les conditions de mesure.

En effet, les limitations en détectivité de l'expérience, et les limitations propres à la croissance des boîtes quantiques nous obligent à réaliser les mesures dans des conditions limites de l'expérience. Ainsi, le rapport signal/bruit est pour l'ensemble des mesures très faible, et une optimisation des conditions expérimentales, et de l'échantillon sont nécessaires (limitation de la diffusion sur les bords de l'échantillon, optimisation du rapport intensité de pompe/intensité de sonde, optimisation de l'alignement optique, séparation spatiale (alignement sonde/détecteur) et optique (contrôle des polarisations), etc.).

*Dans cette partie, le principe et le montage expérimental pompe-sonde de mesure des dynamiques de transition ont été présentés. Les limitations de l'expérience ont ainsi été démontrées. La prochaine partie s'attache à décrire les principaux résultats concernant les mesures de dynamique réalisées sur les boîtes quantiques, et présente les mesures de durées de vie radiative de l'exciton, et du biexciton.*

### **4.3 Détermination des durées de vie de l'exciton et du biexciton dans les boîtes quantiques InAs/InP**

*Cette partie décrit les principaux résultats obtenus en pompe-sonde sur un échantillon de 72 plans de boîtes quantiques. [CornetAPL06]*

#### **4.3.1 Cadre général de l'étude, définition de l'échantillon**

##### *4.3.1.a Motivations et cadre général de l'étude*

Comme nous l'avons déjà présenté auparavant, une étude du comportement dynamique de boîtes quantiques est d'une importance fondamentale pour pouvoir analyser le comportement des composants à base de boîtes quantiques à hautes fréquences. Récemment, des études dynamiques ont été réalisées sur des boîtes quantiques InAs/InP sur substrat (100), [Salem03] [Bogaart05], et sur substrat (311)B. [Miska05] [MiskaSST02] Cependant, aucune d'entre

elles n’était réalisée de manière résonante. Les effets de relaxation non-radiative des porteurs, et les durées de recombinaison radiative des porteurs doivent être considérés simultanément pour interpréter ces expériences. Nous proposons donc ici d’étudier la dynamique des porteurs dans des boîtes quantiques InAs/InP (311)B sur la transition fondamentale  $E_0$ , avec un montage pompe-sonde résonant à 1.55  $\mu\text{m}$ . La priorité est donnée à la mesure de l’évolution des temps de vie radiatifs en fonction de la puissance d’excitation.

#### *4.3.1.b Echantillons étudiés*

Deux échantillons ont été utilisés dans le cadre de cette étude. Ils ont été épitaxiés par MBE sur substrat InP (311)B dopé n. Le premier échantillon a servi à la mesure d’absorption (chapitre 2). Cet échantillon est constitué de 12 plans de boîtes quantiques InAs/InP, et permet d’effectuer des mesures de photoluminescence sous haute puissance d’excitation, tout en s’affranchissant des problèmes liés à l’augmentation de la largeur inhomogène pour de trop grands empilements. En effet, lorsqu’un grand nombre de plans est empilé, la dispersion en taille des boîtes quantiques augmente assez largement (cf chapitre 0). Le second échantillon est constitué d’un empilement de 72 (6×12) plans de boîtes quantiques InAs/InP, afin d’obtenir une absorbance équivalente à 12 plans de puits quantiques, en limite de détection de notre banc de mesure pompe-sonde.[CornetAPL04] Les plans de boîte sont espacés de 150 nm d’InP afin de réduire l’accumulation des contraintes dans la structure. Tous les 12 plans, une couche de 500 nm d’InP est ajoutée. Des observations RHEED (Reflection High Energy Diffraction) durant la croissance ont montré que les 500 nm d’InP laissaient une surface 2D lisse entre chaque série de 12 plans de boîtes quantiques. Pour les deux échantillons, les conditions de croissance permettent d’avoir des rayons de boîtes quantiques d’environ 35 nm, une densité surfacique de boîtes quantiques de  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  et une hauteur de boîtes de 3 nm obtenue par la procédure DC.[Paranthoen01]

### 4.3.2 Mesures en photoluminescence et en pompe-sonde

#### *4.3.2.a Mesures préliminaires de photoluminescence*

La figure 4-6 présente les spectres de photoluminescence (PL) réalisés sur l’échantillon 12 plans défini précédemment. La largeur à mi-hauteur du spectre de PL à basse puissance d’excitation est de 48 meV. Le spectre de photoluminescence sous forte puissance d’excitation ( $120 \text{ kW/cm}^2$ ) présente deux états excités à respectivement 14 et 26 meV du fondamental, confirmant ainsi les écarts mesurés dans le chapitre 2. Cet écart est à comparer avec la largeur spectrale du laser de pompe utilisé dans le montage expérimental pompe-sonde (10 meV), ce qui entraîne des difficultés supplémentaires dans l’interprétation des

mesures présentées dans la suite.[CornetAPL05] L’encart de la figure 4-6 montre les spectres de PL à 4K et température ambiante. Ainsi, il est possible d’estimer l’efficacité quantique de PL à 0.27 en intégrant les deux intensités de PL, c’est-à-dire la part des porteurs qui reste dans les boîtes quantiques et qui contribue à la recombinaison radiative électron-trou. On ne tient pas compte ici d’éventuels niveaux de défauts présents dans le gap.[Popescu04] [Markus02]

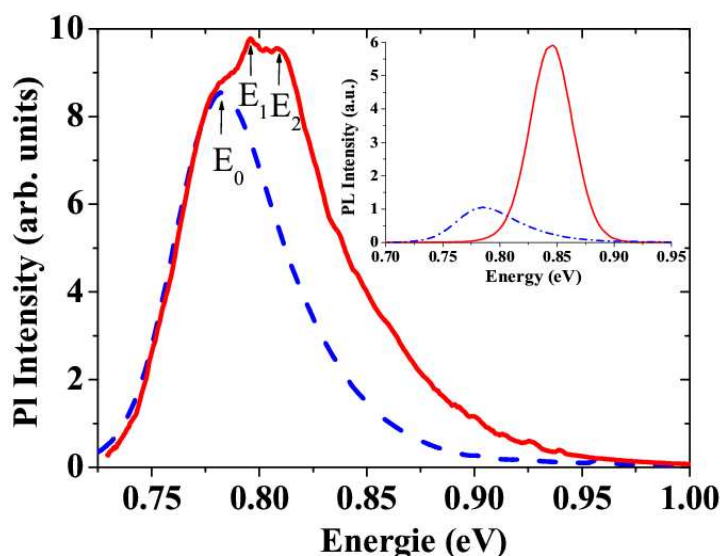
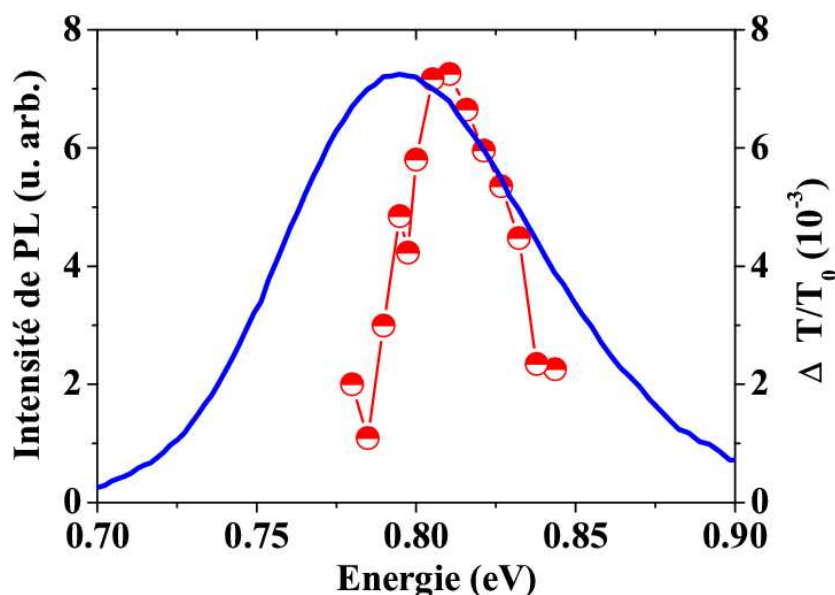


Figure 4-6: Spectres de photoluminescence sous basse (tirets) et haute (traits pleins) puissance d’excitation, sur l’échantillon de 12 plans de boîtes quantiques InAs/InP. Les flèches montrent la transition fondamentale  $E_0$ , et les transitions excitées à  $E_1 = E_0 + 14 \text{ meV}$  et  $E_2 = E_0 + 26 \text{ meV}$ . Les spectres à 4K (pointillés) et à température ambiante (traits pleins) sont illustrés en encart de la figure.

#### 4.3.2.b Transmission différentielle de 72 plans de boîtes quantiques

Afin de comparer les deux échantillons et de mettre en relief la transmission différentielle, nous avons d’abord réalisé la photoluminescence sur l’échantillon 72 plans. La figure 4-7 montre l’intensité de PL mesurée à l’aide du laser Krypton à 647 nm, à basse puissance sur l’échantillon contenant les 72 plans de boîtes quantiques. L’intensité maximale de photoluminescence est centrée à 795 meV ( $1.559 \mu\text{m}$ ), avec une largeur à mi-hauteur de 84 meV, i.e. 1.75 fois plus large que l’échantillon contenant les 12 plans de boîtes quantiques, à cause du processus d’empilement. Etant donné le nombre de plans empilés, cette largeur n’apparaît pas si important. De futures études de croissance sur les grands empilements devraient permettre de confirmer que des boîtes quantiques de bonne qualité sont encore présentes sur les derniers plans.



*Figure 4-7: Intensité de photoluminescence (traits pleins) et DTR (points reliés) à température ambiante de l'échantillon contenant 72 plans de boîtes quantiques InAs/InP. La différence entre les deux maxima d'intensité est d'environ 13 meV.*

La réponse dynamique non-linéaire est donc mesurée en utilisant la technique de pompe-sonde résonante en transmission. Avec une densité d'excitation de  $6 \times 10^{10}$  photons/(pulse.cm<sup>2</sup>) qu'on notera p/p.cm<sup>2</sup> par la suite, nous pouvons mesurer puis estimer par le calcul que seuls 0.01 porteurs par boîtes sont créés, ce qui permet de ne pas saturer l'absorption avec le faisceau sonde. Le faisceau de pompe est « choppé » à une fréquence de 0.5 kHz. La largeur de raie de l'impulsion laser envoyée sur l'échantillon est de 2.5 THz (10 meV). Toutes les mesures de DTR sont réalisées à température ambiante. Ainsi, sur la figure 4-7, les valeurs de DTR pour une densité d'excitation de  $3 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup> sont présentés. Cette courbe est centrée à 808 meV (1.536 μm), et la largeur à mi-hauteur est de 43 meV. La différence en énergie de 13 meV entre les spectres de PL et de DTR est attribuée au décalage vers le rouge usuellement observé entre émission et absorption.[Patanè00b]

Sur la figure 4-8, la DTR est mesurée à la longueur d'onde correspondant au maximum d'absorption pour différentes puissances pour une longueur d'onde de pompe de 1.540 μm (805 meV), i.e. centrée proche de la première transition entre états excités E<sub>1</sub> (809 meV). Pour plus de clarté, les mesures normalisées sont présentées avec une échelle logarithmique. La pompe ayant une largeur spectrale assez grande, elle permet à certains porteurs d'atteindre des niveaux d'énergie supérieurs. Les porteurs ainsi photo-générés « relaxent » alors vers le niveau fondamental de manière non-radiative. Le rapport signal sur bruit produit une incertitude d'environ  $\pm 100$  ps, et ne permet pas de mesurer les temps de déclin liés à ces



relaxations non-radiatives ( $< 100$  ps). Pour une densité d'excitation de  $0.57 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup>, le signal est monoexponentiel avec un temps de déclin de 1720 ps (a). En augmentant la puissance de pompe, la décroissance devient biexponentielle (1720-530 ps) (b), puis monoexponentiel ( $1.3 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup>:530 ps) (c). Une variation similaire du temps de déclin ( $\tau$ ) avec la densité d'excitation a déjà été observée sur le système InAs/GaAs ( $\tau \sim 2000$ -500 ps), [Mazur01] et sur d'autres systèmes de type structures InAs/InP ( $\tau \sim 2600$ -1000 ps). [Bogaart05]

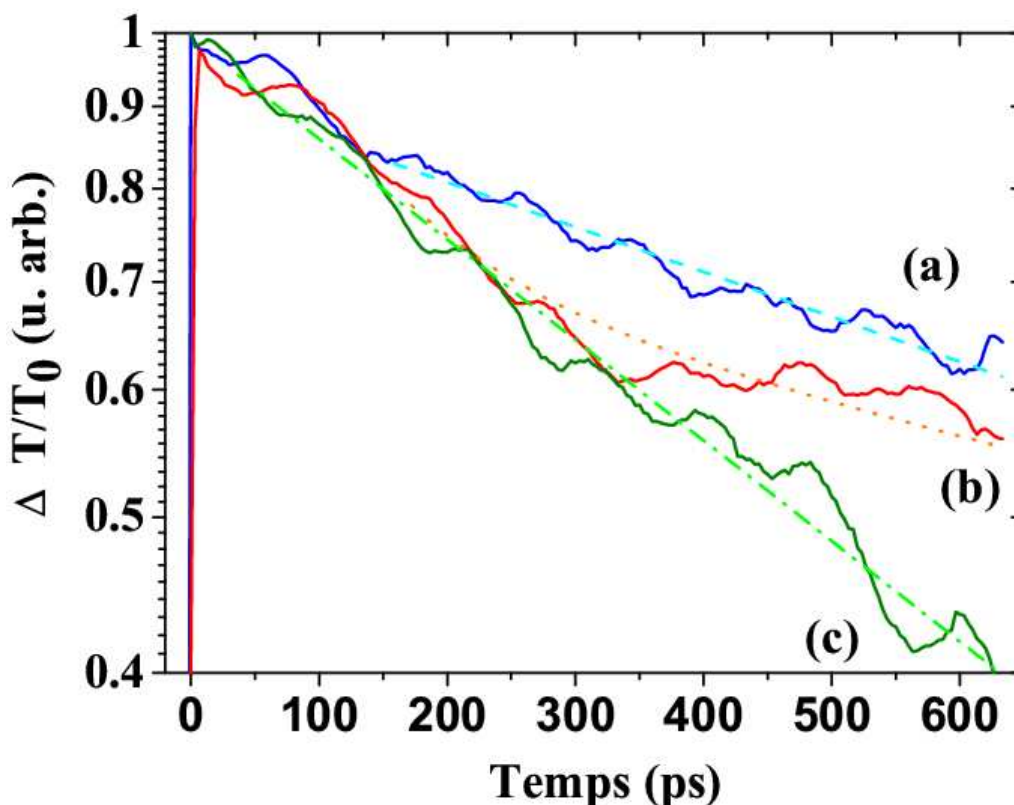


Figure 4-8 : Durées de vie moyennées et normalisées mesurées à trois différentes densités d'excitation : (a)  $0.57 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup> : 1720 ps, (b)  $0.75 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup> : 530-1720 ps, (c)  $1.3 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup> : 530 ps.

#### 4.3.3 Interprétation : durée de vie excitonique et biexcitonique

La figure 4-9 (a) montre la durée de vie des porteurs en fonction de la densité d'excitation. Les temps de vie présentés ici sont déduits des ajustements monoexponentiels (à partir des spectres moyennés) réalisés sur les données de la figure 4-8. Les durées de vie montrées ici décroissent pour des densités d'excitation comprises entre  $0.57 \times 10^{13}$  et  $1.3 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup>. Entre  $1.3 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup> et  $1.8 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup>, les durées de vie remonte assez nettement. Une deuxième décroissance des durées de vie est observée également dans la gamme entre  $1.8 \times 10^{13}$  et  $4.0 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup> (1550 ps  $\rightarrow$  640 ps).

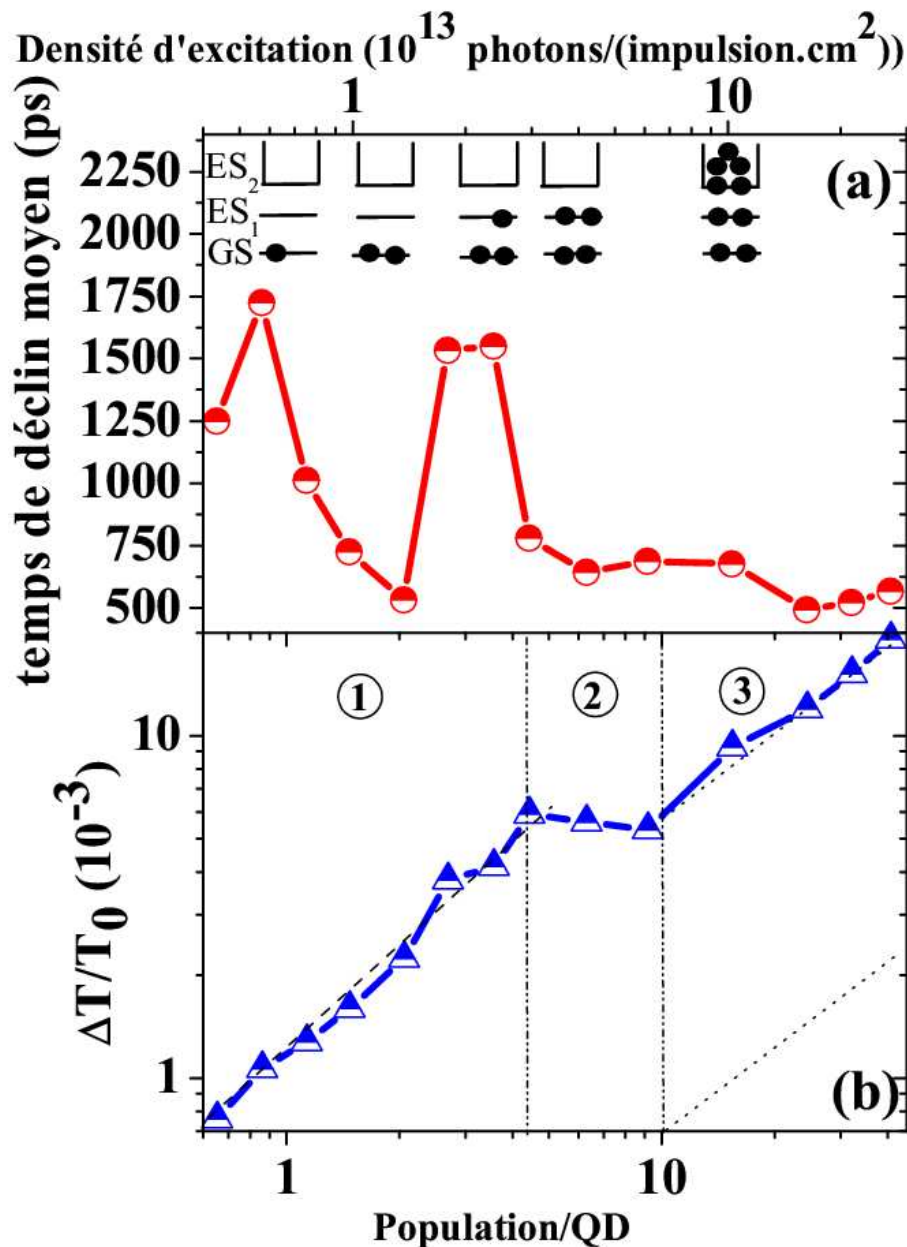


Figure 4-9: Dépendance des temps de déclin monoexponentielles (a) à 1.54  $\mu\text{m}$  (805 meV), et de la DTR (b) des boîtes quantiques en fonction de la densité d'excitation ( $10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup>) et de la population de porteurs par boîtes. La population de porteurs par boîtes est déduite de la puissance d'excitation par un facteur  $1.51 \times 10^{13}$ . Les tirets et pointillés permettent de faciliter la lecture de la figure.

Au-delà de  $4.0 \times 10^{13}$  p/p.cm<sup>2</sup>, le signal reste monoexponentiel avec une durée de vie constante ( $\sim 550$  ps). Ces valeurs mesurées de temps de déclin autour de 1700 ps et 500 ps correspondent approximativement à celles trouvées pour l'exciton (X) et le biexciton (XX) dans le système de boîtes quantiques InAs/GaAs ( $\tau_X \sim 1400$  ps –  $\tau_{XX} \sim 600$  ps), [Moreau01] et dans notre système ( $\tau_X \sim 1700$  ps).[Miska05] Afin d'interpréter les temps de déclin mesurés en terme de durées de vie des excitons et biexcitons, la correspondance entre les densités d'excitation et le nombre de porteurs de charges par boîte doit être connue.

Un calcul simple peut être réalisé en première approximation afin d'établir cette correspondance. Un coefficient de pertes par diffusion et réflexions sur les surfaces de l'échantillon a été mesuré (69 %). En tenant compte du coefficient d'absorption linéaire des boîtes quantiques déterminé dans le chapitre 2 ( $4400 \text{ cm}^{-1}$ ), et de l'épaisseur des couches actives de 3 nm, répétées sur 72 plans, [CornetAPL04] l'intensité absorbée dans l'échantillon est égale à 9 % de l'intensité incidente. Un coefficient d'efficacité quantique représentant la part de porteurs photo-générés qui sont effectivement capturés par les boîtes quantiques est égal à 0.27. Ainsi, une correspondance peut être faite entre la densité d'excitation et la population de paires électron-trou par boîte (figure 4-9), en tenant compte de la densité surfacique de boîtes quantiques. Des longs temps de déclin sont ainsi mesurés pour 1 et 3 paires électron-trou par boîte, alors que des temps de déclin plus courts sont mesurés lorsqu'on a 2 ou plus de 4 paires de porteurs par boîtes. Ceci permet donc d'attribuer aux excitons et triexcitons (trois excitons par boîte) des fortes valeurs de temps de déclin, et d'attribuer aux biexcitons et multiexcitons (d'ordre supérieur à 3) des faibles valeurs de temps de déclin. [Dekel00] En effet, si une dégénérescence de 2 (dégénérescence de spin) est attribuée à l'état fondamental  $E_0$ , et au premier état excité  $E_1$ , chaque niveau d'énergie peut être rempli avec deux porteurs de charges (cf. partie 4.1.1.b). Comme il est montré sur le schéma en encart de la figure 4-9, 1 paire de porteur par boîte correspond à la configuration excitonique sur l'état fondamental, et trois paires de porteurs de charge correspond à une configuration triexcitonique, i.e. un biexciton sur l'état fondamental, et un exciton sur l'état excité. En toute rigueur, le « triexciton », état à trois paires par boîte, ainsi que tous les multiexcitons ne peuvent être séparés en différentes contributions excitoniques ou biexcitoniques. Toutefois, nous verrons par la suite qu'au vu des mesures effectuées, nous pouvons supposer que la configuration triexcitonique considérée est constituée d'un exciton et d'un biexciton indépendants. Avec la même approche simple, 2 ou 4 paires de porteurs par boîte correspondent à une configuration biexcitonique ou quadriexcitonique. La configuration quadriexcitonique sera donc également comprise en première approximation comme la contribution de deux biexcitons indépendants.

Au regard de ces nouvelles considérations, la figure 4-9 peut être réinterprétée (cf. figure 4-1 (a) et (b) et encart de la figure 4-9). La pompe, centrée à 805 meV, excite à la fois l'état fondamental, et l'état excité. Pour de faibles puissances d'excitation, les porteurs injectés sur l'état excité redescendent très rapidement (canal de relaxation non-radiatif) sur l'état fondamental. Pour des faibles densités d'excitation, la durée de vie de l'exciton est alors

mesurée ( $\tau_x^0 = 1720$  ps). Lorsque la puissance augmente, la population excitonique sur l'état fondamental commence à saturer. La durée de vie du biexciton sur l'état fondamental est alors mesurée ( $\tau_{xx}^0 = 530$  ps), suivie en principe à des temps plus longs par le temps de vie de type excitonique. Mais la fenêtre temporelle ( $< 600$  ps avec le système de mesure actuel), ne permet pas d'obtenir cette mesure. En augmentant encore la puissance d'excitation, on mesure un mélange des durées de vie associées au biexciton sur l'état fondamental, et à l'exciton sur l'état excité ( $\tau_x^1 = 1550$  ps), car le détecteur intègre les deux transitions. Le canal de relaxation non-radiative entre l'état excité et l'état fondamental est alors fermé à cause du blanchiment de l'état fondamental. Enfin, pour des densités d'excitation plus fortes, la durée de vie du biexciton sur le premier état excité est probablement mesuré ( $\tau_{xx}^1 = 550$  ps). Cette interprétation devra toutefois être complétée par des liens avec la structure électronique calculée, tenant compte de la forme réelle de nos boîtes quantiques.

En augmentant la puissance de pompe au-delà de 4 porteurs de charges par boîte, le blanchiment de l'exciton sur le deuxième état excité  $E_2$  devrait être observé. Etant donné le faible confinement dans les boîtes quantiques InAs/InP (chapitre 2), les états de plus haute énergie sont probablement resserrés, et doivent former une sorte de continuum.[CornetPRB05] [Kammerer02] Nous supposons ici que le deuxième niveau d'énergie excité est contenu dans un niveau d'énergie réservoir, hautement dégénéré. Ceci permet d'interpréter la mesure. La pompe (et la sonde), centrée à 805 meV, excite la transition fondamentale (795 meV), et la transition excitée (809 meV), mais aussi cette transition entre niveaux réservoirs (817 meV), à cause de la largeur spectrale conséquente de l'impulsion laser : 10 meV. Sur un tel niveau réservoir hautement dégénéré, un temps de déclin de type excitonique ne peut être mesuré, car le niveau considéré absorbe à la fois la pompe et la sonde dans un premier temps. En effet, étant donné le nombre d'états accessibles sur ce niveau d'énergie réservoir, un exciton photo-généré dans ce niveau sera très loin de saturer ce niveau, et ne participe donc pas à la transmission différentielle. Il faut alors un grand nombre de porteurs avant d'arriver à saturer le niveau. La valeur maximale de porteurs par boîte donnée sur la figure 4-9 est 40. Toutefois, ce chiffre est déterminé à l'aide du coefficient d'absorption linéaire, alors que dans cette gamme de mesures, nous sommes dans un régime à priori fortement non-linéaire.

La figure 4-9 (b) représente la DTR mesurée au maximum des courbes de temps de déclin. Trois domaines sont visibles sur la courbe (notés 1,2,3, sur la figure 4-9 (b)). Le premier domaine correspond à la transmission différentielle engendrée par l'absorption de la transition

fondamentale, et de la première transition excitée. Le domaine 2 montre la saturation de ces deux niveaux, à travers une DTR plus ou moins constante, sur une gamme d'injection de 6 porteurs par boîte environ. Parallèlement à cette situation, une partie de la pompe et de la sonde est absorbée par le niveau réservoir situé au-dessus, où il est possible de stocker plus de deux porteurs par boîte. Pour une population totale supérieure à 10 porteurs par boîte, le niveau réservoir, à cause de sa propre saturation, commence à laisser passer une partie de la sonde. Ainsi, dans le domaine 3 de la courbe, la DTR réaugmente une fois de plus. Les valeurs mesurées de DTR devraient pouvoir être comparées avec le coefficient d'absorption mesuré. Toutefois, en raison de la différence de modes opératoires entre les deux expériences, ainsi que de la différence entre les échantillons étudiés, il semble pour l'instant difficile de faire un lien direct entre la DTR et le coefficient d'absorption.

*Une mesure des durées de vie radiative de l'exciton et du biexciton a ainsi été exposée dans cette partie. Les valeurs ainsi mesurées sont d'environ 1700 ps pour l'exciton, et 500 ps pour le biexciton.*

*Plus généralement, ce chapitre de thèse a permis de montrer que l'étude de la dynamique des transitions dans les boîtes quantiques était de première importance pour la compréhension des phénomènes mis en jeux lors de l'utilisation des composants optoélectronique à boîtes quantiques sous haute fréquence de modulation. Un procédé expérimental pompe-sonde a été mis en place ici afin de mesurer les temps de déclin de l'exciton et du biexciton. Le procédé ainsi développé devra par la suite être améliorée, notamment par l'incorporation des boîtes quantiques en microcavités.*

---

# CONCLUSION

---

## *Récapitulatif des principaux résultats*

Ce travail de thèse porte principalement sur l'étude de la structure électronique et optique des boîtes quantiques sur substrat InP, tant d'un point de vue expérimental, que théorique.

Le chapitre 0 est une introduction sur les enjeux, les intérêts et les limitations de l'utilisation des boîtes quantiques dans les composants optoélectroniques. Ce chapitre présente les processus d'élaboration des boîtes quantiques par épitaxie, et en particulier, l'intérêt d'utiliser des boîtes quantiques InAs/InP pour l'émission à la longueur d'onde des télécommunications optiques : 1.55  $\mu\text{m}$ .

Le chapitre 1 décrit les travaux théoriques sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques indépendantes réalisés dans le cadre de cette thèse. Des calculs de type **k•p** 1 bande ont ainsi été menés sur différents types de boîtes quantiques. Pour les boîtes quantiques InAsSb/InP nous prévoyons une émission de lumière à des longueurs d'onde entre 2 et 3.5  $\mu\text{m}$ , utiles pour la détection de gaz, ou encore la transmission d'informations en espace libre. Des calculs de type **k•p** 8 bandes ont été réalisés en coopération avec la TU Berlin, afin de décrire la structure fine des boîtes quantiques InAs/InP, en comparant les deux substrats (100) et (311)B.

Le chapitre 2 expose ensuite les travaux expérimentaux menés pour mesurer des constantes fondamentales dans les boîtes quantiques. Les techniques expérimentales de mesure d'absorption FTIR, de photoluminescence, et de magnéto-photoluminescence sont d'abord présentées (réalisées en partie à la KU Leuven). Les résultats obtenus à l'aide de ces moyens de caractérisations sont exposés. Le coefficient d'absorption des boîtes quantiques a ainsi été mesuré et est égal à 4400  $\text{cm}^{-1}$  à la longueur d'onde de 1.55  $\mu\text{m}$ . Les rayons de Bohr, énergies de liaison et masses effectives réduites de l'exciton ont ensuite été déterminés par magnéto-

photoluminescence sur différents échantillons. Il est ainsi démontré que, de manière surprenante, le confinement latéral dans les boîtes quantiques est moins bon en utilisant de l'InP, plutôt qu'un alliage quaternaire Q1.18 de plus petit gap. L'effet d'inter-diffusion entre l'InAs et l'InP est proposé pour analyser ce résultat.

Le chapitre 3 présente une étude complète sur le couplage latéral électronique entre les boîtes quantiques lorsque celles-ci sont utilisées en fortes densités. Les méthodes de croissance pour atteindre des fortes densités sont ainsi décrites dans un premier temps. Une méthode de calcul originale dans l'espace réciproque a ensuite été développée afin de décrire la structure électronique de tels réseaux de boîtes quantiques. Il est ainsi montré que la couche de mouillage joue un rôle primordial pour la structure électronique des boîtes quantiques InAs/InP en fortes densités. Une série de mesures de magnéto-photoluminescence, de photoluminescence, et d'électroluminescence viennent confirmer que les boîtes quantiques dans un tel système sont effectivement couplées.

Le chapitre 4 concerne la dynamique des recombinaisons radiatives dans les boîtes InAs/InP. Des simulations à l'aide d'un modèle de réservoirs, réalisées dans le cadre de cette thèse, montrent la nécessité de bien connaître les durées de vie des porteurs dans les boîtes quantiques. Le montage expérimental de pompe-sonde résonante utilisé est ensuite présenté et détaillé. Les mesures réalisées sur un échantillon à forte absorbance (72 plans) de boîtes quantiques InAs/InP montrent que les durées de vie de l'exciton et du biexciton dans l'état fondamental sont respectivement égales à 1720 ps et 530 ps.

#### *Perspectives*

Cette thèse, dans le prolongement de la thèse de P. Miska réalisée au laboratoire, a permis d'améliorer la compréhension des propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques InAs/InP.

- Du point de vue théorique, ce travail de thèse a permis d'améliorer nettement les approches utilisées jusqu'à présent, et de décrire notamment la structure fine des boîtes quantiques. Une comparaison avec des résultats expérimentaux sur les boîtes quantiques uniques pourrait permettre de conforter ces nouveaux résultats. Ainsi, de futures expériences réalisées en collaboration avec d'autres laboratoires devraient nous permettre d'accéder à la structure fine des boîtes quantiques InAs/InP. D'autre part, la prédiction théorique de l'émission de boîtes quantiques InAsSb/InP jusqu'à 3.5  $\mu\text{m}$  doit encore être validée expérimentalement.

- D'un point de vue expérimental, la magnéto-photoluminescence ainsi que la photoluminescence en puissance et polarisation ont apporté beaucoup de renseignements sur les propriétés de confinement de nos boîtes quantiques. Cela a permis d'établir des hypothèses sur des mécanismes de croissance jusque là méconnus dans notre système et en particulier l'« interdiffusion InAs/InP ». Ces résultats ont été confirmés par la suite de manière assez démonstrative par des observations structurales en X-STM. Il reste maintenant à sonder le confinement vertical des boîtes quantiques, et à réaliser une étude plus complète en photoluminescence polarisée. Cette étude est déjà en cours au laboratoire. Les études structurales par X-STM sont également en cours de réalisation, afin de mieux comprendre la technique du double cap.
- Ce travail de thèse a également permis d'utiliser des techniques expérimentales présentes au laboratoire, afin de mesurer de nouveaux paramètres concernant les boîtes quantiques. Ainsi, la spectroscopie par transformée de Fourier (FTIR) a permis de réaliser des mesures d'absorption. Cette mesure pourra être reproduite par la suite sur d'autres nanostructures (fils, ...). Les mesures de dynamique réalisées en pompe-sonde résonante ont également été appliquées pour la première fois aux boîtes quantiques. Ces mesures encore incomplètes sont toutefois encourageantes. La mise en cavité des boîtes quantiques permettra notamment d'étudier l'intérêt de celles-ci pour les absorbants saturables.
- Enfin, la question du couplage latéral est un sujet unique dans la bibliographie concernant les boîtes quantiques. Toutes les mesures expérimentales présentées dans le chapitre 3 demandent à être confirmées par d'autres études. Il est possible d'envisager à court terme des mesures de photoluminescence polarisée à basse température par exemple, ou encore des mesures de diffusion (mobilité) des porteurs de charge sur une surface contenant des boîtes quantiques en forte densité.





---

# ANNEXES

---

L'annexe A détaille les équations d'évolution du modèle décrit qualitativement au chapitre 4. L'annexe B est une liste des publications liées ce travail de thèse. L'annexe C présente les références bibliographiques utilisées dans le manuscrit.

# Annexe A : Equations d'évolution

Les équations de dynamiques pour le modèle de paires décrit chapitre 4 sont reportées ci-dessous :

$$\frac{dN_{CM}}{dt} = \frac{I}{eV_{CM}} + K' \left( \frac{V_D}{V_{CM}} \right) (A_{CM1} + C_{CM1}N_{CM})N_1 - \left( 1 - \frac{V_{boite}N_1}{4} \right) (A_{CM1} + C_{CM1}N_{CM})N_{CM} - \frac{N_{CM}}{\tau_{sp}^{CM}} - \left( 1 - \frac{V_{boite}N_0}{2} \right) (A_{CM1} + C_{CM1}N_{CM})N_{CM}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = \left( \frac{V_{CM}}{V_D} \right) \left( 1 - \frac{V_{boite}N_1}{4} \right) (A_{CM1} + C_{CM1}N_{CM})N_{CM} + KN_0 \left( 1 - \frac{V_{boite}N_1}{4} \right) (A_{10} + C_{10}N_{CM}) - K'N_1(A_{CM1} + C_{CM1}N_{CM}) - \frac{N_1}{\tau_{sp}^1} - \left( 1 - \frac{V_{boite}N_0}{2} \right) N_1(A_{10} + C_{10}N_{CM}) - V_G S_1 a(N_1 - 4N_D)$$

$$\frac{dN_0}{dt} = \left( 1 - \frac{V_{boite}N_0}{2} \right) N_1(A_{10} + C_{10}N_{CM}) - KN_0 \left( 1 - \frac{V_{boite}N_1}{4} \right) (A_{10} + C_{10}N_{CM}) - \frac{N_0}{\tau_{sp}^0} + \left( 1 - \frac{V_{boite}N_0}{2} \right) (A_{CM1} + C_{CM1}N_{CM})N_{CM} \left( \frac{V_{CM}}{V_D} \right) - V_G S a(N_0 - 2N_D)$$

$$\frac{dS_0}{dt} = \Gamma V_G S_0 a(N_0 - 2N_D) - \frac{S_0}{\tau_p} + \beta_{sp} \Gamma \frac{N_0}{\tau_{sp}^0}$$

$$\frac{dS_1}{dt} = \Gamma V_G S_1 a(N_1 - 4N_D) - \frac{S_1}{\tau_p} + \beta_{sp} \Gamma \frac{N_1}{\tau_{sp}^1}$$

Avec :

$$K = \frac{\rho_1}{\rho_0 e^{\left( \frac{E_1 - E_0}{k_B T} \right)}}$$

$$K' = \frac{W L m_e^* k_B T}{2 \rho_1 N_D V_D \pi \hbar^2 e^{\left( \frac{E_B - E_1}{k_B T} \right)}}$$

Et :

$$\frac{1}{\tau_{0 \rightarrow 1}} = K(A_{10} + C_{10}N_{cm})$$

$$\frac{1}{\tau_{1 \rightarrow cm}} = K'(A_{cm1} + C_{cm1}N_{cm})$$

Les coefficients utilisés dans la simulation sont :

- 1°-  $V_{cm} = 1.06e-11 \text{ cm}^3$ , volume effectif de la barrière pour l'injection (contenant notamment la couche de mouillage)
- 2°-  $V_d = 1.7e-11 \text{ cm}^3$ , volume total de l'ensemble des boîtes quantiques
- 3°-  $V_{boite} = 1.92e-18 \text{ cm}^3$  volume d'une boîte quantique
- 4°-  $\rho_i$  dégénérescence du niveau  $i$
- 5°-  $\beta_{sp} = 8.69e-5$  coefficient pour l'émission spontanée
- 6°-  $A_{cm1} = 1.35e10 \text{ s}^{-1}$  coefficient de relaxation des porteurs à partir de la barrière par émission de phonons
- 7°-  $C_{cm1} = 5e-9 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  coefficient de relaxation des porteurs à partir de la barrière assistée par effet Auger
- 8°-  $A_{10} = 1e10 \text{ s}^{-1}$  coefficient de relaxation des porteurs à partir du réservoir 1 vers le niveau 0 par émission de phonons
- 9°-  $C_{10} = 9e-8 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  coefficient de relaxation des porteurs à partir de la barrière assistée par effet Auger
- 10°-  $\tau_{sp}^{cm} = 500 \text{ ps}$  temps de vie des porteurs dans la barrière
- 11°-  $\tau_{sp}^1 = 500 \text{ ps}$  temps de vie des porteurs dans le réservoir 1
- 12°-  $\tau_{sp}^0 = 1200 \text{ ps}$  temps de vie des porteurs dans le réservoir 0
- 13°-  $\tau_p = 2.77e-12 \text{ ps}$  coefficient de pertes dans la cavité laser
- 14°-  $E_{cm} = 1.05 \text{ eV}$  Energie de la barrière
- 15°-  $E_1 = 0.98 \text{ eV}$  Energie de la transition optique associée au réservoir 1
- 16°-  $E_0 = 0.94 \text{ eV}$  Energie de la transition optique associée au réservoir 0
- 17°-  $N_D = 2.5e17 \text{ cm}^{-3}$  densité volumique de boîtes quantiques
- 18°-  $m_e^* = 4.1e-32 \text{ kg}$  masse de l'électron
- 19°-  $T = 298 \text{ K}$  température considérée
- 20°-  $V_g = 7.14286e9 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  vitesse de groupe de l'onde lumineuse en cavité
- 21°-  $a = 4.6e-14 \text{ cm}^2$  gain différentiel
- 22°-  $L = 0.6e-9 \text{ m}$  épaisseur de la couche de mouillage
- 23°-  $W = 1e-6 \text{ m}$  dimension latérale de la surface considérée
- 24°-  $\Gamma = 3e-3$  coefficient de recouvrement entre boîtes quantiques et onde électromagnétique
- 25°-  $e = 1.602e-19 \text{ C}$  charge de l'électron
- 26°-  $h = 6.626e-34 \text{ J} \cdot \text{s}$  constante de Planck
- 27°-  $k_B = 1.38e-23 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$  constante de Boltzmann

# Annexe B : Publications

- F. Doré, **C. Cornet**, P. Caroff, I. Alghoraibi, A. Ballestar, C. Labbé, R. Piron, O. Dehaese, J. Even and S. Loualiche., « First observation of 2.4  $\mu\text{m}$  photoluminescence of InAsSb quantum dots on InP substrate » *phys. stat. sol. (c)*, in press (2006).
- **C. Cornet**, A. Schliwa, M. Hayne, N. Chauvin, F. Doré, J. Even, V. V. Moshchalkov, D. Bimberg, G. Bremond, C. Bru-Chevallier, M. Gendry and S. Loualiche, « InAs/InP quantum dots : from single to coupled dots applications », *phys. stat. sol. (c)*, in press (2006).
- J. Even, **C. Cornet** and F. Doré  
"A model for anisotropic Coulomb screening : application to Auger relaxation by 2D and 3D charge carriers in a quantum dot – wetting layer system "  
*Physical Review B*, submitted (2006).
- **C. Cornet**, A. Schliwa, J. Even, F. Doré, C. Celebi, A. Létoublon, E. Macé, C. Paranthoen, A. Simon, P. M. Koenraad, N. Bertru, D. Bimberg and S. Loualiche  
"Electronic and optical properties of InAs/InP quantum dots on InP (100) and (311)B substrates: Theory and experiment"  
*Physical Review B* **74**, 035312 (2006).
- **C. Cornet**, M. Hayne, P. Caroff, C. Levallois, L. Joulaud, E. Homeyer, C. Paranthoen, J. Even, C. Labbé, H. Folliot, V. V. Moshchalkov and S. Loualiche  
"Increase of charge carrier redistribution efficiency in a laterally organized superlattice of coupled quantum dots"  
*Physical Review B*, submitted (2006).
- **C. Cornet**, C. Labbé, H. Folliot, P. Caroff, C. Levallois, O. Dehaese, J. Even, A. Le Corre, S. Loualiche  
"Time-resolved pump-probe of 1.55  $\mu\text{m}$  InAs/InP quantum dots under high resonant excitation"  
*Applied Physics Letters* **88**, 171502 (2006).
- **C. Cornet**, C. Levallois, P. Caroff, H. Folliot, C. Labbé, J. Even, A. Le Corre, S. Loualiche, M. Hayne and V. V. Moshchalkov  
"Impact of the capping layers on lateral confinement in InAs/InP quantum dots for 1.55 microns laser applications studied by magneto-photoluminescence"  
*Applied Physics Letters* **87**, 233111 (2005)  
also selected in virtual journal of nanoscale science and technology **12**, issue 24, (2005).
- **C. Cornet**, F. Doré, A. Ballestar, J. Even, N. Bertru, A. Le Corre and S. Loualiche  
"InAsSb/InP quantum dots for midwave infrared emitters : a theoretical study"  
*Journal of Applied Physics* **98**, 126105 (2005).
- J. Even, **C. Cornet**, S. Loualiche  
"A theoretical model for quantum nanostructures electronic wave functions, magnetic field effects"  
*Physica E* **28**, 514 (2005).
- **C. Cornet**, C. Platz, P. Caroff, J. Even, C. Labbé, H. Folliot, A. Le Corre, and S. Loualiche  
"Approach to wetting-layer-assisted lateral coupling of InAs/InP quantum dots"  
*Physical Review B* **72**, 035342 (2005).  
also selected in virtual journal of nanoscale science and technology **12**, issue 5, (2005).
- **C. Cornet**, J. Even, and S. Loualiche  
"Exciton and biexciton binding and vertical Stark effect in a model lens-shaped quantum box: Application to InAs/InP quantum dots"  
*Physics Letters A* **344**, 457 (2005).
- **C. Cornet**, C. Labbé, H. Folliot, N. Bertru, O. Dehaese, J. Even, A. Le Corre, C. Paranthoen, C. Platz and S. Loualiche  
"Quantitative investigations of optical absorption in InAs/InP (311)B quantum dots emitting at 1.55 microns wavelength"  
*Applied Physics Letters* **85**, 5685 (2004).  
also selected in virtual journal of nanoscale science and technology **10**, issue 25, (2004).

# Annexe C : Bibliographie

- [Adachi82] S. Adachi, *J. Appl. Phys.* **53**, 5863 (1982).
- [Adamiec04] P. Adamiec, A. Salhi, R. Bohdan, A. Bercha, F. Dybala, W. Trzeciakowski, Y. Rouillard, and A. Joullié, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4292 (2004).
- [Akiyama05] T. Akiyama, M. Ekawa, M. Sugawara, K. Kawaguchi, S. Hisao, A. Kuramata, H. Ebe, Y. Arakawa, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **17**, 1614 (2005).
- [Alèn03] B. Alèn, F. Bickel, K. Karrai, R. J. Warburton and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2235 (2003).
- [Alferov98] Zh. I. Alferov, *Quantum Wires and Dots show the Way Forward (III-Vs Rev., 1998)*, Vol.11, p. 47.
- [Altarelli86] M. Altarelli, *Band Structure, Impurities and Excitons in Superlattices, Heterojunctions and Semiconductors Superlattices*, édité par Allan et al. (Springer, Berlin, 1986).
- [Arakawa84] Y. Arakawa, H. Sakari, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1984).
- [Asada86] M. Asada, Y. Miyamoto and Y. Suematsu, *IEEE J. Quantum Electron.* **22**, 1915 (1986).
- [Asaro89] R. J. Asaro and W. A. Tiller, *Metall. Trans.* **3**, 1789 (1972).
- [Asryan02] L. V. Asryan and R. A. Suris, *International Journal of High Speed Electronics and Systems* **12**, 111 (2002).
- [Asryan03] L. V. Asryan and S. Luryi, *Solid-State Electronics* **47**, 205 (2003).
- [Bahder90] T. B. Bahder, *Phys. Rev. B* **41**, 11992 (1990).
- [Bahder92] T. B. Bahder, *Phys. Rev. B* **45**, 1629 (1992).
- [Bahder95] T. B. Bahder, *Phys. Rev. B* **51**, 10892 (1995).
- [Baier04] M. H. Baier, E. Pelucchi, E. Kapon, S. Varoutsis, M. Gallart, I. Robert-Philip and I. Abram, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 648 (2004).
- [Banyai93] L. Banyai and S.W. Koch, *Semiconductor Quantum Dots, World Scientific Series on Atomic, Molecular and Optical Physics* (Singapore, New Jersey, London, Hong-Kong, World Scientific, 1993), Vol. 2.
- [Baraff91] G. A. Baraff, D. Gershoni, *Phys. Rev. B* **43**, 4011 (1991).
- [Bastard84] G. Bastard, C. Delalande, M. H. Meynadier, P. M. Frijlink and M. Voos, *Phys. Rev. B* **29**, 7042 (1984).
- [Bastard88] G. Bastard, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures* (Les Editions de Physique, Les Ulis, 1988).
- [Bayer02] M. Bayer and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **65**, 041308(R) (2002).
- [Bennett84] C. H. Bennett, and G. Brassard, *Proceedings of IEEE International conference on Computer Systems and Signal Processing, Bangalore, India*, p. 175 (1984).
- [Berg01] T. W. Berg, S. Bischoff, I. Magnusdottir and J. Mork, *IEEE Photonics Technol. Lett.* **13**, 541, (2001).
- [Bester05] G. Bester and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **71**, 045318 (2005).
- [Bimberg03] D. Bimberg and C. Ribbat, *Microelectron. J.* **34**, 323 (2003).
- [Bimberg05] D. Bimberg, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, 2055 (2005).
- [Bimberg98] D. Bimberg, M. Grundmann, and N.N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures* (Chichester: Wiley, 1998).

- [Bir74] G. L. Bir, G. E. Pikus, *Symmetry and Strain-Induced Effects in Semiconductors* (Wiley, New York, 1974).
- [Blood00] P. Blood, IEEE J. Quant. Elec. **36**, 354 (2000).
- [Bogaart05] E. W. Bogaart, R. Notzel, Q. Gong, J. E. M. Haverkort, and J. H. Wolter, Appl. Phys. Lett. **86**, 173109 (2005).
- [Bruls02] D. M. Bruls, J. W. A. M. Vugs, P. M. Koenraad, H. W. M. Salemink, J. H. Wolter, M. Hopkinson, M. S. Skolnick, F. Long and S. P. A. Gill, Appl. Phys. Lett. **81**, 1708 (2002).
- [Bryant89] G. W. Bryant, Phys. Rev. B **40**, 1620 (1989).
- [Carlin92] J. F. Carlin, A. Rudra, R. Houdré, P. Rutenara, M. Ilegems, J. Cryst. Growth **120**, 155 (1992).
- [CaroffAPL05] P. Caroff, C. Paranthoen, C. Platz, O. Dehaese, H. Folliot, N. Bertru, C. Labbé, R. Piron, E. Homeyer, A. Le Corre and S. Loualiche, Appl. Phys. Lett. vol. **87**, 243107 (2005).
- [CaroffJCG05] P. Caroff, C. Platz, O. Dehaese, C. Paranthoen, N. Bertru, A. Le Corre and S. Loualiche, J. Cryst. Growth **278**, 329 (2005).
- [CaroffJCG05b] P. Caroff, N. Bertru, C. Platz, O. Dehaese, A. Le Corre and S. Loualiche, J. Cryst. Growth **273**, 357 (2005).
- [CaroffJJAP05] P. Caroff, N. Bertru, A. Le Corre, T. Rohel, I. Alghoraibi, H. Folliot and S. Loualiche, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, L1069 (2005).
- [CaroffTh05] P. Caroff, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (2005).
- [Chelikowski76] J. R. Chelikowski, M. L. Cohen, Phys. Rev. B **14**, 556 (1976).
- [Chen04] J. C. Chen, A. M. Chang and M. R. Melloch, Phys. Rev. Lett. **92**, 176801 (2004).
- [Chuang95] S. L. Chuang, *Physics of Optoelectronic Devices* (John Wiley, New York, 1995).
- [Cohen73] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F. Laloë, *Mécanique quantique* (Hermann, 1973)
- [Cohen89] M. Cohen and J. Chelikowski, *Electronic Structure and Optical Properties of Semiconductors*, (Springer, Berlin, 1989).
- [Colocci99] M. Colocci, A. Vinattieri, L. Lippi, F. Bogani, M. Rosa-Clot, S. Taddei, A. Bosacchi, S. Franchi and P. Frigeri, Appl. Phys. Lett. **74**, 564 (1999).
- [CornetAPL04] C. Cornet, C. Labbé, H. Folliot, N. Bertru, O. Dehaese, J. Even, A. Le Corre, C. Paranthoen, C. Platz and S. Loualiche, Appl. Phys. Lett. **85**, 5685 (2004).
- [CornetAPL05] C. Cornet, C. Levallois, P. Caroff, H. Folliot, C. Labbé, J. Even, A. Le Corre, S. Loualiche, M. Hayne and V. V. Moshchalkov, Appl. Phys. Lett. **87**, 233111 (2005).
- [CornetAPL06] C. Cornet, C. Labbé, H. Folliot, P. Caroff, C. Levallois, O. Dehaese, J. Even, A. Le Corre and S. Loualiche, Appl. Phys. Lett. **88**, 171502 (2006).
- [CornetJAP05] C. Cornet, F. Doré, A. Ballestar, J. Even, N. Bertru, A. Le Corre and S. Loualiche, J. Appl. Phys. **98**, 126105 (2005).
- [CornetPLA05] C. Cornet, J. Even, S. Loualiche, Physics Letters A **344**, 457 (2005).
- [CornetPRB05] C. Cornet, C. Platz, P. Caroff, J. Even, C. Labbé, H. Folliot, A. Le Corre and S. Loualiche, Phys. Rev. B **72**, 035342 (2005).
- [CornetPRB06] C. Cornet, A. Schliwa, J. Even, F. Doré, C. Celebi, A. Létoublon, E. Macé, C. Paranthoen, A. Simon, P. M. Koenraad, N. Bertru, D. Bimberg and S. Loualiche, Phys. Rev. B **74**, 035312 (2006).
- [CornetPRB06b] C. Cornet, M. Hayne, P. Caroff, C. Levallois, L. Joulaud, E. Homeyer, C. Paranthoen, J. Even, C. Labbé, H. Folliot, V. V. Moshchalkov and S. Loualiche, submitted to Phys. Rev. B (2006).
- [CornetPSS06] C. Cornet, A. Schliwa, M. Hayne, N. Chauvin, F. Doré, J. Even, V. V. Moshchalkov, D. Bimberg, G. Bremond, C. Bru-Chevallier, M. Gendry and S. Loualiche, phys. stat. sol. (c) (2006), in press.
- [Cusack97] M. A. Cusack, P.R. Briddon and M. Jaros, Phys. Rev. B **56**, 4047 (1997).
- [DeCaro93] L. De Caro and L. Tapfer, Phys. Rev. B **48**, 2298 (1993).

- [DeGironcoli89] S. de Gironcoli, S. Baroni, R. Resta, Phys. Rev. Lett. **62**, 2853 (1989).
- [DeGironcoli90] S. de Gironcoli, S. Baroni, R. Resta, Ferroelectrics **111**, 19 (1990).
- [Dekel00] E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, J. M. Garcia, and P. M. Petroff, Phys. Rev. B **61**, 11009 (2000).
- [Diu89] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer and B. Roulet, *Physique statistique* (Hermann, 1989).
- [Doré06] F. Doré, C. Cornet, A. Schliwa, A. Ballestar, J. Even, N. Bertru, O. Dehaese, I. Alghoraibi, H. Folliot, R. Piron, A. Le Corre and S. Loualiche, phys. Stat. Sol. (c) **3**, 524 (2006).
- [Ducommun04] Y. Ducommun, M. Kroutvar, M. Reimer, M. Bichier, D. Schuh, G. Abstreiter and J. J. Finley, Appl. Phys. Lett. **85**, 2592 (2004).
- [Enders95a] P. Enders, phys. stat. sol. (b) **187**, 541 (1995).
- [Enders95b] P. Enders, A. Bärwolff, M. Woerner, D. Suiskey, Phys. Rev. B **51**, 16695 (1995).
- [Even03] J. Even and S. Loualiche, J. Phys. A : Math. Gen. **36**, 11677 (2003).
- [Even05] J. Even, C. Cornet, S. Loualiche, Physica E **28**, 514 (2005).
- [Fafard00] S. Fafard, M. Spanner, J.P. McCaffrey and Z.R. Waslewski, Appl. Phys. Lett. **76**, 2268 (2000).
- [Faist94] J. Faist, F. Carpasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, Science **264**, 553 (1994).
- [Faist98] J. Faist, F. Carpasso, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu and A. Y. Cho, Appl. Phys. Lett. **72**, 680 (1998).
- [Folliot98] H. Folliot, S. Loualiche, B. Lambert, V. Drouot and A. Le Corre, Phys. Rev. B **58**, 10700 (1998).
- [Folliot99] H. Folliot, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (1999).
- [Fossard04] F. Fossard, A. Helman, G. Fishman, F. H. Julien, J. Brault, M. Gendry, E. Peronne, A. Alexandrou, S. E. Schacham, G. Bahir and E. Finkman, Phys. Rev. B **69**, 155-333 (2004).
- [Foxon03] C. T. Foxon J. Cryst. Growth. **251**, 1 (2003).
- [Fréchengues98] S. Fréchengues, Thèse de Doctorat de l'INSA de Rennes, (1998).
- [Fréchengues99] S. Fréchengues, V. Drouot, N. Bertru, B. Lambert, S. Loualiche and A. Le Corre, J. Cryst. Growth. **201-202**, 1180 (1999).
- [Fréchengues99b] S. Fréchengues, N. Bertru, V. Drouot, B. Lambert, S. Robinet, S. Loualiche, D. Lacombe and A. Ponchet, Appl. Phys. Lett. **74**, 3356 (1999).
- [Fry00] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafagi, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill and J. C. Clark, Phys. Rev. Lett. **84**, 733 (2000).
- [Gendry04] M. Gendry, C. Monat, J. Brault, P. Regreny, G. Hollinger, B. Salem, G. Guillot, T. Benyattou, C. Bru-Chevallier, G. Bremond and O. Marty, J. Appl. Phys. **95**, 4761 (2004).
- [Gérard95] J. M. Gérard : "Prospects of high efficiency QDs obtained by direct epitaxial growth", NATO Asi Series vol. **340**, 357 (1995).
- [Gérard99] J. M. Gérard, A. Lemaître, B. Legrand, A. Ponchet, B. Gayral, V. Thierry-Mieg, J. Cryst. Growth **201**, 1109 (1999).
- [Gershoni93] D. Gershoni, C. Henry, G. Baraff, IEEE J. Quant. Elec. **29**, 2433 (1993).
- [Gicquel04] M. Gicquel-Guézo, S. Loualiche, J. Even, C. Labbé, O. Dehaese, A. Le Corre, H. Folliot and Y. Pellan, Appl. Phys. Lett. **85**, 5926 (2004).
- [Gong04] Q. Gong, P. Offermans, R. Nötzel, P. M. Koenraad and J. H. Wolter, Appl. Phys. Lett. **85**, 5697 (2004).
- [Grilhé93] J. Grilhé, Europhys. Lett. **23**, 141 (1993).
- [Grinfield86] M. A. Grinfield, Dokl. Akad. Nauk. SSSR **280**, 1358 (1986).
- [Grundmann00] M. Grundmann, Appl. Phys. Lett. **77**, 1428 (2000).



- [Grundmann95] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg, Phys. Rev. B **52**, 11969 (1995).
- [Grundmann95b] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Bohrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gosele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, and Z. I. Alferov, Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).
- [Grundmann96] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev and Zh. I. Alferov, Appl. Phys. Lett. **68**, 979 (1996).
- [Guezo03] M. Guézo, S. Loualiche, J. Even, A. Le Corre, H. Folliot, C. Labbé, O. Dehaese, and G. Dousselin, Appl. Phys. Lett. **82**, 1670 (2003).
- [Guezo03b] M. Guézo, A. Marceaux, S. Loualiche, J. Even, A. Le Corre, O. Dehaese and Y. Pellan, J. Appl. Phys. **94**, 2355 (2003).
- [Guezo04] M. Guézo, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (2004).
- [Guffarth01] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, N. N. Ledentsov, A. R. Kovsh, V. M. Ustinov and D. Bimberg, Phys. Rev. B **64**, 085305 (2001).
- [Gunawan05] O. Gunawan, H. S. Djie and B. S. Ooi, Phys. Rev. B **71**, 205319 (2005).
- [Hayne00] M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. M. Manz, K. Eberl and V. V. Moshchalkov, Phys. Rev. B **62**, 10324 (2000).
- [Hayne04] M. Hayne, J. Maes, S. Bersier, M. Henini, L. Müller-Kirsch, R. Heitz, D. Bimberg and V. V. Moshchalkov, Physica B **346**, 421 (2004).
- [Heitz00] R. Heitz, O. Stier, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar and D. Bimberg, Phys. Rev. B **62**, 11017 (2000).
- [Heitz05] R. Heitz, F. Guffarth, K. Pötschke, A. Schliwa, D. Bimberg, N. D. Zakharov and P. Werner, Phys. Rev. B **71**, 045325 (2005).
- [Henderson95] R. H. Henderson and E. Towe, J. Appl. Phys. **78**, 2447 (1995).
- [Hu90] Y. Z. Hu, M. Lindberg and S. W. Koch, Phys. Rev. B **42**, 1713 (1990).
- [Hübner73] K. Hübner, phys. stat. sol. (b) **57**, 627 (1973).
- [Jang04] J. W. Jang, S. H. Pyun, S. H. Lee, I. C. Lee, W. G. Jeong, R. Stevenson, P. D. Dapkus, N. J. Kim, M. S. Hwang and D. Lee, Appl. Phys. Lett. **85**, 3675 (2004).
- [Jang06] Y.D. Jang, E.G. Lee, J.S. Yim, D. Lee, W.G. Jeong, S.H. Pyun and J.W. Wang, Appl. Phys. Lett. **88**, 091920 (2006).
- [Janssens01] K. L. Janssens, B. Partoens and F. M. Peeters, Phys. Rev. B **64**, 5324 (2001).
- [Janssens01b] K. L. Janssens, F. M. Peeters and V. A. Schweigert, Phys. Rev. B **63**, 205311 (2001).
- [Johnson02] H. T. Johnson, V. Nguyen and A. F. Bower, J. Appl. Phys. **92**, 4653 (2002).
- [Johnson03] H. T. Johnson, R. Bose, H. D. Robinson and B. B. Goldberg, Appl. Phys. Lett. **82**, 3382 (2003).
- [Joulaud06] L. Joulaud, et al. « Screening and quantum confined Starck effect in InAs/InP QDs », unpublished (2006).
- [Joullié03] A. Joullié, OPTO 2003 PARIS EXPO, « Faut-il développer une nano-optoélectronique moyen infra-rouge ? », [www.clubnano.asso.fr/opto/documents/Joullie.pdf](http://www.clubnano.asso.fr/opto/documents/Joullie.pdf)
- [Kammerer01] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol and J. M. Gérard, Phys. Lett. **87**, 207401 (2001).
- [Kammerer02] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, A. Lemaitre, and J. M. Gérard, Phys. Rev. B **65**, 033313 (2002).
- [Kammerer02b] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel and J. M. Gérard, Phys. Rev B **66**, 041306 (R) (2002).
- [Kammerer02c] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, M. Perrin, C. Delalande, Ph. Roussignol and J. M. Gérard, Appl. Phys. Lett. **81**, 2737 (2002).
- [Kane82] E. O. Kane, dans Handbook on Semiconductors Vol. I, édité par W. Paul (North Holland, Amsterdam 1982).

- [Karachinsky05] L. Ya. Karachinsky, T. Kettler, N. Yu. Gordeev, I. I. Novikov, M. V. Maximov, Yu. M. Shernyakov, N. V. Kryzhanoskaya, A. E. Zhukov, E. S. Semenova, A. P. Vasilev, V. M. Ustinov, N. N. Ledentsov, A. R. Kovsh, V. A. Shchukin, S. S. Mikhrin, A. Lochmann, O. Schulz, L. Reissmann, and D. Bimberg, *Electron. Lett.* **41**, No.8 (2005).
- [Kim03] J. G. Kim, L. Shterengas, R. U. Martinelli, and G. L. Belenky, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1926 (2003).
- [Klopf01] F. Klopff, R. Krebs, J. P. Reithmaier and A. Forchel, *IEEE Photonics Technol. Lett.* **13**, 764 (2001).
- [Knill01] E. Knill, R. Laflamme et G. J. Milburn, *Nature* **409**, 46 (2001).
- [Krenner05] H. J. Krenner, M. Sabathil, E. C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter and J. J. Finley, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 057402 (2005).
- [Landolt82] Landolt-Börnstein, *Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*, New Series (Springer, Berlin, 1982), Vol. **III/17a**.
- [Le Goff93] S. Le Goff and B. Stébé, *Phys. Rev. B* **47**, 1383 (1993).
- [Lee04] S. Lee, O. L. Lazarenkova, P. V. Allmen, F. Oyafuso and G. Klimeck, *Phys. Rev. B* **70**, 125307 (2004).
- [Lelarge05] F. Lelarge, B. Rousseau, B. Dayens, F. Poingt, F. Pommereau, A. Accard, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **17**, 1369 (2005).
- [Létoublon04] A. Létoublon, V. Favrenicolin, H. Renevier, M. G. Proietti, C. Monat, M. Gendry, O. Marty and C. Priester, *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004).
- [Ley74] L. Ley, R. A. Pollak, F. R. McFeely, S. P. Kowalczyk, D. A. Shirley, *Phys. Rev. B* **9**, 600 (1974).
- [Li94] S. S. Li and J. B. Xia, *Phys. Rev. B* **50**, 8602 (1994).
- [Lippen04] T. V. Lippen, R. Nötzel, G. J. Hamhuis and J. H. Wolter, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 118 (2004).
- [Liu00] G. T. Liu, A. Stintz, H. Li, T. C. Newell, A. L. Gray, P. M. Varangis, K. J. Malloy and L. F. Lester, *IEEE J. Quantum Electron.* **36**, 1272 (2000).
- [Maes04] J. Maes, Thèse de doctorat de la «Katholieke Universiteit Leuven», (2004).
- [Maes04b] J. Maes, M. Hayne, Y. Sidor, B. Partoens, F. M. Peeters, Y. Gonzalez, L. Gonzalez, D. Fuster, J. M. Garcia and V. V. Moshchalkov, *Phys. Rev. B* **70**, 155311 (2004).
- [Maes04c] J. Maes, M. Hayne, M. Henini, F. Pulizzi, A. Patané, L. Eaves and V.V. Moshchalkov, *Physica B* **346-347**, 428 (2004).
- [Marceaux01] A. Marceaux, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (2001).
- [Markus02] A. Markus, A. Fiore, J. D. Ganiere, U. Oesterle, J. X. Chen, B. Deveaud, M. Ilegems, and H. Riechert, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 911 (2002).
- [Markus05] A. Markus, M. Rossetti, V. Calligari, J. X. Chen and A. Fiore, *J. Appl. Phys.* **98**, 104506 (2005).
- [Marzin94] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Israël, B. Barrier and G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 716 (1994).
- [Matsuda00] K. Mukai, Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3349 (2000).
- [Matsuda01] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito, N. Nishi, *Phys. Rev. B* **63**, 121304(R) (2001).
- [Mazur01] Yu I. Mazur, J. W. Tomm, V. Petrov, G. G. Tarasov, H. Kissel, C. Walther, Z. Ya Zhuchenko, and W. T. Masselink, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3214 (2001).
- [Melnik02] R. V. N. Melnik and M. Willatzen, dans *Proceedings of the 2002 International Conference on Modeling and Simulation of Microsystems*, (Nano Science and Technology Institute, 2002), p. 506-509.
- [Metzner98] C. Metzner, M. Hofmann and G. H. Döhler, *Phys. Rev. B* **58**, 7188 (1998).
- [Miska03] P. Miska, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (2003).

- [Miska03b] P. Miska, J. Even, C. Paranthoen, O. Dehaese, H. Folliot, S. Loualiche, M. Senes and X. Marie, *Physica E (Amsterdam)* **17**, 56 (2003).
- [Miska04] P. Miska, J. Even, C. Platz, B. Salem, T. Benyattou, C. Bru-Chevalier, G. Guillot, G. Bremond, Kh. Moumanis, F. H. Julien, O. Marty, C. Monat and M. Gendry, *J. Appl. Phys.* **95**, 1074 (2004).
- [Miska05] P. Miska, J. Even, C. Paranthoen, O. Dehaese, A. Jibeli, M. Senes and X. Marie, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 111905 (2005).
- [MiskaJPC02] P. Miska, C. Paranthoen, J. Even, N. Bertru, A. Le Corre and O. Dehaese, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, 12301 (2002).
- [MiskaSST02] P. Miska, C. Paranthoen, J. Even, O. Dehaese, H. Folliot, N. Bertru, S. Loualiche, M. Senes and X. Marie, *Semicond. Sci. Technol.* **17**, L63 (2002).
- [Moreau01] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gerard, and I. Abram, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 183601 (2001).
- [Moreau02] E. Moreau, Thèse de doctorat de l'université Paris VI, (2002).
- [Müller96] P. Müller and R. Kern, *Appl. Surf. Sci.* **102**, 6 (1996).
- [Nichols80] D. N. Nichols, D. S. Riman and R. J. Sladek, *Solid State Commun.* **36**, 667 (1980).
- [OffermansphysE05] P. Offermans, P. M. Koenraad, J. H. Wolter, K. Pierz, M. Roy and P. A. Maksym, *Physica E* **26**, 236 (2005).
- [OffermansPRB05] P. Offermans, P. M. Koenraad, J. H. Wolter, K. Pierz, M. Roy and P. A. Maksym, *Phys. Rev. B* **72**, 165332 (2005).
- [Oishi97] M. Oishi, M. Yamamoto and K. Kasaya, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **9**, 431 (1997).
- [Paranthoen01] C. Paranthoen, N. Bertru, O. Dehaese, A. Le Corre, S. Loualiche, B. Lambert and G. Patriarche, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1751 (2001).
- [Paranthoen02] C. Paranthoen, N. Bertru, B. Lambert, O. Dehaese, A. Le Corre, J. Even, S. Loualiche, F. Lissilour, G. Moreau and J.-C. Simon, *Semicond. Sci. Technol.* **17**, L5 (2002).
- [Paranthoen03] C. Paranthoen, C. Platz, G. Moreau, N. Bertru, O. Dehaese, A. Le Corre, P. Miska, J. Even, H. Folliot, C. Labbé, G. Patriarche, J. C. Simon and S. Loualiche, *J. Cryst. Growth* **251**, 230 (2003).
- [ParanthoenTh01] C. Paranthoen, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (2001).
- [Patanè00] A. Patanè, A. Levin, A. Polimeni, F. Schindler, P. C. Main, L. Eaves and M. Henini, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2979 (2000).
- [Patanè00b] A. Patanè, A. Levin, A. Polimeni, L. Eaves, P. C. Main, M. Henini and G. Hill, *Phys. Rev. B* **62**, 11084 (2000).
- [Petterson99] H. Petterson, R. J. Warburton, J. P. Kotthaus, N. Carlsson, W. Seifert, M.-E. Pistol and L. Samuelson, *Phys. Rev. B* **60**, R11289 (1999).
- [Platz04] C. Platz, Thèse de doctorat de l'INSA de Rennes, (2004).
- [Platz05] C. Platz, C. Paranthoen, N. Bertru, C. Labbé, J. Even, O. Dehaese, H. Folliot, A. Le Corre, S. Loualiche, G. Moreau, J. C. Simon and A. Ramdane, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, 459 (2005).
- [Ponchet96] A. Ponchet, A. Le Corre, H. L'Haridon, B. Lambert, S. Salaün, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1850 (1996).
- [Popescu04] D. P. Popescu, G. P. Eliseev, A. Stintz, and K. J. Malloy, *Semicond. Sci. Technol.* **19**, 33 (2004).
- [Povolotskiy04] M. Povolotskiy, A. Di Carlo, P. Lugli, S. Birner and P. Vogl, *IEEE transactions on nanotechnology* **3**, 124 (2004).
- [Provoost99] R. Provoost, M. Hayne, V.V. Moshchalkov, M.K. Zundel and K. Eberl, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 799 (1999).
- [Pryor99] C. Pryor, *Phys. Rev. B* **60**, 2869 (1999).

- [Qiu04] Y. Qiu, D. Uhl and S. Keo, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 263 (2004).
- [Rastelli04] A. Rastelli, S. Stufler, A. Schliwa, R. Songmuang, C. Manzano, G. Costantini, K. Kern, A. Zrenner, D. Bimberg and O. G. Schmidt, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 166104 (2004).
- [Rastelli04] A. Rastelli, S. Stufler, A. Schliwa, R. Songmuang, C. Manzano, G. Costantini, K. Kern, A. Zrenner, D. Bimberg and O. G. Schmidt, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 166104 (2004).
- [Raymond03] S. Raymond, S. Studenikin, S. J. Cheng, M. Pioro-Ladière, M. Ciorga, P. J. Poole and M. D. Robertson, *Semicond. Sci. Technol.* **18**, 385 (2003).
- [Raymond04] S. Raymond, S. Studenikin, A. Sachrajda, Z. Wasilewski, S. J. Cheng, W. Sheng, P. Hawrylak, A. Babinski, M. Potemski, G. Ortner and M. Bayer, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 187402 (2004).
- [Robinson00] H. D. Robinson and B. B. Goldberg, *Physica E* **6**, 444 (2000).
- [Robinson01] H. D. Robinson, B. B. Goldberg and J. L. Merz, *Phys. Rev. B* **64**, 075308 (2001).
- [Robinson99] H. D. Robinson, B. B. Goldberg and J. L. Merz, in *Proceedings of the Materials Research Society* **571**, 89 (1999).
- [Rodt05] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **71**, 155325 (2005).
- [Rosencher98] E. Rosencher et B. Vinter, « Optoélectronique », Enseignement de la physique, Masson, Paris (1998).
- [Rullière98] C. Rullière, “Femtosecond laser pulses: principle and experiments”, Ed. Springer-Berlag Berlin Heidelberg (1998).
- [Saada89] A. S. Saada, *Elasticity : Theory and applications* (Robert E. Krieger Publishing Co., Florida, 1989).
- [Saint-Girons06] G. Saint-Girons, N. Chauvin, A. Michon, G. Patriarche, G. Beaudoin, G. Brémond, C. Bru-Chevallier, I. Sagnes, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 133101 (2006).
- [Saito00] H. Saito, K. Nishi, A. Kamei, and S. Sugou, *IEEE Photonics Technol. Lett.* **12**, 1298 (2000).
- [Saito01] H. Saito, K. Nishi and S. Sugou, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 267 (2001).
- [Salem03] B. Salem, G. Bremond, T. Benyattou, C. Bru-Chevallier, G. Guillot, C. Monat, A. Gendry, G. Hollinger, A. Jbeli, and X. Marie, *Physica E* **17**, 124 (2003).
- [Sanguinetti00] S. Sanguinetti, M. Gurioli, E. Grilli, M. Guzzi and M. Henini, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1982 (2000).
- [Sauvage02] S. Sauvage, P. Boucaud, R. P. S. M. Lobo, F. Bras, G. Fishman, R. Prazeres, F. Glotin, J. M. Ortega, J. –M. Gérard, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 177402 (2002).
- [Schmidt97] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, J. Garcia and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1727 (1997).
- [Schwertberger02] R. Schwertberger, D. Gold, J. P. Reithmaier and A. Forchel, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **14**, 735 (2002).
- [Seguin05] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl, and D. Bimberg, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 257402 (2005).
- [Shcheckin02] O. B. Shcheckin, and D. G. Deppe, *IEEE Photonics Technol. Lett.* **14**, 1231 (2002).
- [Sidor06] Y. Sidor, B. Partoens, F.M. Peeters, N. Schildermans, M. Hayne, V.V. Moshchalkov, A. Rastelli and O.G. Schmidt, *Phys. Rev. B* (in press).
- [Solomon96] G.S. Solomon, J.A. Trezza, A.F. Marshall and J.S. Harris Jr., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 952 (1996).
- [Stier00] O. Stier, Thèse de doctorat de la « Technischen Universität Berlin », (2000).
- [Stier99] O. Stier, M. Grundmann and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **59**, 5688 (1999).
- [Sugawara05] M. Sugawara, N. Hatori, H. Ebe, M. Ishida, Y. Arakawa, T. Akiyama, K. Otsubo and Y. Nakata, *J. Appl. Phys.* **97**, 043523 (2005).

- [Sugawara99] M. Sugawara, *Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots, Semiconductors and Semimetals* (Toronto: Academic, 1999), Vol. 60.
- [Temko03] Y. Temko, T. Suzuki, P. Kratzer, and K. Jacobi, *Phys. Rev. B* **68**, 165310 (2003).
- [Tersoff93] J. Tersoff and R. Tromp, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2782 (1993).
- [Tersoff94] J. Tersoff and F. K. LeGoues, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3570 (1994).
- [Tersoff96] J. Tersoff, C. Teichert and M. G. Lagally, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1675 (1996).
- [Tkach00] N. V. Tkach, A. M. Makhanets and G. G. Zegrya, *Semicond. Sci. Technol.* **15**, 395 (2000).
- [Tomasini98] P. Tomasini, K. Arai, F. Lu, Z. Q. Zhu, T. Sekiguchi, M. Suezawa, T. Yao, M. Y. Shen, T. Goto, T. Yasuda and Y. Segawa, *J. Appl. Phys.* **83**, 4272 (1998).
- [Utzmeier97] T. Utzmeier, G. Armelles, P.A. Postigo and F. Briones, *Phys. Rev. B* **56**, 3621 (1997).
- [Varoutsis05] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Krampfer, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip and I. Abram, *Phys. Rev. B* **72**, 041303(R) (2005).
- [Vurgaftman01] I. Vurgaftman, J. R. Meyer and L. R. Ram-Mohan, *J. Appl. Phys.* **89**, 5815 (2001).
- [Wang00] L. W. Wang, A. J. Williamson, A. Zunger, H. Jiang and J. Singh, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 339 (2000).
- [Wang05] Zh. M. Wang, Y. I. Mazur, Sh. Seydmohamadi, G. J. Salamo and H. Kissel, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 213105 (2005).
- [Wang99] L. W. Wang, J. Kim and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **59**, 5678 (1999).
- [Warburton97] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro and M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997).
- [Weisbuch93] C. Weisbuch, *J. Vac. Sci. Technol. A* **12**, 1191 (1993).
- [Xia90] J. B. Xia, *Phys. Rev. B* **43**, 9856 (1990).
- [Xu01] H. Z. Xu, K. Akahane, H. Z. Song, Y. Okada and M. Kawabe, *J. Crystal Growth* **233**, 639 (2001).
- [Yu96] P. Y. Yu, M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors* (Springer, 1996).
- [Zeller74] G. R. Zeller, *phys. stat. sol. (b)* **65**, 521 (1974).
- [Zhang05] W. Zhang, H. Lim, M. Taguchi, S. Tsao, B. Movaghar and M. Razeghi, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 191103 (2005).
- [Zhang94] Y. Zhang, *Phys. Rev. B* **49**, 14352 (1994).
- [Zhu05] C. Zhu, Y. G. Zhang, A. Z. Li, and Y. L. Zheng, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, 563 (2005).
- [Zory93] P. S. Zory, *Quantum well lasers, Quantum electronics – Principles and applications*, academic Press, (1993).
- [Zundel97] M.K. Zundel, P. Specht, K. Eberl, N.Y. Jin-Phillipp and E. Phillipp, *Appl. Phys Lett.* **71**, 2972 (1997).

INSA de Rennes  
Service des formations

### AVIS DU JURY SUR LA REPRODUCTION DE LA THESE SOUTENUE

**Titre de la thèse :** Propriétés électroniques, optiques et dynamiques de boîtes quantiques auto-organisées et couplées sur substrat InP.

**Nom Prénom de l'auteur :** CORNET Charles

Membres du jury : Monsieur BOUCAUD  
Monsieur BREMOND  
Monsieur EVEN  
Monsieur CALVO  
Monsieur HAYNE  
Monsieur POHL

Président du jury :

*Udo Pohl*

Date de la soutenance : 27/06/2006

Reproduction de la thèse soutenue :

- Thèse pouvant être reproduite en l'état  
 Thèse ne pouvant être reproduite  
 Thèse pouvant être reproduite après corrections suggérées

Le Directeur,

*A. JIGOREL*  
A. JIGOREL

Rennes, le 27/06/2006

Signature du Président du jury

*U. Pohl*







## Résumé:

Cette thèse est consacrée à l'étude des boîtes quantiques sur substrat InP. Ces boîtes sont étudiées d'abord d'un point de vue théorique par une méthode de calcul de type  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  à huit bandes. L'influence de la composition de la boîte (InAs ou InAsSb) ainsi que celle du substrat ((311)B ou (100)) est analysée en vue d'applications télécoms ou pour la détection de gaz entre 1.5 et 5  $\mu\text{m}$ . L'étude de ces boîtes quantiques est ensuite réalisée d'un point de vue expérimental. Des techniques de spectroscopie variées (photoluminescence, magnéto-photoluminescence, spectroscopie d'absorption) sont utilisées afin de déterminer les constantes fondamentales des boîtes quantiques. Il est ainsi montré que l'utilisation d'un alliage quaternaire InGaAsP comme matériau de recouvrement des boîtes est un choix judicieux pour les applications lasers. Dans un tel alliage, de fortes densités surfaciques de boîtes quantiques engendrent un couplage électronique latéral. Les temps caractéristiques associés à la dynamique des niveaux d'énergie dans les boîtes quantiques sont mesurés, et les conséquences sur les composants à boîtes quantiques sont discutées.

## Abstract:

This thesis deals with the understanding of InAs quantum dots on InP substrate. These dots are first studied from a theoretical point of view, by a eight-band  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  calculation. The impact of the dot composition (InAs or InAsSb) and of the substrate orientation ((311)B or (100)) on quantum dots optical properties is analyzed for telecoms or gas detection applications between 1.5 and 5  $\mu\text{m}$ . These quantum dots are then studied experimentally. Various experimental spectroscopic setups have been used (photoluminescence, magneto-photoluminescence, absorption spectroscopy) in order to determine fundamental constants of our quantum dots. It is then demonstrated that using a quaternary alloy InGaAsP is a judicious choice for laser applications. In such an alloy, high quantum densities generate electronic lateral coupling. Decay times of quantum dots energy levels are measured, and consequences for quantum dots-based devices are discussed.

## Mots-clefs :

- Boîtes quantiques
- Calculs  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$
- Magnéto-photoluminescence
- Coefficient d'absorption
- Applications laser
- Couplage latéral
- Dynamiques des transitions optiques
- Structure électronique
- Propriétés optiques