



HAL
open science

États collectifs et dispositifs basés sur les excitons indirects dans des puits quantiques à grand gap

François Chiaruttini

► **To cite this version:**

François Chiaruttini. États collectifs et dispositifs basés sur les excitons indirects dans des puits quantiques à grand gap. Physique [physics]. Université Montpellier, 2020. Français. NNT : 2020MONT029 . tel-02959699v2

HAL Id: tel-02959699

<https://theses.hal.science/tel-02959699v2>

Submitted on 17 Feb 2021

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.

**THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER**

En Spécialité : Physique

École doctorale : Information, Structures, Systèmes

Unité de recherche : Laboratoire Charles Coulomb UMR 5221

**États collectifs et dispositifs basés sur les excitons
indirects dans des puits quantiques à grand gap**

Présentée par François CHIARUTTINI

Le 9 juillet 2020

**Sous la direction de Maria VLADIMIROVA
et Thierry GUILLET**

Devant le jury composé de

Alberto BRAMATI, Professeur des Universités, LKB (Paris)

Bernhard URBASZEK, Directeur de recherche, LPCNO (Toulouse)

Guillaume CASSABOIS, Professeur des Universités, L2C (Montpellier)

François DUBIN, Chargé de recherche, INSP (Paris)

Maria VLADIMIROVA, Directeur de recherche, L2C (Montpellier)

Thierry GUILLET, Professeur des Universités, L2C (Montpellier)

Benjamin DAMILANO, Chargé de recherche, CRHEA (Nice)

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Directeur de thèse

Directeur de thèse

Membre invité



**UNIVERSITÉ
DE MONTPELLIER**

À mon père,



Remerciements

Pourquoi s'engager dans un travail de thèse ? Est-ce par curiosité, par goût du défi, ou pour le plaisir de s'engager dans trois années faites de labeur, de petites victoires, de surprises, de joies, mais aussi parfois de désillusions. . . Peut-être est-ce tout simplement, comme répondit G. H. L. Mallory à qui on demandait pourquoi il voulait escalader les montagnes, « parce qu'elles sont là ».

Cette thèse est le fruit d'un travail collectif, j'ai donc à cœur de remercier tous les gens qui m'ont accompagné, qui m'ont conseillé ou aidé de diverses manières. Si ce travail est parvenu à son terme, c'est essentiellement grâce à eux, compagnons de cordée, auxquels j'exprime ici ma gratitude.

En tout premier lieu, je tiens à remercier Masha Vladimirova qui m'a proposé ce sujet passionnant alliant dernières avancées technologiques dans le domaine des nanostructures et phases émergentes en physique fondamentale. Lorsque nous évoquions les futures expériences susceptibles de mettre en évidence la nature fine des excitons dipolaires, Masha a toujours eu les yeux qui brillaient : quel plaisir de travailler avec une personne aussi passionnée ! Masha m'a beaucoup appris, il va sans dire, non seulement dans le domaine de la physique des excitons mais également en termes de méthodes de travail et d'organisation. Pour avoir accepté de m'encadrer durant ces trois années, de m'avoir donné les directions générales tout en me laissant suffisamment d'initiatives, pour avoir toujours répondu présente dans les moments difficiles, je la remercie très sincèrement.

Thierry Guillet fut pour moi un « faiseur de la lumière », au sens propre comme au figuré. J'ai évidemment beaucoup appris en salle de manipe en sa présence, recevant tant et tant d'explications à propos de la subtilité de certains réglages, de l'ingénierie photonique, sur les principes élémentaires de l'optique (soi-disant bien connus de tous. . .), ou encore lors de mon expérience initiatique à l'art de la cryogénie. Thierry est parvenu à rendre accessible des concepts qui me dépassaient : au cours de ma thèse, je tentais désespérément de dompter un ouvrage modestement intitulé « Optoélectronique », n'y voyant qu'une liste absconse d'équations mathématiques, Thierry m'a offert une grille de lecture toute simple à partir de laquelle l'ensemble est devenu limpide. Pour cela, pour la justesse de ses remarques, ses nombreux encouragements, et pour la confiance qu'il m'a accordé, je le remercie vivement.

Je remercie chaleureusement les rapporteurs Alberto Bramati et Bernhard Urbaszek ainsi que les autres membres du jury Guillaume Cassabois, François Dubin et Benjamin Damilano qui ont accepté de faire la relecture critique de mon manuscrit et d'être présents à la soutenance même si les conditions sanitaires ont empêché la tenue d'un



pot de thèse digne de ce nom.

Je remercie également toutes les personnes de l'équipe OECS, avec lesquelles j'ai passé du temps en salle de manipe : Laetitia, Christelle, Steeve et Denis qui m'ont donné les techniques pour améliorer les montages, parfaire les réglages et ont su m'encourager de diverses façons. Je garde également un très bon souvenir des séances du vendredi après-midi, où Pierre Lefebvre m'injectait de bonnes piqûres de « rappels » sur les hétérostructures tout en assurant ma formation de base en techniques numériques, pour cela je lui suis très reconnaissant. Je remercie également Thierry Bretagnon qui a su parfaire ma connaissance des jonctions Schottky et m'initier aux techniques des mesures capacitives.

Je remercie également tous les autres membres du laboratoire avec lesquels j'ai interagi et qui ont contribué à l'aboutissement de ce travail : Benoît pour son aide lors des mesures sous pointes, Christophe Coillot pour les mesures capacitives et les multiples projets vertueux que nous avons évoqués, Christophe Conséjo pour sa très grande réactivité et toute l'expertise qu'il a apportée notamment dans la conception cryogénique, ainsi que toutes les autres personnes impliquées dans la conception et la fabrication des pièces mécaniques ou électroniques et la préparation des échantillons : Alban, Christian, Rémi et Christophe Roblin. Un grand merci également à toutes les personnes de l'axe PEPS que j'ai côtoyées et qui m'ont fourni de l'aide : Isabelle, Brahim, Mauro, Bernard, Anaïs, . . . Je suis très reconnaissant à Pierre Valvin pour toutes les explications qu'il m'a données sur le fonctionnement de la chaîne d'excitation laser ainsi que pour le soutien qu'il m'a fourni lorsque je montais mon dossier de candidature pour un poste IR. Merci également à Patrick, Jean-Christophe, Vincent, Stéphanie et toutes les autres personnes du L2C avec lesquelles j'ai travaillé.

A Valbonne, j'ai eu la chance de collaborer avec Sébastien Chenot, Yvon Cordier et Benjamin Damilano du CRHEA. Je les remercie vivement pour l'accueil sympathique qu'il m'ont réservé. Tous mes remerciements également à Jérôme Tignon du LPA qui m'a généreusement initié à la spectroscopie térahertz. Enfin, je tenais à remercier Suzanne Dang et François Dubin pour l'accueil qu'ils m'ont réservé à l'INSP, la présentation exhaustive de leur belle manipe ainsi que pour les discussions très enrichissantes que nous avons eues.

Je garderai un souvenir ému de la salle des doctorants dans laquelle j'ai élu domicile durant ces trois années : Chahine, Kévin, Miggang, Anthony et Pierre ont été les compagnons doctorants avec lesquels j'ai le plus échangé : nos discussions nombreuses, portant sur des sujets variés (et parfois scientifiques. . .), sont très probablement plus fécondes qu'elles ne peuvent sembler de prime abord. J'ai toujours pris part à ces échanges avec grand plaisir et je pense sincèrement qu'ils contribuent à donner du sens à notre travail au quotidien, condition *sine qua non* de la réussite d'un doctorat. Cela permet



également de se poser les bonnes questions, le doctorat ne devant évidemment pas se limiter à la production d'un manuscrit bien structuré. Je souhaite une bonne continuation à tous les autres non-permanents que j'ai côtoyé au L2C et tout particulièrement à Chahine qui m'a apporté beaucoup plus qu'il ne le pense et avec qui j'ai eu la chance de partager deux succès bien mérités. Je lui souhaite le meilleur pour la suite ainsi qu'à sa famille.

En dernier lieu, je remercie mes anciens collègues et amis de Grenoble, de Lyon et de la région parisienne qui m'ont encouragé dans cette aventure. Je remercie très chaleureusement, mes frères, ma mère qui m'a tant soutenu, mes beaux parents pour leur patience avec nos enfants, ainsi que toute ma famille et, enfin et surtout, ma femme pour son inébranlable optimisme, sa résilience et sa patience sans laquelle je n'aurais jamais pu entreprendre ce travail.



Table des matières

Remerciements	iii
Liste des symboles	1
Introduction	5
1 Contexte général : physique des états collectifs	9
1.1 Condensation de Bose-Einstein	9
1.1.1 Bosons, symétrisation et indiscernabilité	9
1.1.2 Saturation des états excités et dimensionnalité	10
1.1.3 Critère de condensation	11
1.1.4 Effet de taille finie et caractéristiques de la transition	12
1.1.5 Dissociations thermique et entropique des excitons	13
1.2 Quelques condensats dans les semi-conducteurs	14
1.2.1 Liquide électrons-trous	15
1.2.2 Excitons indirects dans Cu_2O	16
1.2.3 Polaritons excitoniques	17
1.3 Fluides d'excitons dipolaires dans les puits quantiques	18
1.3.1 Puits quantiques couplés (CQW) dans GaAs	19
1.3.2 Transition de Mott	20
1.3.3 Diagramme de phase des excitons dipolaires	21
1.4 Excitons dipolaires dans les hétérostructures de Van der Waals	27
2 Excitons indirects dipolaires dans le nitrure de gallium	31
2.1 Cristal de GaN massif, excitons et structure fine	32
2.2 Puits quantique large et polarisation électrique	40
2.3 Effet du désordre et localisation	45
2.4 Magnéto-exciton	51
2.5 Échantillons	54
2.6 Techniques expérimentales	56
2.6.1 Microphotoluminescence	56



2.6.2	Macrophotoluminescence sous champ magnétique	58
2.6.3	Mesures électriques et contrôle du transport	59
3	Modélisation des IXs dans les puits quantiques larges	63
3.1	Environnement électrostatique du puits quantique dans la barrière métal/semi-conducteur	64
3.1.1	Hétérojonctions, polarisations spontanée et piézo	65
3.1.2	Interface semi-conducteur/vide	67
3.1.3	Interface semi-conducteur/métal	69
3.2	Transition interbande : densité de charges et champ électrique interne .	70
3.2.1	Résolution de l'équation de Schrödinger 1D	71
3.2.2	Résolution de l'équation de Poisson 1D	72
3.2.3	Résolution Poisson-Schrödinger couplée	72
3.2.4	Effet de la densité sur la photoluminescence du puits quantique	74
3.2.5	Désordre de monocouche	76
3.3	Calcul autocohérent variationnel de l'énergie de l'exciton	77
3.3.1	Méthode du potentiel effectif	77
3.3.2	Calcul variationnel autocohérent	81
3.3.3	Application : cas du puits quantique polaire de GaN	83
3.4	Modélisation des spectres d'émission spontanée du puits quantique .	89
3.4.1	Taux d'émission spontanée	90
3.5	Corrélations X-X répulsives et estimation du blueshift	101
3.5.1	Modèle capacitif	101
3.5.2	Équilibre local du gaz d'excitons corrélés	102
3.5.3	Hypothèses	103
3.5.4	Densité d'états bidimensionnelle de bosons et potentiel chimique	104
3.5.5	Potentiel chimique et profil de densité locale	105
3.5.6	Dépendance de l'énergie d'interaction avec la densité à température fixée	105
3.5.7	Discussion et perspectives	107
3.6	Thermodynamique de la coexistence entre plasma et excitons	109
3.6.1	Équation de Saha	109
3.6.2	Taux d'ionisation et dissociation entropique	110
3.6.3	Dépendance de l'énergie de l'exciton avec la densité – transition de Mott	110
3.6.4	Diagramme de phase : température, densité et hystérésis	113
3.7	Modèle « drift - diffusion » du transport excitonique	117



4	Piégeage des excitons dipolaires	119
4.1	Genèse des échantillons	120
4.2	Mise en évidence du piégeage	121
4.2.1	Transport excitonique en l'absence de piège	121
4.2.2	Accumulation des excitons dans un piège linéaire	125
4.2.3	Effet du piégeage sous plus forte injection de porteurs	129
4.3	Influence de la géométrie du piège	131
4.3.1	Images de PL pour différentes géométries de pièges	131
4.3.2	Etude par tomographies du transport 2D	135
4.4	Thermodynamique du gaz d'excitons à partir des spectres de PL	140
4.4.1	Influence de la densité sur les spectres de PL	140
4.4.2	Conditions optimales pour la réalisation d'un condensat excitonique	144
4.4.3	Modélisation de la dépendance en densité	148
4.5	Synthèse : effet du piégeage et capacité à explorer le diagramme de phase température-densité	155
5	Mesures sous champ magnétique : mise en évidence de la coexistence entre les phases excitonique et plasma	159
5.1	Motivations de l'étude sous champ magnétique	161
5.2	Luminescence sous champ magnétique	163
5.3	Décalage énergétique sous champ magnétique	167
5.4	Coexistence entre excitons et plasma EHP	171
5.5	Estimation des corrélations au sein de la phase excitonique	174
5.6	Synthèse : coexistence entre plasma et excitons, transition de Mott et transport sous champ magnétique	179
6	Mesures optiques sous polarisation : contrôle du piégeage et du trans- port	181
6.1	Caractérisations électriques des jonctions Schottky	182
6.1.1	Principes et protocoles des caractérisations I-V et C-V	182
6.1.2	Mesures I-V – discussion	187
6.1.3	Mesures C-V – discussion	188
6.2	Mesures optiques sous polarisation	190
6.2.1	Excitation dans le piège	191
6.2.2	Effet de la puissance d'excitation	201
6.2.3	Excitation sur l'électrode semi-transparente	204
6.2.4	Recombinaisons aux bords de piège	217
6.3	Synthèse : contrôle électrostatique du piégeage et du transport	220



7 Synthèse et perspectives	223
Conclusion	229
A Exciton : énergie et fonction d'onde propre	231
B Paramètres physiques	235
C Validation du modèle de spectre de PL e-h dans le cas de la couche active à puits quantique InGaN/GaN d'un laser à microdisque	237
C.1 Résultats de la modélisation et discussion	237
C.2 Échantillon et mesures	239
C.3 Résultats expérimentaux et discussion	240
D Loi de Saha à partir des statistiques quantiques	243
E Échantillons et structures de pièges	247
F Algorithme de résolution de l'équation de Schrödinger 1D	253
G Procédure d'extraction des paramètres de la raie de luminescence excitonique	255
H Modélisation du transport excitonique sous champ magnétique	257
I Développement technique du cryostat pour réaliser des mesures électriques	261
I.1 Conception mécanique et électrique	261
I.2 Assemblage	263
I.3 Validation des performances cryogéniques	264
Bibliographie	268
Résumé de la thèse en français/anglais	283



Abréviations

BE	Bose-Einstein (condensation)
BGR	renormalisation de la largeur de bande interdite
CQW	puits quantiques couplés
DX	transition excitonique directe
EHP	plasma électrons-trous
EHL	liquide électrons-trous
FWHM	largeur totale à mi-hauteur
GaN	nitride de gallium
hBN	nitride de bore de structure hexagonale
HEMT	transistor à haute mobilité électronique
I-V	courbe courant <i>vs</i> tension
C-V	courbe capacité <i>vs</i> tension
ML	épaisseur d'une monocouche épitaxiée
MBE	épitaxie par jet moléculaire sous ultra-vide
macroPL	expérience de macro-photoluminescence
microPL ou μ PL	expérience photoluminescence résolue en espace
image PL	luminescence spectralement et spatialement résolue
PL	émission de photoluminescence
PZB	Première Zone de Brillouin
QCSE	effet Stark quantique confiné
SMU	sourcemètre
TDD	densité de dislocations traversantes
TMD	dichalcogénures de métaux de transition
TRPL	photoluminescence résolue en temps
VTI	inset à température variable
X, IX	exciton, exciton indirect (Indirect eXciton)
ZCE	zone de charge d'espace
2DEG	gaz bidimensionnel d'électrons

Constantes physiques

e	charge élémentaire
ε_0	permittivité diélectrique du vide
\hbar	constante réduite de Planck
k_B	constante de Boltzmann



m_0	masse de l'électron libre au repos
R_y	constante infinie de Rydberg (pour un électron de masse m_0)
$\mu_B = e\hbar/2m_0$	magnéton de Bohr

Notations

Énergies

ΔE_F	écart entre les quasi-niveaux de Fermi d'électrons et de trous
E_0	énergie de la transition excitonique dans la limite des basses densités
E_{BGR}	énergie de gap « renormalisée »
E_B, R_y^*	énergie de liaison de l'exciton
$E_c(\mathbf{k}_\perp), (E_v(\mathbf{k}_\perp))$	relation de dispersion de la bande de conduction (valence)
E_{gap}	largeur énergétique de la bande interdite
$E_{\text{int}}, E_{\text{BS}}$	déplacement énergétique dû aux interactions répulsives X-X
E_1, H_1	état fondamental de l'électron (du trou) dans le puits quantique
$E_1 H_1$	énergie de la transition interbande entre les états E_1 et H_1
$E_c(z), E_v(z)$	énergie de la bande de conduction (de valence) dans la direction z
E_{e1}, E_{h1}	énergie de confinement quantique de l'électron, du trou
E_t	énergie de piégeage des excitons induite par les électrodes métalliques
$E_V(z), E_C(z)$	profils des bandes de valence, de conduction
E_X	énergie de la raie excitonique
μ, E_{Fe}, E_{Fh}	potentiel chimique des bosons, niveau de Fermi
Ω	intégrale de recouvrement pour la transition $E_1 H_1$
u_0, Φ_0	constante d'interaction exciton-excitons sans corrélations
Φ'_0	constante d'interaction exciton-excitons avec corrélations
$U(r), U_{dd}, U_{XX}(r)$	énergie d'interaction répulsive, entre deux dipôles, deux excitons
Δ_{cr}	levée de dégénérescence de champ cristallin

Masses

μ_X	masse réduite des excitons
m_{hh}^z, m_{hh}^\perp	masse des trous lourds dans la direction z , dans le plan
m_e^z, m_e^\perp	masse des électrons dans la direction z , dans le plan
$m_v^\perp (m_c^\perp)$	masse effective de la bande de valence (conduction)
M_X	masse totale de l'exciton
μ_X	masse réduite de l'exciton, $1/\mu_X = 1/m_e + 1/m_h$

Densités

n, n_X	densité de paires, densité d'excitons
----------	---------------------------------------



n_{Mott}	densité critique de Mott
$n_\ell(r, T, n)$	densité locale d'excitons
$\rho_{3\text{D}}(E), \rho_{2\text{D}}(E)$	densité d'états à 3D (à 2D)

Longueurs	
$a_B, a_B^{3\text{D}}, a_B^{2\text{D}}$	rayon de Bohr de l'exciton
α	pseudo-rayon de Bohr utilisée dans la méthode variationnelle
ℓ_D	longueur de Debye
Λ	distance moyenne entre deux excitons
λ_T	longueur d'onde thermique de De Broglie
L_{ZCE}	largeur de la zone de charge d'espace
L_w, L_B	largeur du puits quantique, des barrières
$r_0(T)$	distance minimale d'approche entre excitons, sans corrélations

Autres grandeurs	
D_X	constante de diffusion des excitons
$\tilde{\mu}_X$	mobilité des excitons
$\varepsilon, \varepsilon_W, \varepsilon_B$	constante diélectrique du matériau, puits, barrière
$f_{\text{FD}}(E, E_F, T)$	fonction de distribution de Fermi-Dirac
F_{IN}	champ électrique interne au puits quantique
F_W, F_B	champ électrique dans le puits, dans les barrières
$F_{\text{ex},\alpha}(\rho)$	partie radiale de la fonction d'essai excitonique
γ	constante d'écrantage exponentiel du taux d'émission radiatif
g_{spin}	dégénérescence de spin de l'exciton
g	taux de photo-génération de paires
$g(r)$	fonction de corrélation de paires
g_X	facteur de Landé de l'exciton
\mathbf{J}_{diff}	courant de diffusion
$\mathbf{J}_{\text{drift}}$	courant de <i>drift</i>
P_W, P_B	polarisation électrique totale dans le puits, dans les barrières
$P_{\text{spont}}, P_{\text{piezo}}$	polarisation électrique spontanée, piézo
$R_{\text{spont}}(\hbar\omega)$	taux d'émission spontanée à l'énergie $\hbar\omega$
$s \tau_{\text{rad}}, \tau_{\text{nrad}}$	durée de vie radiative, non-radiative
T_{car}, T	température des porteurs, température nominale de l'échantillon
x_{Al}	fraction massique en aluminium dans la barrière (AlGa)N
$u_{\mathbf{k}}^c(\mathbf{r}), u_{\mathbf{k}}^v(\mathbf{r})$	support de l'onde de Bloch de la bande de conduction, de valence



Introduction

Cette thèse a pour objectif d'évaluer le potentiel du nitrure de gallium (GaN) comme système matériel servant à la réalisation de différentes phases de matière décrites par la physique dite à N corps (« états collectifs »), ces phases étant constituées d'excitons indirects (IX) dans des puits quantiques polaires de semi-conducteurs à large bande interdite.

Les atomes sont considérés comme un système modèle pour l'étude des états collectifs dans les gaz quantiques bosoniques [1, 2]. Les IXs sont des particules bosoniques composites qui, de par leur masse plus légère, permettent d'avoir une température critique de condensation plus élevée ainsi qu'un moment dipolaire modulable [3]. Ils sont aussi prometteurs pour le développement de dispositifs excitoniques [4]. Leur durée de vie longue et l'interaction répulsive de nature dipolaire permettent aux IXs de se déplacer sur de grandes distances avant de se recombinaison, ce qui offre la possibilité d'étudier le transport d'excitons par imagerie optique. Il est possible de moduler spatialement le potentiel bidimensionnel ressenti par les excitons dans le plan du puits quantique en déposant une électrode métallique à la surface de la structure. Nous avons mis en œuvre cette idée, qui s'est montrée très fructueuse dans l'arséniure de gallium (GaAs), aux cas de structures polaires : cet effet de modulation du potentiel nous permet de contraindre les excitons à rester dans une zone que nous délimitons de manière à accroître la densité de ces particules qui, du fait la nature répulsive de leurs interactions mutuelles, ont tendance à s'étaler. Le piégeage est donc un moyen efficace pour créer de grandes densités d'excitons froids.

Notre objectif est de réaliser des pièges aptes à concentrer un grand nombre d'excitons froids et ainsi favoriser l'émergence d'un comportement collectif basé sur leurs propriétés quantiques. Un pas important a ainsi été fait vers la réalisation des gaz froids et denses : la **démonstration du piégeage** est le premier des objectifs majeurs de cette thèse. Le second de ces objectifs est de démontrer le **contrôle du piégeage, via l'application d'une tension électrique**. Le troisième objectif est d'explorer le plan « température *vs* densité » du **diagramme de phase** de ces particules bosoniques, afin d'en apprendre le plus possible sur la nature de leurs états excitoniques. Le manuscrit résume ces efforts.

Nous avons conçu de nombreux pièges électrostatiques de géométries variées. La



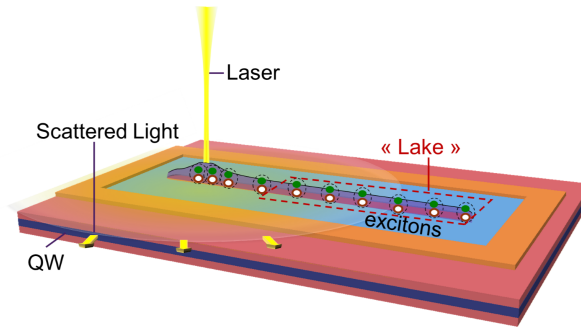


FIGURE 1 – Représentation artistique de la propagation d'excitons indirects dans un piège électrostatique filiforme. Les particules bosoniques sont créées par un spot laser focalisé à l'extrémité du piège ; elles se propagent à cause des interactions répulsives ; elles s'accumulent enfin dans une zone où leur densité s'est uniformisée et leur température s'est abaissée, favorisant l'émergence d'un état collectif du fluide d'excitons.

figure 1 donne une représentation imagée d'une expérience emblématique de l'ensemble de cette thèse : on focalise un faisceau laser à l'extrémité d'un tel piège à excitons de géométrie filiforme. Les excitons « chauds » produits sous le spot sont évacués vers l'extrémité opposée et s'accumulent dans une zone spatiale où ils sont en équilibre thermique, leur densité étant quasi-uniforme.

Le manuscrit est structuré comme suit :

- Le chapitre 1 décrit le contexte général des états collectifs émergents en mécanique quantique (condensats de Bose) et montre comment la physique des semi-conducteurs constitue un support matériel permettant d'incarner, de manière active, ce domaine de recherche fondamentale. On y décrit également une sélection des travaux antérieurs dans la lignée desquels ce travail de thèse souhaite, humblement, se positionner.
- Le chapitre 2 explicite les spécificités des excitons dipolaires de puits quantiques à base de nitrure de gallium. Les principaux phénomènes physiques nécessaires pour appréhender le comportement de ces quasi-particules bosoniques dans ce semi-conducteur sont passés en revue de manière qualitative. Les techniques expérimentales et les échantillons utilisés y sont décrits.
- Le chapitre 3 présente de manière plus approfondie les modèles et leurs « cas limites » permettant une analyse plus fine de ces effets physiques. Les résultats de ces modèles servent notamment d'éclairage aux résultats expérimentaux détaillés dans les chapitres suivants.
- Le chapitre 4 montre la réalisation pratique de pièges à excitons basés sur la modification du potentiel de surface à l'aide d'électrodes métalliques. Les propriétés des excitons y sont étudiées par la mesure de leur luminescence spatialement et spectralement résolue. En confrontant différentes formes de pièges, nous en

déduisons la géométrie optimale que doit posséder un tel piège pour permettre un contrôle indépendant des paramètres température et densité du fluide excitonique afin d'explorer son diagramme de phase dans les conditions les plus proches de l'équilibre thermodynamique.

- Le chapitre 5 présente l'étude expérimentale de l'influence du champ magnétique sur les propriétés du fluide excitonique. La manière dont les niveaux énergétiques des particules sont modifiés par l'action du champ nous permet de discriminer leur nature gaz d'excitons *vs* plasma électron-trou.
- Le chapitre 6 présente le contrôle électrostatique du transport excitonique *via* l'application d'une polarisation électrique dans la direction de croissance. Cette étude expérimentale montre que nous pouvons simultanément piéger les particules, varier leur niveau énergétique et piloter leur transport à l'aide d'une tension électrique. Ces résultats encourageants créent une perspective intéressante pour de futurs dispositifs à base d'excitons indirects.
- Le chapitre 7 effectue la synthèse des différents résultats obtenus au cours de cette thèse, en propose une trame interprétative et suggère les études qui pourraient être poursuivies dans cette thématique.



Chapitre 1

Contexte général : physique des états collectifs

Ce chapitre introductif comporte quatre parties. Dans la première partie, nous rappelons les aspects généraux de la condensation de Bose-Einstein : d'abord pour des bosons purs à la limite thermodynamique puis en tenant compte des effets de taille finie et du caractère de boson composite des excitons. Dans la seconde partie, nous présentons quelques systèmes expérimentaux à base de semi-conducteurs se prêtant à une étude des phases condensées (liquides électrons trous, excitons indirects en espace K et polaritons excitoniques). Dans la troisième partie, nous dressons une revue non-exhaustive d'études récentes portant sur les fluides d'excitons dipolaires. Enfin, nous terminons ce tour d'horizon des états collectifs dans les semi-conducteurs en évoquant les excitons dipolaires dans les hétérostructures de Van der Waals.

1.1 Condensation de Bose-Einstein

1.1.1 Bosons, symétrisation et indiscernabilité

La condensation bosonique résulte de la saturation des états excités imposant au niveau fondamental d'être occupé par une proportion macroscopique de particules. Ce phénomène a pour origine l'*indiscernabilité* des particules quantiques identiques qui favorise, pour les bosons, les configurations condensées [5]. En voici une présentation intuitive : considérons $N = 3$ particules sans interaction pouvant être chacune dans un des deux états individuels distincts représentés par des cases sur la figure 1.1.

Sur les $2^N = 8$ configurations, l'opérateur de symétrisation conduit à seulement 4 états bosoniques distincts (3-0, 2-1, 1-2, et 0-3) décrits par la statistique de Bose-Einstein pour les particules indiscernables au lieu de 8 états dans le cas où les particules sont considérées comme discernables et obéissent à la statistique de Boltzmann. Ainsi,



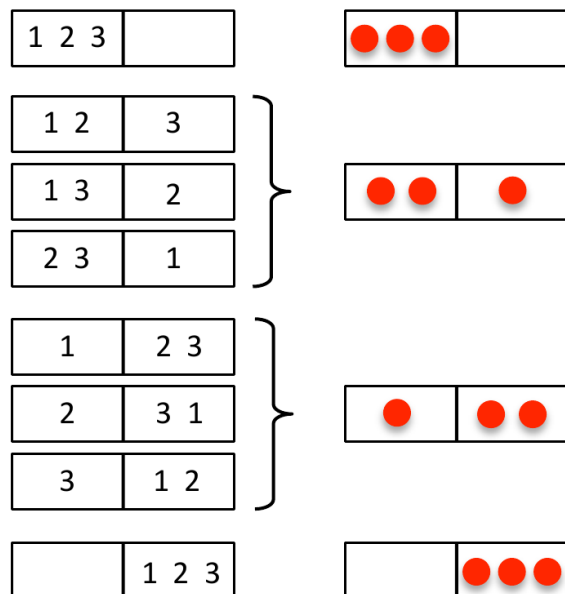


FIGURE 1.1 – Illustration de la différence de dénombrement entre particules identiques discernables (à gauche) et indiscernables (à droite), schéma tiré de [5].

pour les bosons, les configurations « condensées » 3-0 et 0-3 où les trois particules sont dans la même boîte possèdent le même poids que les deux cas « plus équilibrés » 2-1 et 1-2. En attribuant une probabilité égale à chaque configuration (valable si $k_B T \ll$ différence énergétique entre les 2 états individuels), un « état condensé bosonique » possède la probabilité $1/(N + 1)$ d'être réalisé alors qu'elle n'est que de $1/2^N$ si les particules sont supposées discernables. A la limite $N \rightarrow \infty$, on conçoit donc que **la statistique quantique de Bose-Einstein favorise nettement les configurations condensées** par rapport à la statistique de Maxwell-Boltzmann.

1.1.2 Saturation des états excités et dimensionnalité

Soit $\{\varepsilon_\alpha\}$ les niveaux énergétiques à une particule pour un ensemble de N bosons sans interaction. Le nombre d'états excités est la somme des nombres d'occupation moyens de chaque état individuel α , à l'exception du fondamental. Ce nombre est donné par la statistique de Bose-Einstein

$$N_{\text{exc}}(T, \mu) = \sum_{\alpha \neq 0} \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha - \mu}{k_B T}} - 1}. \quad (1.1)$$

Le nombre d'états excités est limité par la valeur maximale que l'on peut donner au potentiel chimique $\mu < \varepsilon_{\alpha=0}$ correspondant à l'énergie de l'état fondamental, $\alpha = 0$, et pouvant être choisi comme référence des énergies : $\varepsilon_{\alpha=0} = 0$. A la limite thermodynamique et en dimension d , l'écart entre deux niveaux d'énergie successifs est infiniment faible devant $k_B T$, si bien que l'on peut remplacer la sommation discrète par une



intégrale où intervient la densité d'états $\mathcal{D}^{(d)}(\varepsilon)$, cette dernière étant proportionnelle à $L^d \varepsilon^{\frac{d}{2}-1}$ dans le cas où les particules sont libres dans une boîte de volume L^d . La densité de particules dans les états excités est alors limitée par

$$\rho_{\text{exc}}^{\text{max}} = \lim_{\mu \rightarrow 0} \frac{N_{\text{exc}}(T, \mu)}{L^d} = \frac{1}{L^d} \int \frac{\mathcal{D}^{(d)}(\varepsilon)}{e^{\frac{\varepsilon}{k_B T}} - 1} d\varepsilon. \quad (1.2)$$

Selon la dimensionnalité et le type de potentiel de confinement (conditions limites strictes *vs* piège harmonique), deux cas de figures peuvent se produire (pour une discussion détaillée voir [6]) :

1. Ou bien l'intégrale est convergente et la densité d'états excités est bornée. Cela signifie que, pour une température T donnée, il existe une densité critique $\rho_C(T)$ au delà de laquelle tout ajout de particules viendra peupler l'état fondamental. **Les états excités sont saturés** : il y a condensation dans l'état fondamental.
2. Ou bien l'intégrale peut prendre des valeurs arbitrairement grandes lorsque l'on fait tendre le potentiel chimique μ vers sa borne supérieure $\mu \rightarrow \varepsilon_{\alpha=0}$. Dans ce cas, il est toujours possible d'augmenter la densité d'états excités : **la fraction de particules dans l'état fondamental** n'est jamais macroscopique. La condensation ne se produit pas.

En particulier, en 2D dans un piège rectangulaire la condensation bosonique ne peut pas se produire, au sens strict¹.

1.1.3 Critère de condensation

Pour des particules libres bosoniques sans interaction, de masse M , en équilibre thermique à la température T , la longueur d'onde thermique (ou longueur d'onde thermique de De Broglie), $\lambda_T = \frac{h\sqrt{2\pi}}{\sqrt{Mk_B T}}$, est une distance caractéristique très utile pour décrire simplement le critère de condensation : λ_T représente la portée typique de la fonction d'onde quantique. En dimension 2, la condensation bosonique sera donc favorisée aux grandes densités telles que [7]

$$n \gg n_C(T) = 1/\lambda_T^2 \quad (1.3)$$

c'est-à-dire lorsque la distance typique entre deux particules est faible devant la longueur d'onde thermique, si bien que leurs fonctions d'onde s'enchevêtrent (cf fig. 1.2). Le critère en densité $n \gg n_C(T)$ se reformule également en température sous la forme $T \ll T_C(n)$, où la température critique $T_C(n)$ possède une dépendance linéaire avec la densité (voir ci-après).

1. La condensation ne se produit pas, à la limite thermodynamique. Toutefois en considérant la



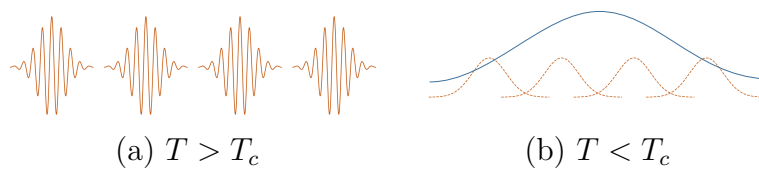


FIGURE 1.2 – Description qualitative du critère de condensation. Dans la situation (a), au dessus de T_C , la longueur d’onde thermique λ_T est inférieure à la distance typique entre particules. Dans la situation (b), les fonctions d’onde de chaque particule se superposent, ce qui confèrent au système une cohérence quantique à grande portée : l’état collectif est décrit par une unique fonction d’onde (illustration d’après [8]).

1.1.4 Effet de taille finie et caractéristiques de la transition

Dans le paragraphe précédent nous évoquions le cadre général de la condensation de bosons *purs*, dans la limite thermodynamique et sans interaction. La situation est plus complexe dans le cas d’un système réel, de taille finie, où les bosons peuvent interagir et sont éventuellement *de nature composite* (paires de Cooper ou excitons de semi-conducteurs) [9].

Effets de taille finie On peut établir que, pour un système bidimensionnel de surface S finie [5, 6], la température de transition diverge logarithmiquement avec la taille du système selon :

$$T_C(n) = \frac{2\pi\hbar^2 n}{Mk_B} \frac{1}{\ln(nS)} \quad (1.4)$$

où n et M sont la densité et la masse des particules. En prenant $n = 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $S = 10 \text{ }\mu\text{m} \times 10 \text{ }\mu\text{m}$, et pour M , la masse de l’électron libre au repos, on obtient $T_C \sim 35 \text{ K}$. L’écart entre le fondamental et le premier excité (typiquement de l’ordre $\Delta\varepsilon \sim \hbar^2/ML^2$ pour une boîte quantique de dimension L) est très inférieur à l’énergie thermique $k_B T$. Ainsi, la température à condensation T_C vérifie la condition :

$$k_B T_C \gg \Delta\varepsilon. \quad (1.5)$$

Avec les valeurs numériques précédentes ($L = 10 \text{ }\mu\text{m}$ et $M = m_0$), il vient $\Delta\varepsilon \approx 0,7 \text{ neV}$ et $k_B T_C \approx 3 \text{ meV}$, soit $k_B T_C / \Delta\varepsilon \sim 4 \cdot 10^6$. La condensation de Bose-Einstein est **une transition de phase haute température**² et d’origine purement quantique.

La valeur « relativement élevée » de température de transition T_C de 35 K trouvée dans ce modèle est encourageante, toutefois il faut garder à l’esprit que, dans notre

taille finie du système, on peut définir une température de condensation (cf éq. 1.4).

2. La transition s’effectue à une température T_C telle que $k_B T_C$ est bien supérieur à l’écart énergétique $\Delta\varepsilon$ entre l’état fondamental et le premier excité.



situation deux effets supplémentaires doivent être envisagés.

Rôle des interactions Les bosons interagissent entre eux. Les interactions sont notamment répulsives à cause de la nature dipolaire des excitons de puits quantiques dans le nitrure de gallium (matériau polaire utilisé dans ce travail). Cette répulsion peut être néfaste pour l'émergence d'un état collectif.

Les excitons : des bosons composites Les excitons sont constitués de deux fermions (électron et trou). La dégradation du caractère purement bosonique des particules possède deux origines. D'une part, le principe d'exclusion de Pauli limite intrinsèquement les états fermioniques accessibles à l'électron et au trou sur lesquels se construit la fonction d'onde du boson composite, il s'agit de l'effet de *remplissage de l'espace des phases* [10, 11]. D'autre part, les porteurs possédant la même configuration de spin tendent à s'éviter. Ces deux effets, remplissage de l'espace des phases et *interaction d'échange* [11] se traduisent par un terme complémentaire (se référer par exemple à l'ouvrage de M. COMBESCOT et S.-Y. SHIAU [9]) dans la relation de commutation bosonique

$$[b_{\mathbf{K}}, b_{\mathbf{K}'}^\dagger] = \delta_{\mathbf{K}, \mathbf{K}'} - \mathcal{O}(na_B^2). \quad (1.6)$$

En plus de la distance moyenne entre particules $\Lambda = n^{-1/2}$, et de la longueur d'onde thermique λ_T , la nature composite des excitons fait intervenir une **nouvelle échelle de longueur caractéristique**, le rayon de Bohr a_B , qui correspond à l'étendue de la fonction d'onde du système électron-trou dans le référentiel du centre de masse, à température nulle.

1.1.5 Dissociations thermique et entropique des excitons

En modifiant la température et/ou la densité du gaz d'excitons, trois phénomènes sont susceptibles de limiter le domaine d'existence des excitons :

- A haute température, l'énergie thermique dépasse l'énergie de liaison de l'exciton et ce dernier se rompt par effet de dissociation thermique. L'énergie d'un exciton évoluant en deux dimensions, est jusqu'à 4 fois supérieure à celle d'un exciton 3D (exciton dans un matériau massif, *bulk*). Toutefois, dans le puits quantique large d'un matériau polaire, le fort champ électrique interne (cf § 2.1 et § 3.1.1) sépare l'électron et le trou d'une distance supérieure au rayon de Bohr de l'exciton 3D. Ainsi, l'énergie d'excitons de tels puits quantiques est-elle affaiblie ce qui favorise l'effet de dissociation thermique.



- A forte densité, les interactions entre charges de même signe détruisent l'exciton : il apparaît un plasma électrons-trous (EHP). C'est la transition de Mott [12, 13, 14].
- Enfin, à faible densité se produit un phénomène de dissociation entropique [15]. Ce dernier résulte de la grande entropie configurationnelle des particules dans l'état non lié par rapport au cas où chaque paire est dans un état lié. Aux faibles densités sont favorisés les états moins ordonnés.

On effectue la synthèse de ces effets de densité et de température sur un diagramme de phase T, η (cf figure 1.3) où le paramètre sans dimension $\eta = n \cdot a_B^2$ contrôle l'importance des effets collectifs (cf équation 1.6). Pour une discussion plus approfondie, se reporter au paragraphe 3.6.

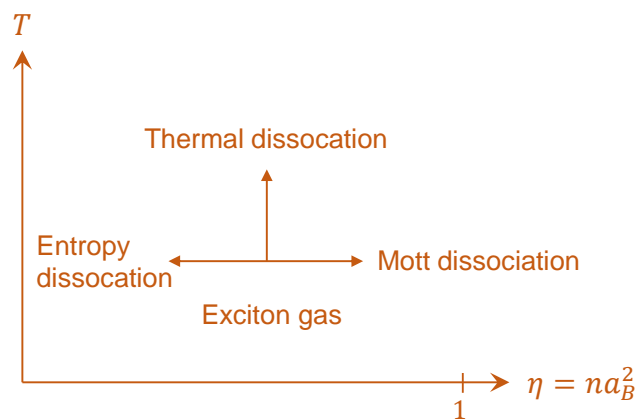


FIGURE 1.3 – Les excitons peuvent se dissocier en un plasma électron-trou soit (i) par augmentation de la densité à température fixe (transition de Mott), (ii) augmentation de leur température à densité fixée (dissociation thermique) ou (iii) diminution de leur densité à température constante (dissociation entropique). D'après l'ouvrage de M. COMBESCOT et S-Y. SHIAU, *Excitons and Cooper Pairs* [9].

Toutes ces considérations font que la transition vers une phase émergente collective résultant du comportement quantique d'excitons dipolaires en interaction n'est pas, au sens strict, une condensation de Bose-Einstein. La nature des interactions, la taille finie du système, le caractère composite, mais également la durée de vie finie des particules qui sont ciblées dans ce travail en font un objet d'étude d'une grande complexité mais aussi d'une grande richesse.

1.2 Quelques condensats dans les semi-conducteurs

D'une manière générale, les systèmes électrons-trous dans les semi-conducteurs sont très prometteurs pour l'étude des phénomènes à plusieurs corps (*many-body physics* [16]) et des phases émergentes telles que les fluides de Bose, les liquides électrons-trous pour lesquels des propriétés purement quantiques sont attendues (superfluidité par



exemple). L'exploration de ces phases émergentes requiert de basses températures. Pour les systèmes atomiques (atomes froids), ce type de phase apparaît à l'échelle du micro ou du milli Kelvin [17] (ex : atomes de rubidium, en dessous de 200 nK). En revanche, dans les semi-conducteurs, la transition vers de tels comportements quantiques se situe à de plus hautes températures, notamment à cause des densités de particules qui sont susceptibles d'être plus grandes mais également du fait des masses de ces particules qui sont plus faibles. L'intérêt pour les systèmes de basse dimensionnalité n'est pas nouveau [18, 19], mais celui-ci s'est considérablement développé suite à la mise au point de techniques d'épitaxie extrêmement fines [20] : le contrôle du dépôt se fait à la monocouche près tout en générant des matériaux d'excellente qualité cristalline. Ces techniques de croissance ont donc permis la fabrication de divers types d'hétérostructures et ont ouvert la voie à de nombreuses applications tant pratiques que fondamentales.

1.2.1 Liquide électrons-trous

Dans les semi-conducteurs, une excitation optique d'énergie suffisante conduit à la création de paires électron-trou. Celles-ci peuvent se lier *via* l'interaction coulombienne et former des excitons mais également des composés plus complexes comme des triions ou des biexcitons. Si la puissance d'excitation est suffisante, la densité en porteurs de charge conduit à l'apparition de phases collectives : le liquide électrons-trous (EHL) est l'une d'elles et a été prédit théoriquement par KELDYSH en 1958 [19, 21]. Ce phénomène de condensation excitonique et d'apparition de cette phase liquide est très similaire à la classique *transition de phase gaz-liquide du premier ordre* qui se produit, à une température fixée en dessous de la température critique lorsque la densité du gaz d'excitons excède la densité de la vapeur saturée ou, à densité fixée, lorsque la température diminue en dessous du « point de rosée ». A basse température (4 K) et à forte excitation optique, des gouttes de tels liquides électrons-trous ont été expérimentalement observées dans des échantillons de germanium et de silicium massifs [22] mais également dans les cristaux binaires GaP, GaAs, CdS [23, 24]. Enfin, signalons que grâce à l'avènement des matériaux bidimensionnels (cf § 1.4), dans lesquels les interactions coulombiennes sont exaltées et les effets d'écrantage diélectrique minimisés, de tels liquides (EHL) ont été prédits [25, 26] et observés [27] : la figure 1.4 en présente la visualisation dans une monocouche MoTe₂ encapsulée par du graphène [27].

Les liquides EHL se caractérisent par une population macroscopique d'électrons et de trous corrélés. Ils permettent d'envisager des dispositifs optoélectroniques à température ambiante qui exploitent les phénomènes électroniques collectifs [28].



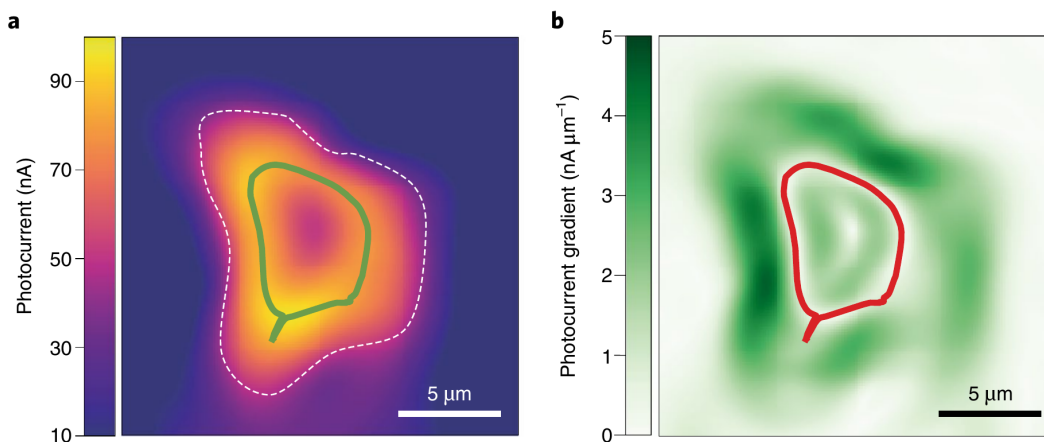


FIGURE 1.4 – Visualisation d’une goutte de liquide électrons-trous. (a) sous l’effet d’une excitation laser intense, une goutte de liquide (EHL) apparaît comme une région où le photocourant est nettement réduit (cette région est délimitée par le contour vert). Le contour en tirets blancs délimite la zone active du matériau. (b) cette goutte est également à l’origine d’une structure clairement visible dans la cartographie 2D du gradient du photocourant. Figure d’après [27].

1.2.2 Excitons indirects dans Cu_2O

En 1990, la condensation de Bose-Einstein d’un gaz d’excitons dans l’oxyde cuivreux (Cu_2O) a été obtenue expérimentalement [29] et longtemps débattue. Cu_2O est un semi-conducteur à gap direct. Toutefois, sa structure de bandes est toute particulière : elle interdit la recombinaison des excitons *bulk* construits, d’une part, sur les états les plus énergétiques de la bande de valence et, d’autre part, sur les états les moins énergétiques de la bande de conduction car ces deux types d’états possèdent la même parité. La grande durée de vie, la grande énergie de liaison (à cause de masses plutôt importantes pour l’électron et le trou) et l’existence d’une interaction d’échange qui limite la formation de molécules ou de liquides électrons-trous, font que ce matériau est un très bon candidat pour la réalisation de condensats. L’interaction d’échange est à l’origine d’une séparation énergétique de 12 meV entre l’état fondamental, état appelé *paraexciton*, et l’état excité dégénéré triplement, appelé *orthoexciton* [30, 31, 32].

En 2014, la découverte de raies excitoniques correspondant à une série d’absorption hydrogénoïde dans Cu_2O [33, 34] a permis à la physique des semi-conducteurs de s’intéresser à des systèmes bien particuliers : il s’agit de systèmes neutres, constitué d’une paire électron-trou liée (exciton de Mott-Wannier) et qui sont également décrits comme des atomes artificiels ou **excitons de Rydberg**. La spécificité de tels édifices est que leur nombre quantique principal n peut être grand ($n > 25$). Les orbitales atomiques

occupées sont donc celles de grand rayon

$$\langle r_n \rangle = \frac{1}{2} a_B (3n^2 - \ell(\ell + 1)), \quad (1.7)$$

ce qui conduit à de remarquables effets d'interaction entre ces mêmes atomes artificiels. L'extension spatiale de ces fonctions d'onde d'états excités peut dépasser 2 micromètres, alors qu'elle n'est que de l'ordre du nanomètre pour l'état fondamental. Il existe par ailleurs un *effet de blocage* qui, à cause des fortes interactions dipôle-dipôle, empêche la création d'un nouvel état excitonique à proximité immédiate d'un tel exciton de Rydberg. La figure 1.5 illustre les spectres d'absorption que l'on obtient avec de tels systèmes.

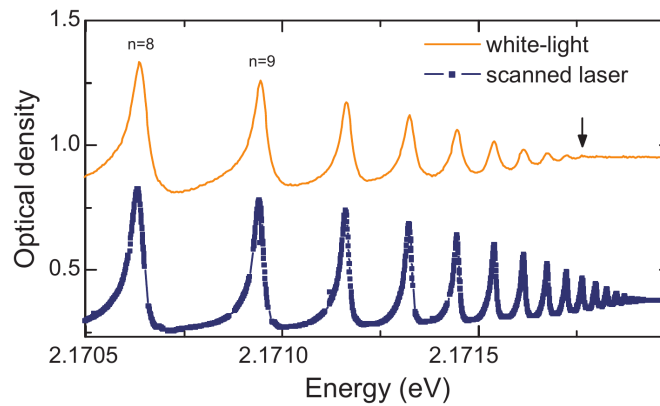


FIGURE 1.5 – Spectre d'absorption d'excitons dans Cu_2O , échantillon de $34 \mu\text{m}$ d'épaisseur, $T = 1.2 \text{ K}$ (d'après KAZIMIERCZUK *et al.* [33]). Le spectre supérieur est obtenu avec une lumière blanche : $n = 17$ est la plus grande résonance mesurée, elle est repérée par la flèche. Le spectre inférieur est mesuré avec un laser à colorant accordable : $n = 25$ est la plus grande résonance mesurée.

1.2.3 Polaritons excitoniques

En 2006, Jacek Kasprzak *et al.* ont réalisé un condensat de polaritons excitoniques [35] à l'aide de microcavités construites dans des échantillons de $\text{CdTe}/\text{CdMgTe}$. Il s'agit d'une nouvelle condensation de bosons en physique du solide, les condensats étaient précédemment obtenus à partir de gaz d'atomes froids (ex : atomes de rubidium, en dessous de 200 nK). Une microcavité semi-conductrice est une cavité optique de type Fabry-Pérot dans laquelle les photons sont confinés et fortement couplés avec les excitations électroniques. Le régime de couplage fort est obtenu en insérant un milieu actif dans la cavité optique, tel que des multi-puits quantiques. Cela conduit à la création de nouveaux états propres, mi-photon / mi-exciton, appelés *polaritons excitoniques*. Ces quasi-particules ont une nature bosonique et se forment sous pompage optique : leur masse est environ 10^9 fois plus légère que celle des atomes de rubidium, ce qui ouvre la

voie à la condensation BE à des températures cryogéniques beaucoup plus accessibles. Depuis, la physique des polaritons excitoniques a connu un important développement jusqu'à ces dernières années : superfluidité des condensats de polaritons, vortex dans ces fluides quantiques ou encore développement de dispositifs polaritoniques [36, 37, 38]. Il faut noter que la composante photonique des polaritons se traduit par une durée de vie très courte (quelques ps) : dans la majorité des cas, le condensat de Bose de polaritons se forme dans un régime hors d'équilibre thermodynamique.

1.3 Fluides d'excitons dipolaires dans les puits quantiques

Afin d'explorer de nouvelles phases quantiques dans le cadre de la physique de la matière condensée, de nombreux systèmes modèles ont été développés. Il est en effet possible de créer des particules bosoniques possédant un **moment dipolaire** : cette propriété supplémentaire ajoute une nouveau degré de liberté qui contribue à enrichir l'espace des deux paramètres classiques, température et densité. Ce sont de ces particules bosoniques, les excitons dipolaires, dont il est question dans cette section. La séparation spatiale des charges (électron et trou) permet aussi d'augmenter leur durée de vie radiative, pour faciliter l'observation d'états collectifs à l'équilibre thermodynamique.

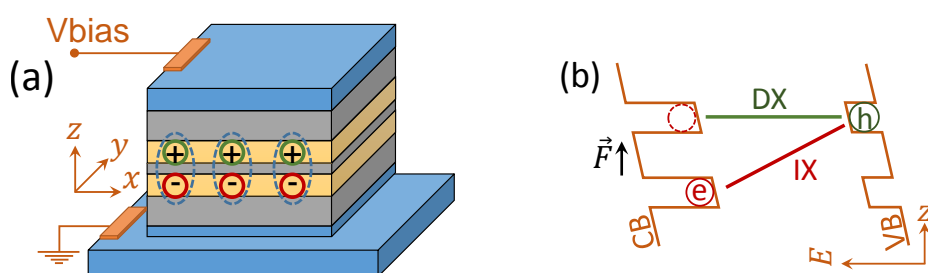


FIGURE 1.6 – (a) schéma de principe d'une structure à double puits quantiques couplés (CQW). La structure constituée de deux puits quantiques GaAs (en jaune) insérés dans des barrières en AlGaAs (en gris) est polarisée par un champ électrique transverse (appliqué dans la direction z). (b) diagramme des bandes de conduction (CB) et de valence (VB) sous polarisation électrique avec les transitions directe (DX) et indirecte (IX). Par injection optique résonnante avec la transition DX, on obtient deux plans de charges positives et négatives spatialement séparés qui donnent naissance à des excitons indirects spatialement (IX).

1.3.1 Puits quantiques couplés (CQW) dans GaAs

Grâce à l'ingénierie des hétérojonctions de semi-conducteurs, il est possible de *façonner à la demande* les propriétés des quasiparticules bosoniques [39]. L'intensité du moment dipolaire peut être modifiée en choisissant la distance séparant le plan des charges positives du plan des charges négatives. Dans cette optique, les doubles puits quantiques couplés (*coupled quantum wells*, CQW) par exemple AlGaAs/GaAs sont parmi les premières structures étudiées (cf fig. 1.6). Ce système modèle permet l'application d'un champ électrique perpendiculaire à la direction de croissance, qui sépare l'électron du trou, et conduit à la création d'**excitons dipolaires spatialement indirects** [40]. Ces excitons possèdent de plus une durée de vie radiative longue (100 ns à quelques μs) qui permet d'envisager l'étude des condensats à l'équilibre thermodynamique. La structure à double puits quantique est pompée optiquement de manière généralement résonnante avec la transition directe (DX) présentant une grande force d'oscillateur. Les propriétés physiques de ces quasi-particules sont étudiées *via* la luminescence qui provient de la transition indirecte (IX).

Simple puits GaN vs double puits GaAs Nous présentons ci-après une sélection d'études antérieures, portant sur les fluides d'excitons dipolaires, et réalisées non seulement (1) dans ces doubles puits AlGaAs/GaAs mais aussi (2) dans de simples puits quantiques AlGaN/GaN. Bien que l'arséniure de gallium soit un matériau dont les propriétés diffèrent notablement du nitrure de gallium³, le système physique constitué des puits quantiques sous polarisation présente de nombreuses similarités⁴ mais également quelques différences. Contrairement au cas des doubles puits dans GaAs, il existe un champ électrique interne (cf § 2.1 et 3.1.1) qui assure, dans GaN, la séparation des charges au sein de l'unique puits quantique : l'application d'une tension de polarisation n'est pas nécessaire. Il n'y a donc pas d'injection de charges électriques susceptibles d'interagir avec les excitons neutres. Lorsque des électrodes sont utilisées pour créer des pièges électrostatiques pour le fluide excitonique dans les échantillons GaN, la zone surmontée d'une électrode constitue la barrière et la zone réalisant le piégeage est *sans électrode*, ce qui constitue un avantage par rapport aux échantillons GaAs. Dans ce système, il est possible de choisir l'épaisseur du puits quantique pour que le temps de vie radiatif des excitons soit long, par exemple supérieur à 10 μs , pour des puits GaN/Al_{0,2}Ga_{0,8}N d'épaisseur 6 nm [41, 42].

3. Au contraire de GaN, le cristal de GaAs de symétrie cubique ne possède pas de polarisation spontanée, ses coefficients piézoélectriques sont beaucoup plus faibles, le couplage aux phonons est moins efficace et l'énergie de gap est située dans l'infrarouge.

4. Dans ces deux systèmes, les excitons sont indirects spatialement et possèdent des interactions répulsives. La structure de pseudo-spin des trous conduit à séparer en énergie les états brillants $|\pm 1\rangle$ des états noirs $|\pm 2\rangle$, ces derniers constituant le niveau fondamental (cf § 2.1).



1.3.2 Transition de Mott

Avant d'introduire le diagramme de phase générique des excitons indirects dipolaires (IX), nous nous penchons sur la limite supérieure en densité de leur domaine d'existence, limite qui est définie par la transition de Mott, comme nous l'avons vu sur le diagramme de la figure 1.3.

Excitons directs bidimensionnels La luminescence de puits quantiques InGaAs/-GaAs de 8 nm a été étudiée par KAPPEI *et al.* [43]. L'accroissement de la puissance d'injection optique conduit à un changement progressif de la morphologie de l'émission de ces puits : à forte injection, l'émission est composée de la seule recombinaison de paires électron-trou (e-h) non liées, en dessous d'un seuil en puissance, il apparaît **progressivement** la raie excitonique à plus basse énergie (fig. 1.7a). Les auteurs concluent à une transition de Mott graduelle dans la plage de densité 10^{10} - 10^{11} cm⁻² (cf bande rouge sur la fig. 1.7a).

ROSSBACH *et al.* [13, 44] ont poursuivi cette étude dans le cas de puits quantiques AlGaIn/GaN également « étroits » (2 nm à 18% d'aluminium et 3,2 nm à 9% d'aluminium) sous forte injection. Ils ont présenté notamment un *scénario de la transition de Mott* dans de tels puits, celui-ci est présenté sur la figure 1.7b qui donne, en fonction de la densité de porteurs, l'évolution de l'énergie de la raie de luminescence. L'énergie de gap E_{BGR} diminue avec l'augmentation de la densité de porteurs photocréés, cet effet est appelé *renormalisation du gap*⁵ [46, 47, 48, 49]. L'énergie E_B de liaison excitonique apparaît sur cette figure comme l'écart entre l'énergie du gap (courbe verte en tirets points) et l'énergie, E_X de l'émission excitonique (trait noir). À mesure que la densité de porteurs augmente, l'énergie de liaison diminue jusqu'à s'annuler car les fortes interactions entre les excitons écrantent l'interaction coulombienne qui assure la stabilité de l'édifice excitonique. L'exciton n'est alors plus viable et seuls coexistent des électrons et des trous non liés formant un plasma conducteur (plasma électrons-trous, *EHP*) de particules chargées : c'est la transition de Mott. La densité critique est estimée à $n_{Mott} \sim 6 \cdot 10^{11}$ cm⁻² dans ce système.

La comparaison entre les excitons des puits quantiques GaAs et GaN est l'occasion de souligner deux intérêts du système GaN :

- (i) une plus grande énergie de liaison laissant présager une plus grande robustesse en

5. La renormalisation de l'énergie de gap est un effet optique non-linéaire résultant des nombreuses interactions à plusieurs particules (« *many-body physics* ») qui réduisent la densité de charge ressentie par les particules individuelles. Cet effet peut être rapproché de la réduction du gap observée dans les semi-conducteurs fortement dopés [45] bien que ce dernier phénomène soit piloté par la concentration en impuretés et non par la quantité de charges photocréées. Nous avons vérifié que, dans les conditions de faible injection de porteurs dans lesquelles nos expériences sont conduites (cf § 4.4.3.3 du chap. 4), la renormalisation du gap peut être négligée.



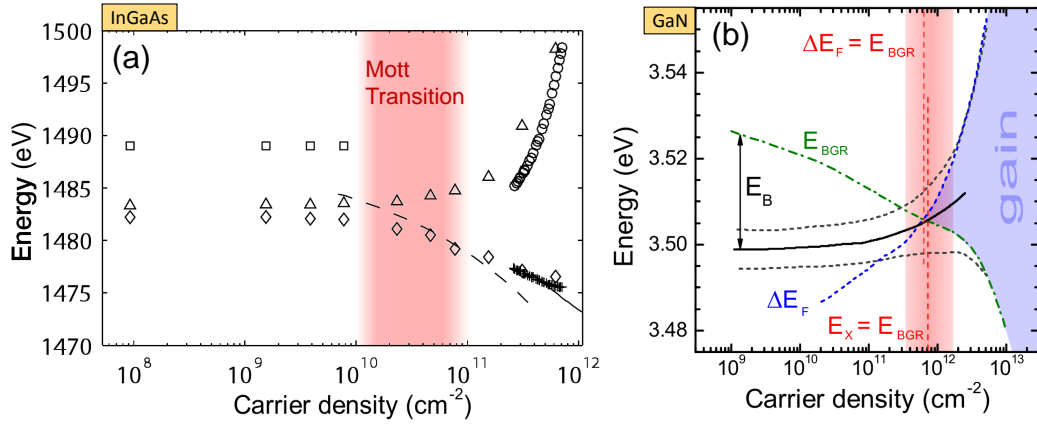


FIGURE 1.7 – (a) Énergie de la luminescence d'un puits InGaAs/GaAs de 8 nm d'après [43]. Les limites basses et hautes des flancs à mi-hauteur de la raie excitonique sont données par les symboles diamant et triangle. Les carrés représentent la borne supérieure de la raie provenant de la recombinaison des paires e-h. Les courbes en tirets ou traits continus représentent l'évolution de l'énergie de gap selon deux modèles distincts [43]. (b) Évolution de l'énergie de luminescence E_X (trait noir) d'un puits quantique AlGaIn/GaN de 3 nm en fonction de la densité de porteurs, d'après [44], les mesures sont réalisées à $T=4$ K. Les courbes en tirets noirs donnent les limites basses et hautes des flancs à mi-hauteur de la raie. La transition de Mott (MT) est schématisée par la bande rouge au delà de laquelle l'énergie E_B de l'exciton est nulle.

température (jusqu'à 300 K ? [50]),

- (ii) un rayon de Bohr plus petit dans les puits quantiques GaN que dans GaAs, de sorte que la transition de Mott apparaît un peu plus haut en densité de particules.

Excitons indirects STERN *et al.* ont exploré par macrophotoluminescence (macroPL) le diagramme de phase de puits quantiques couplés (CQWs) AlGaAs/GaAs dans la limite des hautes densités [51] : ils ont mis en évidence une **transition abrupte** de l'énergie de la raie excitonique au delà d'une densité critique, qui s'accompagne d'une modification de la largeur de raie. Le suivi du décalage diamagnétique permet d'estimer la variation du rayon de Bohr excitonique qui quantifie la force de la liaison coulombienne. Ce décalage énergétique évolue linéairement avec le champ magnétique lorsque la puissance est augmentée, en accord avec l'évolution des niveaux de Landau, confirmant ainsi le caractère plasma EHP de l'émission, au delà de cette densité limite, $n_{\text{Mott}} \approx 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ pour ce système.

1.3.3 Diagramme de phase des excitons dipolaires

Plusieurs théories sont proposées pour décrire le comportement d'excitons dipolaires dans le plan température-densité [52, 53, 14, 54, 55]. Dans la lignée de ces théories, la

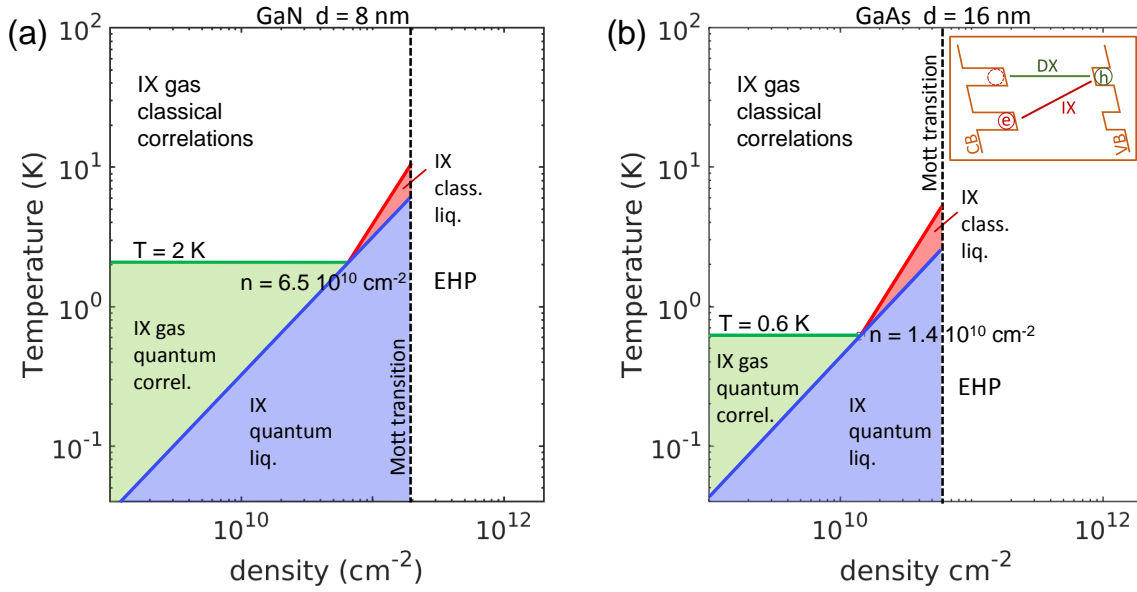


FIGURE 1.8 – (a) diagramme de phase théorique des excitons dipolaires dans un simple puits polaire AlGa_N/Ga_N, construit d’après l’approche proposée par LAIKHTMAN *et al.* [52, 53]. (b) cas du système de double puits couplés AlGaAs/GaAs.

figure 1.8 présente les principales phases attendues pour les états collectifs d’excitons dipolaires dans un puits quantique de 8,5 nm à base de nitrure de gallium. Afin de présenter qualitativement ces phases et justifier les frontières entre leurs domaines d’existence, nous introduisons trois échelles de distances caractéristiques :

- $\Lambda(n_X) = n_X^{-1/2}$ la distance moyenne interparticulaire qui ne dépend que de la densité n_X d’excitons,
- la distance minimale d’approche, $r_0(T)$ ⁶, entre deux particules compte-tenu de l’interaction de paires, $U_{XX}(r)$, répulsive en $1/r^3$ (cf fig.1.9a ou fig. 3.19). Cette distance dépend de l’agitation thermique et varie avec la température comme $T^{-1/3}$; elle est de plus indépendante de la densité n_X ,
- la longueur d’onde thermique de De Broglie (cf § 1.1.3) $\lambda_T \propto T^{-1/2}$ qui caractérise la façon dont la longueur de cohérence de la fonction d’onde excitonique augmente lorsque la température diminue. Cette distance ne dépend que de T .

Le diagramme de la figure 1.8 peut alors être interprété de la façon suivante :

- Le gaz classique d’excitons corrélés (IX gas classical correlations) est le domaine du plan température-densité pour lequel $\lambda_T < r_0(T) < \Lambda$. Les effets quantiques sont négligeables, la densité est suffisamment faible pour que les collisions entre particules soient négligeables (il s’agit de l’état gazeux illustré sur la figure 1.9b).

6. $r_0(T)$ s’interprète comme une *section efficace* de diffusion bidimensionnelle. Cette grandeur, homogène à une longueur, est donnée par l’égalité $U_{XX}(r_0) = e^2 d^2 / 4\pi\epsilon r_0^3 = k_B T$ (cf éq. 3.81).

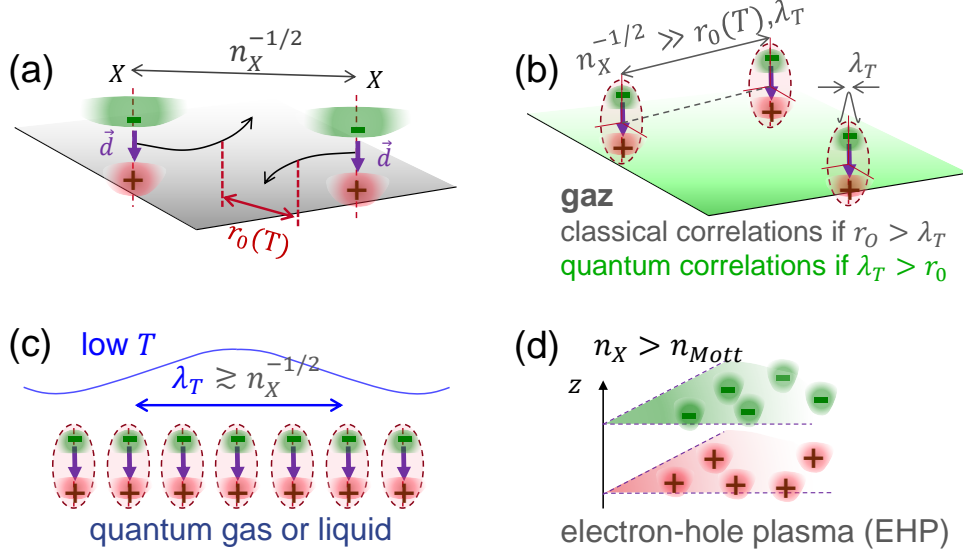


FIGURE 1.9 – Illustration du rôle des paramètres n_X , $r_0(T)$ et λ_T sur les phases du diagramme de la figure 1.8 : (a) $r_0(T)$, distance d'approche entre deux excitons, (b) lorsque $\Lambda = n_X^{-1/2}$ est grande devant les paramètres $r_0(T)$ et λ_T , le système est gazeux, (c) à basse température, la longueur d'onde de De Broglie λ_T s'étend au delà de la distance interparticulaire et (d) pour $n_X > n_{Mott}$ l'exciton est ionisé.

- Si on augmente la densité à température fixe (la relation $\lambda_T < r_0(T)$ est inchangée), la distance interparticulaire Λ devient inférieure à $r_0(T)$. On aboutit ainsi à la hiérarchie $\lambda_T < \Lambda < r_0(T)$ qui est celle d'un liquide classique (IX class. liq., en rouge sur la fig. 1.8) .
- Partant de la situation précédente, si on diminue la température à densité fixée, on augmente l'étendue λ_T de la fonction d'onde : le système finit par avoir un comportement quantique de liquide (ie $r_0(T) > \Lambda$ et $\lambda_T > \Lambda$, liquide de Bose) ou de gaz (ie $\lambda_T > \Lambda > r_0(T)$, gaz de Bose, voir fig. 1.9c). Cet état (IX quantum liq.) est délimité par le domaine en bleu sur la figure 1.8.
- Lorsque la densité est suffisamment faible et la température en dessous de l'isotherme 2 K (pour GaN, cf fig. 1.8a), le système est dans la situation d'un gaz à corrélations quantiques ($\Lambda > \lambda_T > r_0(T)$, IX gas quantum correl.).
- Enfin, lorsque la densité dépasse la densité critique de Mott estimée à
 - (i) $n_{Mott} \sim 6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ dans les puits fins étudiés par ROSSBACH *et al.* [13],
 - (ii) $n_{Mott} \sim 2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ dans les puits épais étudiés dans cette thèse,
 l'exciton est détruit et il apparaît un plasma électron-trou (EHP, voir fig. 1.9d)⁷.

7. Au delà d'une température critique, la liaison coulombienne de l'exciton se rompt par ionisation thermique, ce qui conduit à une transition supplémentaire qui n'est pas présente sur la figure 1.8. Compte-tenu de la grande valeur de l'énergie thermique de l'exciton ($\sim 10 \text{ meV}$ dans le puits quantique), cette température est supérieure à la centaine de Kelvin.

En plus de la température et de la densité, l'intensité du **moment dipolaire**, qui peut être variée *via* la largeur du puits, est un paramètre supplémentaire qui enrichit encore davantage ce diagramme de phase : le fait de concevoir un dispositif permettant d'accéder expérimentalement à la thermodynamique de ces bosons composites dont les interactions sont répulsives constitue un des objectifs de ce travail.

Nous présentons ci-après quelques études qui ont conduit à l'exploration du diagramme de phase des excitons indirects dans les doubles puits à base d'arséniures (les valeurs correspondantes du plan température-densité sont reportées sur le diagramme de la figure fig. 1.8b).

Liquides électrons-trous En observant le rôle joué par la puissance d'excitation et/ou la température sur les spectres de luminescence de double puits quantiques couplés (CQWs), STERN *et al.* [24], d'une part, et TIMOFEEV *et al.* [56], d'autre part, décrivent la formation de gouttes de liquides électrons-trous. Couplée à des mesures résolues en temps, la photoluminescence d'excitation (PLE) sous champ magnétique a permis de montrer que la transition entre une phase gazeuse d'excitons et un liquide électron-trou se produit pour une densité critique de $\approx 8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Cohérence de spatiale de condensats HIGH *et al.* ont mis en évidence l'apparition d'une cohérence spatiale de la luminescence excitonique caractéristique d'un condensat excitonique [57] : à l'aide d'un dispositif interférométrique (Mach-Zehnder), et résolvant la polarisation de la lumière émise, ils ont montré que la longueur de cohérence et le degré de polarisation augmentait lorsque les conditions de condensation étaient réunies. La cohérence spatiale de fluides d'excitons a été observée par le même groupe dans des pièges électrostatiques [58].

Corrélations exciton-exciton dans des micro-pièges SCHINNER *et al.* ont étudié la luminescence de fluides d'excitons dipolaires dans des doubles puits InGaAs/GaAs confinés dans des micro-pièges [59, 60]. Afin d'avoir la meilleure thermalisation possible des particules, le pompage optique est réalisé hors du piège, les charges y sont transférées puis thermalisées jusqu'à la température du réseau (240 mK). Les conditions de cohérence quantique étant réunies, ils observent à basse température et pour une densité de l'ordre de $\approx 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, que la raie de luminescence des IX possède une allure très dissymétrique qui peut être interprétée comme la conséquence de **fortes corrélations interparticulaires** résultant des interactions dipolaires.

Anneaux excitoniques fragmentés La condensation bosonique a été expérimentalement observée en 2015 dans les doubles puits quantiques couplés AlGaAs/GaAs (cf



fig. 1.6, chap. 1) par ALLOING *et al.* [61] et a donné lieu depuis à de nombreux travaux [62, 63, 64, 65] : en l'absence de pièges, ils ont observé un noircissement anormal de la photoluminescence associé à une cohérence quantique dans des anneaux excitoniques fragmentés. Leur formation est due à un mécanisme de séparation de charges : les trous s'accumulent dans la zone optiquement pompée tandis que les électrons sont rejetés à la périphérie. Au niveau de l'interface où s'apparient les électrons et les trous, se forme un piège électrostatique dans lequel les excitons se localisent au niveau des fluctuations du potentiel électrostatique. La cohérence spatiale de la luminescence est observée en dessous de quelques kelvins. Un phénomène similaire avait été observé par le groupe de BUTOV [57] en 2012.

Condensat gris La maîtrise des pièges électrostatiques a permis d'étudier plus en détail le fluide d'excitons piégés en s'affranchissant du transport et de la fragmentation. Un noircissement, signature d'une condensation dans un état noir, a été observé par SHILO *et al.* en 2013 dans un piège, en-dessous de $T = 2,5$ K [66]. BEIAN *et al.* ont ensuite mesuré la cohérence spatiale du condensat sombre [67], et interprété leur observation dans le cadre du modèle de condensat gris développé dès 2007 par M. COMBESCOT [68]. Les observations expérimentales sont en accord avec la présence d'un condensat gris (la notion de condensat gris est explicitée au paragraphe 2.1) majoritairement composé d'excitons noirs, couplés de façon cohérente avec la phase brillante.

Transition BKT et équation d'état Récemment, des signes du caractère superfluide de condensats d'excitons piégés ont été apportés ainsi que des preuves expérimentales de la transition BEREZINSKII-KOSTERLITZ-THOULESS [69] (BKT) pour les excitons dipolaires dans un piège électrostatique [70].

Spectroscopie pompe-sonde des excitons indirects et de la relaxation de spin

Des mesures de photoluminescence, résolue en temps et en polarisation, ainsi que des mesures de spectroscopie pompe-sonde ont permis la détermination (1) des temps de vie et (2) des temps de relaxation de spin des excitons indirects dans des structures de double puits symétrique GaAs [8, 71]. L'idée de ces mesures est d'utiliser l'optique non-linéaire pour observer la phase noire condensée, de manière plus directe que par le couplage avec la phase brillante (condensation *grise*). Une méthode basée sur la technique pompe-sonde a été proposée par NALITOV *et al.* [72] afin d'accéder à la transition indirecte (IX) à l'aide de la transition directe (DX). Cette méthode se base sur la cohérence de spin entre la population d'excitons directs (DX) et la population indirecte (IX) à laquelle on souhaite accéder : il s'agit d'utiliser astucieusement ce couplage pour mesurer, *via* la transition directe, la population de l'état indirect. Les



mesures effectuées dans cette structure ont montré que le temps de vie radiatif des excitons est de l'ordre de 12 ns tandis que la durée de vie de la polarisation circulaire est d'environ 5 ns : cela laisse la possibilité d'analyser la cohérence temporelle de cette polarisation et ouvre ainsi la voie à l'étude des condensats noirs par cette technique.

Un domaine de recherche riche et complexe L'ensemble des travaux précédemment cités dans les puits quantiques GaAs ont fait l'objet d'un certain nombre de controverses, de commentaires en réponse aux publications, en raison de la nature complexe des études menées : échantillons, spectroscopie, imagerie, modèles et théories, mesurabilité, ... sont autant de facettes à maîtriser pour convaincre la communauté.

Transport excitonique à température ambiante FEDICHKIN *et al.* [42, 41, 73] ont étudié le transport d'excitons indirects dipolaires dans des puits quantiques larges AlGaIn/GaN et MgZnO/ZnO par microphotoluminescence (μ PL) et photoluminescence résolue en temps (TRPL). Il a été mis en évidence un transport excitonique à température ambiante sur une distance atteignant 12 μ m et jusqu'à 30 μ m à 10 K. Les meilleures performances en terme de luminescence sont obtenues pour les structures homo-épitaxiées sur un substrat GaN, ce qui réduit les effets non radiatifs. A l'aide de simulations numériques adaptées, il a également été montré qu'en terme de transport, un rôle prépondérant [74] est joué

- par les interactions dipolaires répulsives, à l'origine du courant de *drift*

$$\mathbf{J}_{\text{drift}} = -\tilde{\mu}_X n_X \nabla E_{\text{int}} \quad (1.8)$$

où $\tilde{\mu}_X$ est la mobilité des excitons, n_X leur densité et $E_{\text{int}} > 0$ l'énergie d'interaction d'un exciton avec tous les autres, résultant des forces répulsives entre excitons (*blueshift* cf éq. 2.12),

- plutôt que par le terme de diffusion

$$\mathbf{J}_{\text{diff}} = -D_X \nabla n_X \quad (1.9)$$

où $D_X = \tilde{\mu}_X / k_B T$ ⁸ est la diffusivité des excitons.

La mise en évidence de la compétition *drift*-diffusion et la propagation du fluide d'excitons sur une centaine de μ m ont ensuite été observées dans des puits quantiques

8. On suppose en général que les conditions de validité de la relation d'Einstein, liant D_X et $\tilde{\mu}_X$, sont remplies : à l'échelle de temps utilisée pour décrire le transport des excitons, leur mouvement n'est pas balistique car leurs nombreuses collisions avec les phonons contribuent à leur thermalisation efficace, ce qui justifie le comportement diffusif.



épais GaAs sous polarisation électrique [75], avec des profils de densité très similaires à ceux observés par FEDICHKIN *et al.* [41].

1.4 Excitons dipolaires dans les hétérostructures de Van der Waals

Les matériaux 2D sont un excellent support expérimental pour, non seulement, étudier les excitons bidimensionnels (série de Rydberg, influence du champ magnétique, de la polarisation de la lumière) pour lesquels l'électron et le trou appartiennent à la même monocouche et possèdent une grande force d'oscillateur mais également, concevoir des hétérostructures pouvant être soumises à une polarisation électrique et destinées à accueillir des excitons spatialement indirects, l'électron et le trou résidant chacun dans des couches distinctes. Avant de présenter ces hétérostructures, commençons par rappeler quelques caractéristiques de ces matériaux.

Des composés lamellaires Les dichalcogénures de métaux de transition (« Transition Metal Dichalcogenides » - *TMD*) sont des cristaux de formule brute MX_2 , où X est un élément de la colonne de l'oxygène. Ces matériaux, tels que le disulfure de molybdène MoS_2 , sont des solides lamellaires, constitués d'un empilement de feuillets, chaque feuillet étant composé d'un plan de cations métalliques M inséré entre deux plans d'anions X. Ces feuillets sont liés entre eux par des liaisons faibles de Van der Waals. Certains de ces matériaux sont couramment utilisés pour leurs performances tribologiques [76] : cisailables par frottement, ils constituent des lubrifiants solides. À l'état massif, ce sont des semi-conducteurs avec une bande interdite dans le visible. Il est possible de détacher une monocouche de MoS_2 (comme pour le graphène, par *exfoliation* [77]) et de la transférer sur un substrat hôte pour l'étudier ; on peut ainsi réaliser des empilements de plusieurs monocouches MX_2 distinctes et obtenir ainsi des *hétérostructures de Van der Waals* (cf fig. 1.10). Chaque monocouche ainsi obtenue constitue un semi-conducteur bidimensionnel ayant de nombreuses similarités avec le graphène mais aussi des différences.

Vallées \mathbf{K}^+ et \mathbf{K}^- La structure de bandes présente la particularité de dépendre du nombre de couches, aussi bien en terme de largeur de bande interdite que de nature directe ou indirecte : pour MoS_2 , l'alignement entre le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction évolue, de *direct* pour une seule monocouche, à *indirect* lorsque le nombre de monocouches augmente. La brisure de symétrie d'inversion associée au fort couplage spin-orbite engendre l'apparition de règles de sélection qui relie la polarisation de la lumière (émise ou absorbée) à une des deux



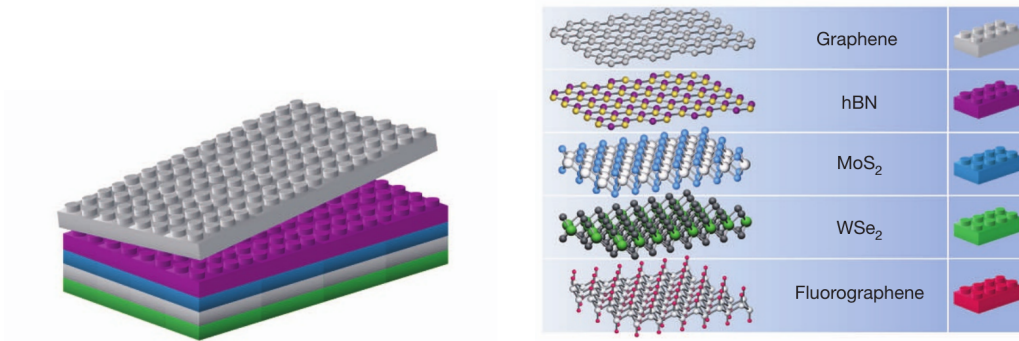


FIGURE 1.10 – Principe de l’assemblage d’hétérostructures de Van der Waals dont les feuillets planaires constituent les briques élémentaires. D’après [78]

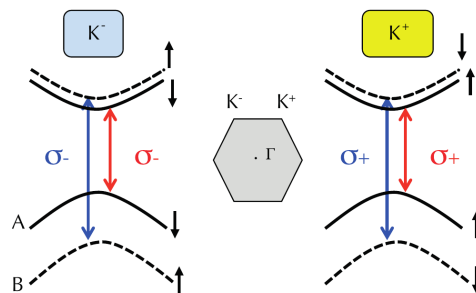


FIGURE 1.11 – Détail de la structure de bandes des deux vallées non équivalentes K^+ et K^- . En grisé est représentée la zone de Brillouin hexagonale bidimensionnelle. Les flèches verticales bleues et rouges représentent les transitions optiques autorisées avec la lumière polarisée circulairement droite (σ^+) ou gauche (σ^-). Les flèches verticales noires représentent les spins et pseudo-spins des bandes de conduction et de valence. Un choix convenable de l’énergie et de la polarisation de l’excitation permet de créer une population de vallée et/ou de spin. Figure tirée de [79].

vallées (K^+ ou K^- , cf fig. 1.11) non équivalentes de la zone de Brillouin. Cela ouvre la voie aux techniques de « spintronique » et/ou de « vallée-tronique » ayant pour objectifs d’exploiter ces degrés de liberté pour stocker et traiter l’information. Enfin, entre autres à cause du confinement induit par la géométrie bidimensionnelle, les effets excitoniques sont exaltés. Leur interaction avec la lumière est très forte : une seule monocouche absorbe typiquement 10% de lumière visible. L’énergie de liaison des excitons est de l’ordre de plusieurs centaines de meV, ce qui permet d’envisager des applications à température ambiante.

Nitride de bore hexagonal, matériau barrière pour les hétérostructures de TMD L'encapsulation de monocouches de TMD par des couches hBN (nitride de bore hexagonal) permet de réduire drastiquement les contributions inhomogènes aux largeurs de **raies excitoniques** [80] et ouvre ainsi la voie à une investigation spectroscopique précise de ces structures. Cette encapsulation affecte également le potentiel coulombien, « vu dans le plan » entre l'électron et le trou, et servant à construire l'édifice excitonique [81, 82, 83] : il en résulte une modification de la série énergétique des états excitoniques ns par rapport au cas du potentiel coulombien idéal en $1/r$.

Hétérostructures de Van der Waals et excitons indirects BUTOV *et al.* [84] ont choisi d'étudier des excitons indirects dans des hétérostructures de Van der Waals : leur principale motivation est de travailler à température ambiante, par opposition avec ce qui se fait pour les semi-conducteurs III-V ou II-VI usuels dont le domaine de stabilité des excitons est cantonné aux basses températures. Ils ont ainsi réalisé une hétérostructure de Van der Waals constituée de deux monocouches de MoS₂, jouant le rôle de plans de charges (électrons, trous) séparés par quelques nanomètres de hBN, jouant le rôle de barrière isolante. Cet empilement de couches se comporte de manière analogue à ce que l'on obtient par les méthodes usuelles d'épitaxie. Un champ électrique appliqué dans la direction z permet d'incliner les bandes. Ainsi, l'exciton IX est de plus faible énergie que l'exciton DX (cf fig. 1.12a). On obtient alors un dispositif analogue à celui des doubles puits AlGaAs/GaAs présentés précédemment (cf fig.1.6, § 1.3.1). L'énergie de liaison de l'exciton est cependant environ dix fois plus forte, ce qui permet d'envisager des applications à plus haute température.

Les IXs possèdent une durée de vie bien plus grande que celle des excitons directs (DX) dans une monocouche de TMD. De plus, la durée de vie des IXs est ajustable car contrôlée par la tension de polarisation *via* le recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou. Les excitons sont créés par une excitation laser pulsée et les spectres de luminescence sont obtenus selon un protocole de mesure séquentiel dont le chronogramme est détaillé sur la figure 1.12b : le temps de vie de la transition directe (DX) (fig. 1.12a) est suffisamment court ($<0,5$ ns), ce qui permet de collecter essentiellement la luminescence de la transition directe à condition de choisir convenablement la fenêtre d'intégration temporelle. Le spectre de luminescence tracé en vert sur la figure 1.12 et correspondant à la fenêtre temporelle 1 (*Window 1*) montre que le suivi spectroscopique des excitons indirects IXs peut être assuré grâce à ce protocole.

En conclusion, ce type d'hétérostructure à base de dichalcogénures de métaux de transition constitue une plate-forme matérielle pour :

- l'investigation de gaz de Bose quantiques d'excitons indirects à haute température ;
- l'investigation de dispositifs excitoniques à haute température.

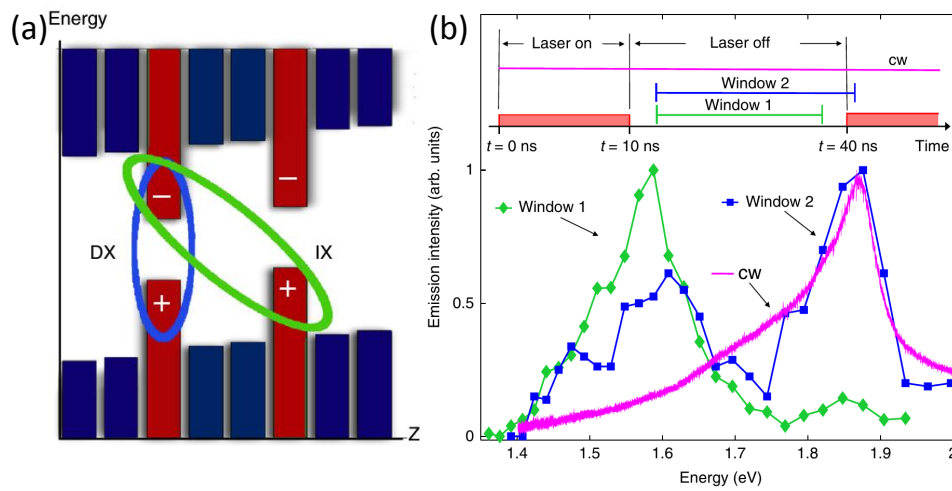


FIGURE 1.12 – (a) hétérostructure de Van der Waals, support d’excitons indirects : monocouches de MoS₂ (bleu), hBN (rouge). (b) spectres de photoluminescence collectés selon la séquence temporelle donnée sur le chronogramme : la fenêtre 1 (*Window 1*) démarre l’intégration ~ 2 ns après l’extinction du laser, la fenêtre 2 englobe la phase où le laser de pompe est allumé. Les figures sont tirées de [84].

Chapitre 2

Excitons indirects dipolaires dans le nitrure de gallium

Au chapitre précédent, nous avons passé en revue divers systèmes physiques prometteurs pour la réalisation de phases quantiques émergentes dans les semi-conducteurs. Dans ce chapitre, nous présentons le système utilisé dans notre travail : il s'agit d'un unique puits quantique, large, inséré dans un semi-conducteur polaire. Nous allons montrer pourquoi ce système permet la réalisation d'excitons qui sont spatialement indirects « par nature », c'est-à-dire sans que l'on ait à appliquer une quelconque tension de polarisation à travers la structure. Nous donnerons ensuite les principales propriétés du matériau que nous avons choisi pour le puits quantique, le nitrure de gallium (GaN), et préciserons si ces propriétés sont susceptibles de faciliter l'émergence de condensats quantiques d'excitons. Enfin, nous présenterons la structure des échantillons ainsi que les techniques expérimentales mises en œuvre dans ce travail.

Sommaire

1.1	Condensation de Bose-Einstein	9
1.1.1	Bosons, symétrisation et indiscernabilité	9
1.1.2	Saturation des états excités et dimensionnalité	10
1.1.3	Critère de condensation	11
1.1.4	Effet de taille finie et caractéristiques de la transition	12
1.1.5	Dissociations thermique et entropique des excitons	13
1.2	Quelques condensats dans les semi-conducteurs	14
1.2.1	Liquide électrons-trous	15
1.2.2	Excitons indirects dans Cu_2O	16
1.2.3	Polaritons excitoniques	17
1.3	Fluides d'excitons dipolaires dans les puits quantiques	18
1.3.1	Puits quantiques couplés (CQW) dans GaAs	19



1.3.2 Transition de Mott 20
 1.3.3 Diagramme de phase des excitons dipolaires 21
 1.4 Excitons dipolaires dans les hétérostructures de Van der
 Waals 27

2.1 Cristal de GaN massif, excitons et structure fine

Le nitrure de gallium (GaN) est un semi-conducteur « à large bande interdite » ($E_{\text{gap}} = 3,5 \text{ eV}$ à 4 K). Par rapport aux nanostructures à base d'arséniure de gallium (GaAs), le choix du nitrure de gallium présente deux avantages : d'une part, ce matériau permet d'accroître la température critique T_C à partir de laquelle la condensation est susceptible d'apparaître et, d'autre part, l'énergie de liaison des excitons étant élevée (25 meV dans le matériau massif [85]), on espère faire perdurer la stabilité de l'édifice excitonique jusqu'à température ambiante voire au-delà (voir fig. 2.1), ce qui est prometteur *pour réaliser des dispositifs* fonctionnant à base de tels excitons indirects (IX).

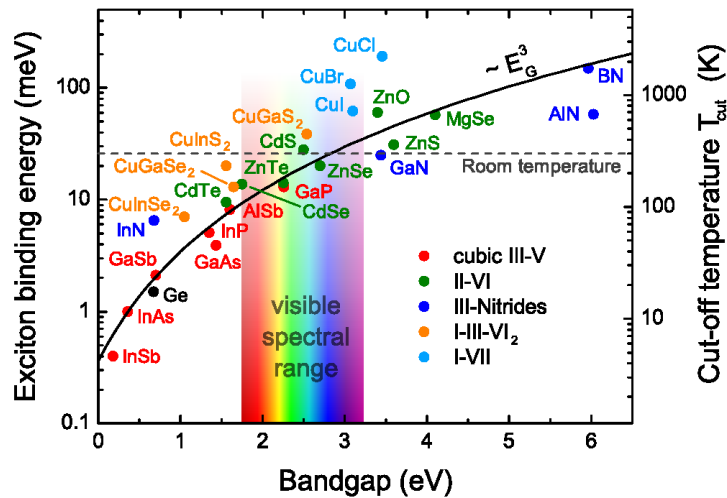


FIGURE 2.1 – Énergie de liaison de l'exciton dans divers semi-conducteurs massifs en fonction de la largeur de bande interdite, d'après [44]. L'axe de droite donne la température limite, T_{cut} , qui correspond à la destruction de l'exciton d'énergie de liaison E_B .

Nous nous intéressons aux propriétés opto-électroniques du matériau binaire nitrure de gallium (GaN) sous phase wurtzite qui constitue les puits quantiques que nous étudions dans ce travail.

Structure cristalline Le GaN wurtzite possède une structure cristalline non-centro-symétrique pouvant être décrite par deux empilements compacts (*hexagonal close-*



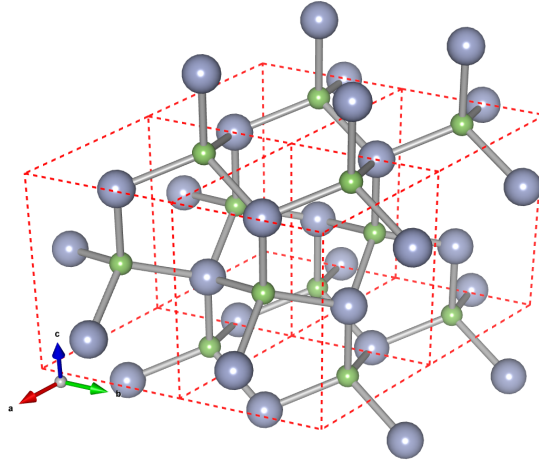


FIGURE 2.2 – Schéma de la structure cristalline du nitrure de gallium wurtzite (l’anion N^{3-} est en bleu-gris et le cation Ga^{3+} est en vert). Les mailles conventionnelles sont les prismes droits délimités par les pointillés rouges. Le trièdre a , b et c de la maille cristalline est représenté sur la figure.

packed) des deux types d’atomes gallium et azote (fig. 2.2). L’azote étant pentavalent et le gallium trivalent, il y a $2 \times 5 + 2 \times 3 = 16$ électrons de valence par maille élémentaire du réseau direct¹. La structure cristalline appartient au groupe ponctuel $C6v$, sa coordination est 4 – 4 tétraédrique, l’hybridation est de type sp^3 . Les fonctions d’onde électroniques sont construites à partir des six orbitales p et des deux orbitales s .

Diagramme de bandes, gap direct La maille primitive du réseau réciproque (aussi appelée *Première Zone de Brillouin*, PZB) est donnée sur la figure 2.3. Le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction coïncident au centre Γ de la PZB, c’est-à-dire au point $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. Ainsi, ce matériau est un *semi-conducteur à gap direct* : les recombinaisons radiatives les plus favorables d’un point de vue thermodynamique (*ie* entre le bas de la bande conduction et le haut de la bande de valence) peuvent se faire « verticalement » c’est-à-dire avec une modification quasi-nulle des vecteurs d’onde électroniques entre les deux états, soit $\mathbf{k}_c \approx \mathbf{k}_v$ ². Les états de la bande de conduction résultent de l’hybridation des orbitales s antiliantes de l’azote et du cation [87], de nombre quantique orbital $\ell = 0$. Les états de la bande de valence sont construits, quant à eux, sur les états liants des orbitales p , essentiellement de l’azote, de nombre quantique orbital $\ell = 1$.

Couplage spin-orbite et champ cristallin Le diagramme énergétique des états constituant cette bande de valence est donné sur la figure 2.5.

1. La maille élémentaire est représentée par les pointillés rouges sur la figure 2.2.
 2. En terme d’interaction électron-trou, une transition verticale est une recombinaison d’un électron de vecteur d’onde \mathbf{k}_e avec trou de vecteur d’onde $\mathbf{k}_h = -\mathbf{k}_e$ si bien que l’impulsion totale du système électron-trou est nulle.

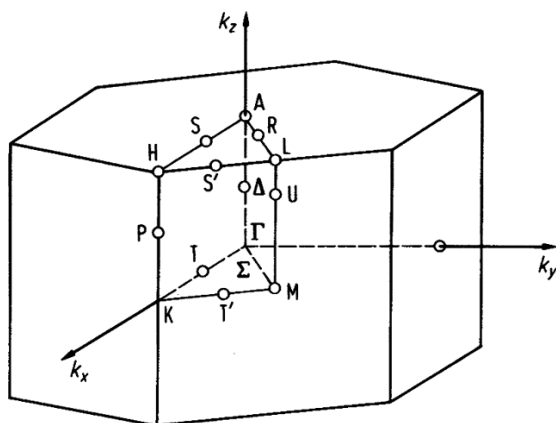


FIGURE 2.3 – Maille de Wigner-Seitz du réseau réciproque (première zone de Brillouin, ou PZB) du réseau hexagonal (d’après [86]). Le point Γ est le centre de la zone de PZB, les points de haute symétrie sont notés K, M et A et définissent les directions k_x , $(k_x + k_y)/2$ et k_z respectivement.

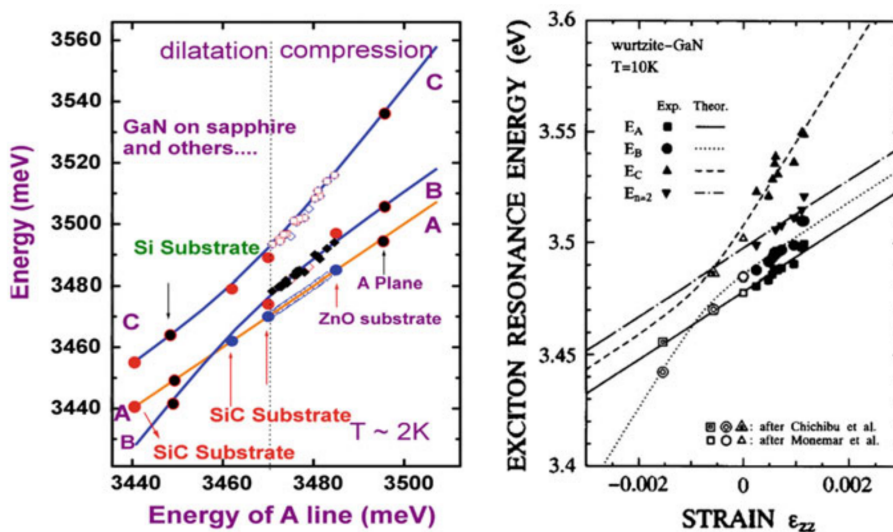


FIGURE 2.4 – *Gauche* : Énergies des transitions excitoniques pour du GaN mécaniquement contraint par croissance épitaxiale sur différents substrats. *Droite* : Énergies des transitions en fonction de la déformation ϵ_{zz} dans la direction c. D’après [88, 89].



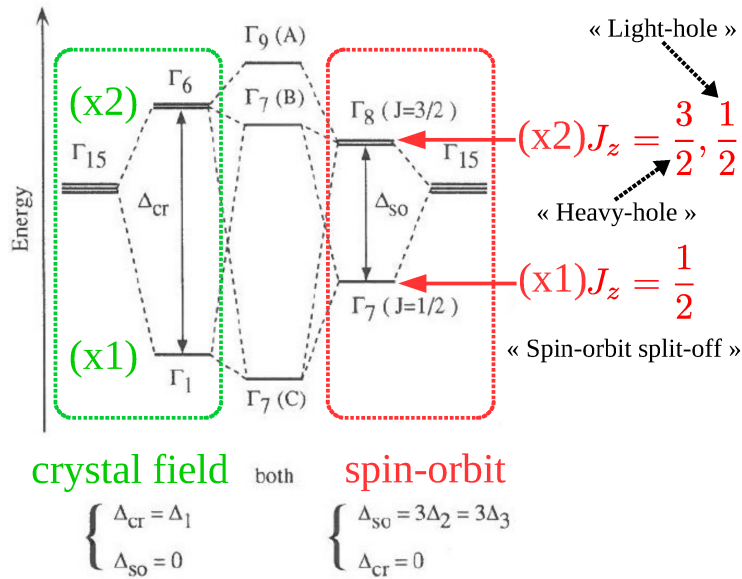


FIGURE 2.5 – Diagramme énergétique des états constituant la **bande de valence** du nitrure de gallium (d’après [90]). L’interaction spin-orbite et le champ cristallin conduisent à la séparation des états Γ_5 et Γ_1 , initialement dégénérés, en trois niveaux distincts notés A, B et C.

- En l’absence de l’interaction spin-orbite, l’état de plus haute énergie de la bande de valence est triplement dégénéré. Il est constitué du doublet de Γ_5 et du singulet Γ_1 (fig. 2.5).
- Cette dégénérescence triple est levée par l’anisotropie du réseau, conduisant à une séparation énergétique, Δ_{cr} (dite levée de dégénérescence de « champ cristallin »), dont la valeur dépend du ratio c/a des paramètres de maille (cf fig. 2.2) et, donc, de l’état de contrainte du matériau (cf fig. 2.4). Il en résulte deux niveaux distincts pour les nouveaux états³, d’une part, le singulet Γ_1 et, d’autre part, le doublet Γ_6 dont la dégénérescence n’est, à ce stade, pas levée.
- Si on tient compte de l’interaction spin-orbite, le doublet Γ_6 se sépare à nouveau et donne lieu à trois nouveaux états singulets Γ_9 (A), Γ_7 (B) et Γ_7 (C).

Les différents niveaux énergétiques de la bande de valence sont dénommés :

- bande de trous lourds (A), notée HH, son moment cinétique total est

$$|J; j_z\rangle = \left| \frac{3}{2}; \pm \frac{3}{2} \right\rangle, \quad (2.1)$$

3. Notons que, dans le cas du cristal de GaAs cubique, il n’y a pas d’anisotropie de « champ cristallin » à l’origine de la levée de dégénérescence entre les trous lourds et les trous légers. La structure doublet de Γ_8 (fig. 2.5) peut toutefois être résolue en deux niveaux distincts via le confinement quantique dans un puits où les valeurs distincts des masses effectives de trous conduisent à séparer les états $j_z = 3/2$ et $j_z = 1/2$.

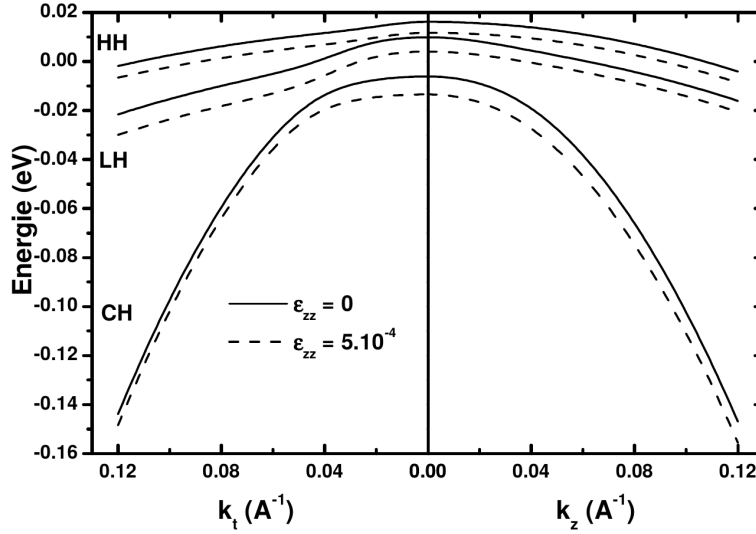


FIGURE 2.6 – Diagramme des bandes de valence de GaN au voisinage du point Γ de la zone de Brillouin, d'après [88].

- bande de trous légers (B), notée LH, son moment cinétique total est

$$|J; j_z\rangle = \left| \frac{3}{2}; \pm \frac{1}{2} \right\rangle, \quad (2.2)$$

- et bande « Split-Off » (C), notée CH, son moment cinétique total est

$$|J; j_z\rangle = \left| \frac{1}{2}; \pm \frac{1}{2} \right\rangle. \quad (2.3)$$

Masses effectives des trous lourds Les relations de dispersion $E_V(\mathbf{k})$ des trois états (HH, LH et CH) de la bande de valence sont tracées, pour les deux directions perpendiculaires k_z et k_t , sur la figure 2.6 qui illustre également l'influence d'une déformation ε_{zz} dans la direction de croissance (par convention, $\varepsilon_{zz} > 0$ est une déformation de traction⁴) : on constate que les masses effectives des trous lourds sont anisotropes⁵ ce qui doit être pris en considération lorsque l'on traitera les excitons de puits quantiques. En effet, le confinement quantique des excitons dans le puits fait intervenir leur masse dans la direction de croissance, m_{hh}^z , tandis que la description de leur mouvement dans le plan du puits quantique fait intervenir la masse dans la direction perpendiculaire à la direction de croissance, m_{hh}^\perp .

4. On constate sur la figure 2.6 qu'une contrainte de traction $\varepsilon_{zz} > 0$ abaisse l'énergie des états HH, LH et CH ce qui augmente en contrepartie l'énergie de la transition excitonique, en accord avec ce que l'on observe sur le graphe de droite de la figure 2.4.

5. Pour GaN, la masse effective des trous lourds dans la direction de croissance est $m_{hh}^z \approx 1.1 m_0$, celle des trous lourds dans le plan perpendiculaire à la direction de croissance est $m_{hh}^\perp \approx 1.6 m_0$ [91].

Structure fine de l'exciton Au point $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ de la PZB, il existe trois transitions interbandes possibles entre la bande de valence et celle de conduction. Autrement dit, une excitation élémentaire du cristal, par exemple par absorption d'un photon, peut conduire à la promotion d'un électron depuis l'un quelconque de ces trois niveaux (A, B ou C) de la bande de valence vers la bande de conduction. Un électron de la bande de conduction (de nombre quantique orbital $\ell = 0$) possède un moment cinétique total $|\frac{1}{2}; \pm\frac{1}{2}\rangle$. Ainsi, le couplage d'un électron de l'unique bande de conduction doublement dégénérée (par les états de spin électronique) avec les trois niveaux A, B ou C de la bande de valence (chacun de ces niveaux étant également doublement dégénéré) conduit à $2 \times 6 = 12$ états excitoniques distincts. Les principaux étant :

- deux états d'excitons A, « noirs », de *pseudo-spin* $s_z = \pm 2$, optiquement inactifs car la conservation du moment cinétique totale dans l'interaction de l'exciton avec le photon, dont le spin est ± 1 , ne peut être satisfaite,
- deux états d'excitons A « brillants », de *pseudo-spin*, $s_z = \pm 1$,
- deux états d'excitons B « brillants », de *pseudo-spin*, $s_z = \pm 1$.

Dans le GaN, l'énergie des excitons B se situe environ 8 meV au dessus de celle des excitons A, ainsi, aux températures cryogéniques et dans des conditions d'injection de porteurs modérées, seuls les états d'excitons A seront significativement peuplés et constitueront l'essentiel des transitions radiatives que nous observerons dans nos expériences. Dans la suite, nous ne considérerons donc que les seuls 4 excitons A de pseudo-spin $s_z = \pm 1$ et $s_z = \pm 2$.

Interaction d'échange et condensat noir Deux mécanismes spécifiques ont des effets notables sur l'observation d'une éventuelle phase quantique émergente. Le premier de ces mécanismes lève la dégénérescence des quatre états de pseudo-spin ± 1 et ± 2 des excitons A dont seuls les états ± 1 sont couplés avec les fluctuations quantiques du vide (*ie* un réservoir de photons virtuels). Il s'agit d'un processus interbande dans lequel la désexcitation d'un électron de conduction vers la bande de valence provoque l'émission d'un photon virtuel immédiatement réabsorbé par un électron de la bande de valence qui est alors promu dans la bande de conduction [68, 70]. Il en résulte que le niveau d'énergie des excitons noirs est inférieur à celui des excitons brillants. M. COMBESCOT *et al.* [68] ont montré que la condensation des excitons devait se produire dans **l'état fondamental qui est l'état noir**, ce qui rend plus délicate l'observation expérimentale du phénomène. Le second de ces mécanismes est *l'interaction d'échange* qui conduit à convertir deux excitons brillants, initialement dans les états

- $|s_z; j_z^h, j_z^e\rangle = |+1; +3/2, -1/2\rangle$
- $|s_z; j_z^h, j_z^e\rangle = |-1; -3/2, +1/2\rangle,$



en deux excitons noirs, dont les nouveaux états sont

- $|s_z; j_z^h, j_z^e\rangle = |-2; -3/2, -1/2\rangle$
- $|s_z; j_z^h, j_z^e\rangle = |+2; +3/2, +1/2\rangle$.

Les trous lourds ($j_z^h = \pm 3/2$) de chacun des deux excitons impliqués dans cette interaction sont donc échangés. Ce mécanisme à deux corps est favorisé par une densité élevée de particules. Il conduit à un couplage cohérent entre la population d'excitons noirs et la population d'excitons brillants : la fraction « brillante » de ce mélange est donc en mesure de révéler les propriétés sous-jacentes de la phase excitonique noire susceptible d'être à l'état condensé et de présenter, par exemple, une cohérence de phase à longue portée. Cet état de *condensat gris* nous garantit qu'étudier la luminescence excitonique est une démarche pertinente pour accéder aux propriétés des phases excitoniques exotiques ⁶.

Description hydrogénoïde La paire électron-trou ainsi créée constitue une pseudo-particule appelée « exciton de Mott-Wannier » : elle peut être vue comme une paire électron-trou en interaction coulombienne, similaire à un édifice quantique hydrogénoïde. L'étendue spatiale des fonctions d'onde de l'électron et du trou étant grande devant le paramètre de maille, *l'approximation de la fonction enveloppe* (voir [92]) est justifiée et la fonction d'onde de telles quasi-particules est décrite de manière analogue à celle de l'atome d'hydrogène (cf annexe A pour les calculs détaillés). Citons quelques unes des propriétés remarquables de l'exciton :

1. L'énergie de liaison de l'exciton, Ry^* est

$$R_y^* = \frac{\mu_X}{m_0} \left(\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon} \right)^2 R_y \quad (2.4)$$

où Ry est la constante de Rydberg. Son énergie de liaison est ainsi d'autant plus grande que sa masse réduite μ_X , donnée par $1/\mu_X = 1/m_e + 1/m_h$, est grande, comme c'est le cas pour les semi-conducteurs à grand gap. L'énergie de liaison est également diminuée à cause des propriétés diélectriques du matériau qui contribuent à écranter l'interaction coulombienne : l'énergie de liaison est d'autant plus grande que la constante diélectrique ε est faible, ce qui est encore le cas pour les semi-conducteurs à grand gap.

2. Dans l'approximation de la fonction enveloppe, la fonction d'onde excitonique est construite sur les états des bandes de valence et de conduction au voisinage du point Γ de la PZB, et dans l'approximation de bandes paraboliques, ce qui

6. C'est cette démarche qui est choisie dans les études présentées au paragraphe 1.3.3.



conduit aux niveaux d'énergie excitoniques

$$E_{n,\mathbf{K}} = E_{\text{gap}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2M_X} - \frac{Ry^*}{n^2} \quad (2.5)$$

où $M_X = m_e + m_h$ est la masse totale de l'exciton, \mathbf{K} son impulsion totale, et n le nombre quantique principal de la fonction d'onde hydrogénoïde associée.

3. La fonction d'onde de l'état fondamental ($n = 1, \ell = 0$) possède une décroissance exponentielle avec la distance r entre l'électron et le trou :

$$\Psi_{1s} \propto \exp(-r/a_B^{3D}) \quad (2.6)$$

où a_B^{3D} est le rayon de Bohr de l'exciton *bulk* (cf éq. A.9 de l'annexe A).

États non liés et facteur de Sommerfeld L'interaction coulombienne entre l'électron et le trou modifie le spectre d'absorption du matériau comme cela est visible sur la figure 2.7a. En l'absence d'interaction de Coulomb, le coefficient d'absorption serait proportionnel à la densité d'états, $\rho_{3D}(E)$, qui évolue avec l'énergie E en $\sqrt{E - E_{\text{gap}}}$, E_{gap} étant l'énergie de gap. La prise en compte de l'interaction coulombienne ajoute non seulement les raies d'absorption excitoniques sous le gap, mais modifie également le coefficient d'absorption pour les énergies $E > E_{\text{gap}}$ par un facteur multiplicatif appelé *facteur de Sommerfeld* [93, 94, 95]. Les particules électrons et trous *non liés* ne sont pas libres mais diffusent dans les potentiels coulombiens qu'elles créent ce qui explique que leur probabilité d'interagir mutuellement selon une transition interbande soit augmentée.

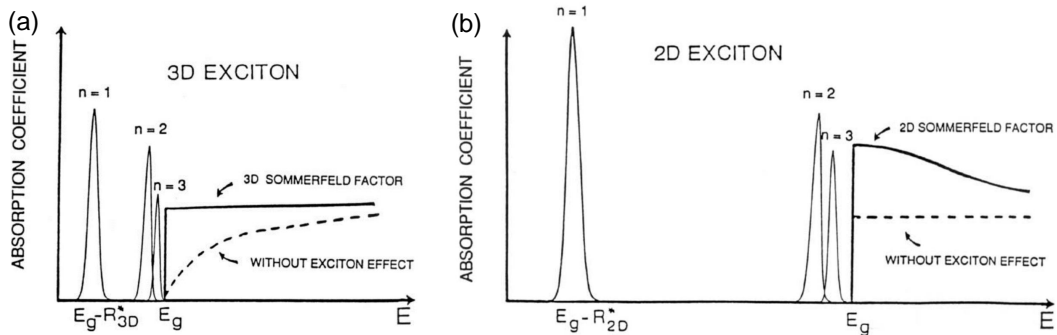


FIGURE 2.7 – Schéma du spectre d'absorption dans le cas d'une transition interbande 3D (a), et 2D (b). L'énergie de gap étant notée E_{gap} , le Rydberg excitonique R_{3D}^* ou R_{2D}^* . La courbe en pointillés illustre ce que serait la transition en l'absence de l'interaction coulombienne. Illustrations tirées de [96, 97].

Polarisation spontanée et couplage aux phonons Nous avons vu que la maille cristalline n'est pas invariante par l'inversion $c \rightarrow -c$, cette propriété générale des nitrures d'éléments III implique que ces matériaux sont piézoélectriques et possèdent

une polarisation spontanée. L'alliage ternaire constituant les barrières du puits quantique, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, voit sa polarisation électrique totale ($P_{\text{totale}} = P_{\text{spont}} + P_{\text{piezo}}$) dépendre non seulement de la teneur x en aluminium mais aussi de l'état de contrainte biaxiale résultant du processus de croissance. Il apparaît ainsi, au niveau d'une hétérojonction $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, un **champ électrique interne** de l'ordre de plusieurs centaines de kV/cm dont les conséquences seront examinées, d'une part, dans le paragraphe suivant qui traite du confinement de l'exciton dans un puits quantique et, d'autre part, de manière plus quantitative au paragraphe 3.1.1 du chapitre 3. De plus, les liaisons atomiques au sein des nitrures d'éléments III présentent un **caractère ionique marqué**, il en résulte un fort couplage (via l'interaction de Fröhlich [98]) entre les électrons et le champ électrique produit par les phonons optiques longitudinaux (phonons dits « LO »). Ainsi, le spectre de l'émission excitonique s'accompagne des multiples répliques phonons, d'un élargissement homogène de la raie de luminescence et d'une thermalisation efficace des porteurs chauds [87].

2.2 Puits quantique large et polarisation électrique

Le développement des techniques de croissance permet la réalisation de nanostructures dont la géométrie parfaitement contrôlée limite le mouvement du centre de masse de l'exciton ce qui favorise, *a priori*, son efficacité radiative. Le système avec lequel nous travaillons présente toutefois deux propriétés singulières qui font du *puits quantique large* un objet très spécifique :

1. d'une part, l'existence d'un champ électrique interne sépare l'électron et le trou en les repoussant aux extrémités opposées du puits quantique,
2. d'autre part, le puits quantique étant « large », les fonctions d'onde du trou et de l'électron ne se recouvrent que très faiblement.

Les conséquences de ces effets sont multiples : (1) diminution du taux de recombinaison radiatif et donc augmentation de la durée de vie radiative, (2) augmentation du rayon de Bohr de l'exciton et donc altération de son énergie de liaison, et (3) création d'un moment dipolaire propre à l'exciton et donc présence d'interactions inter-excitons répulsives qui empêchent notamment la formation de bi-excitons aux hautes densités.

Outil de modélisation « Schrödinger - Poisson - Coulomb » Au cours cette thèse, il a été réalisé un outil de modélisation permettant de prédire les principales propriétés des structures étudiées et donc de définir *a priori* les paramètres optimaux pour leur croissance :

- L'énergie de la transition E_1H_1 et sa durée de vie radiative τ_{rad} . Ces grandeurs



découlent de la forme des fonctions d'onde obtenues par la résolution de l'équation de Schrödinger.

- L'évolution de ces deux grandeurs (E_1H_1 et τ_{rad}) avec la densité de charges injectées. Cela implique de résoudre de manière couplée l'équation de Poisson et l'équation de Schrödinger.
- L'énergie de liaison de l'exciton, R_y^* , que l'on obtient en ajoutant le terme coulombien dans l'hamiltonien biparticulaire (électron + trou) et en calculant sa plus basse valeur propre (état fondamental). Dans notre cas où l'on travaille avec des nitrures (par exemple GaN), l'énergie de l'exciton est « grande » (~ 15 meV dans le puits), et donc sa variation avec la densité d'excitons est susceptible⁷ d'avoir une influence mesurable sur l'énergie de la PL : cela n'est pas le cas dans les arséniures (par exemple GaAs) pour lesquels la variation de l'énergie de liaison peut, en première approximation, être négligée.

Ainsi, prédire l'évolution de l'énergie de liaison des excitons en fonction de leur densité requiert la résolution conjointe des effets quantiques, coulombiens et électrostatiques. Le détail de cette méthode est donné dans le chapitre 3 (§ 3.3). Nous décrivons ci-après les briques conceptuelles utilisées pour la mise en œuvre de ce calcul.

Confinement quantique et transition E_1H_1 Le puits quantique proprement dit est réalisé par l'empilement de trois couches successives :

- une première barrière épaisse, constituée de l'alliage ternaire $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$,
- le matériau constituant le cœur du puits, le binaire GaN,
- une seconde barrière épaisse, identique à la première.

On réalise ainsi une *hétérostructure de type I* (cf fig. 2.8a) pour laquelle les fonctions d'onde de l'électron et du trou sont localisées conjointement *dans* le puits. L'existence du puits rompt l'invariance du cristal par translation dans la direction z : si les composantes k_x et k_y du vecteur d'onde demeurent pertinentes pour décrire l'état propre d'un électron dans cette structure, la composante k_z doit être remplacée par un nombre quantique entier, n_e . Ce nombre quantique précise l'état propre de l'électron solution de l'équation de Schrödinger 1D relative à la direction z et au potentiel $E_c(z)$ décrivant l'évolution de la bande de conduction dans la direction de croissance. Les états orbitaux accessibles aux électrons de la bande de conduction peuvent être décrits par une fonction d'onde

$$\Psi_e(x_e, y_e, z_e) = \Phi_{n_e}(z_e)e^{i(k_x x_e + k_y y_e)} \quad (2.7)$$

7. Cela est particulièrement vrai lorsque la densité s'approche de la densité critique de Mott, n_{Mott} , où la liaison excitonique est très affaiblie.



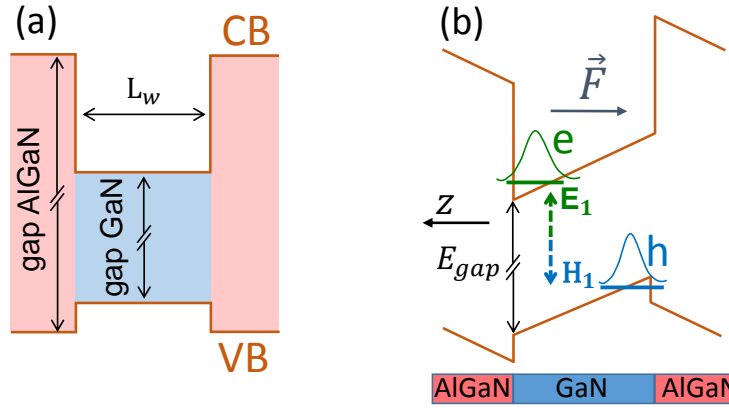


FIGURE 2.8 – Schéma de l'hétérostructure à puits quantique. Diagramme énergétique (a) **sans** le champ électrique interne, réalisant une hétérostructure de type I dans laquelle les fonctions d'onde d'électrons et de trous sont localisées « à l'intérieur » du puits quantique et (b) **avec** le champ interne qui sépare la fonction d'onde de l'électron de celle du trou. On constate que l'énergie de la transition E_1H_1 est *inférieure* à l'énergie du gap du matériau puits.

où $\Phi_{n_e}(z_e)$ est solution de l'équation de Schrödinger relative à la bande de conduction :

$$\left[\frac{\hat{P}_z}{2m_e^z} + E_c(z) \right] \Phi_{n_e}(z_e) = E_{n_e} \Phi_{n_e}(z_e) \quad (2.8)$$

Le niveau fondamental pour l'électron est noté E_1 . La même description pour les trous conduit à l'équation

$$\left[\frac{\hat{P}_z}{2m_{hh}^z} + E_v(z) \right] \Phi_{n_h}(z_h) = H_{n_h} \Phi_{n_h}(z_h) \quad (2.9)$$

dans laquelle on a pris compte de la masse des trous lourds dans la direction de croissance, m_{hh}^z et où $E_v(z)$ représente l'évolution de la bande valence dans la direction z . L'énergie fondamentale pour le trou est notée H_1 . Pour obtenir l'énergie de la luminescence de la raie excitonique, il faut se rappeler qu'elle résulte d'une transition interbande mais aussi qu'elle concerne deux particules liées par l'interaction coulombienne. En tenant compte de l'énergie $E_B > 0$ de liaison de l'exciton⁸, l'énergie $E_0 = \hbar\omega_X$ du photon émis lors de la transition fondamentale

$$E_0 = \hbar\omega_X = E_1 - H_1 - E_B \quad (2.10)$$

est égale à l'énergie de la transition E_1H_1 diminuée de l'énergie de liaison de l'exciton⁹.

8. La valeur de l'énergie de liaison E_B est estimée à une dizaine de meV dans les puits quantiques que nous avons étudiés.

9. Pour être tout à fait complet, il faudrait également préciser que les états propres de l'exciton forment un ensemble discret qui est indexé par deux nombres quantiques caractéristiques de la



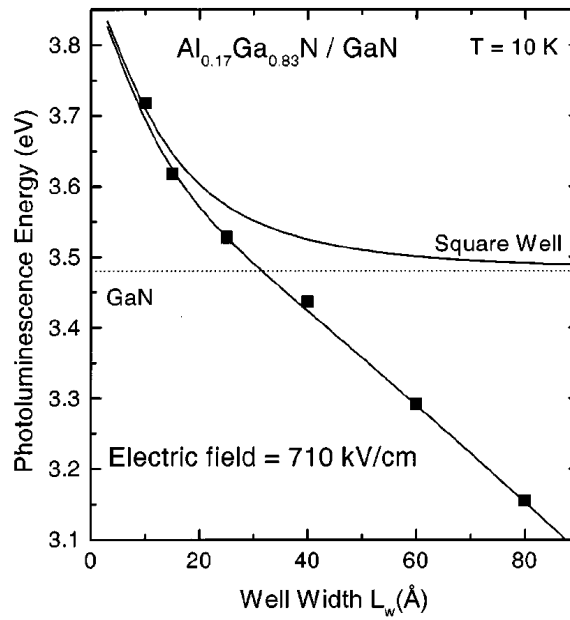


FIGURE 2.9 – Energie de la luminescence d’un puits quantique GaN en fonction de sa largeur, la composition des barrières étant fixée à 17% en aluminium. D’après [99].

Effet Stark quantique confiné Par rapport à une situation de puits carré (situation de « bandes plates », fig. 2.8a), le champ électrique interne modifie les niveaux énergétiques E_1 et H_1 comme cela est illustré sur la figure 2.8b. Il en résulte, pour des largeurs L_w de puits suffisamment grandes, un *red-shift* de l’énergie E_0 de la transition radiative (cf fig. 2.9) qui s’effectue linéairement¹⁰ avec la largeur L_w du puits

$$E_0 = E_{\text{gap}}(\text{GaN}) + E_{e1} + E_{h1} - eF_{\text{IN}}L_w - E_B \quad (2.11)$$

où F_{IN} est la valeur du champ électrique interne dans la direction z , E_B est l’énergie de liaison de l’exciton et E_{e1} et E_{h1} sont les énergies dues à l’effet de confinement quantique de l’électron et du trou, respectivement. Les figures 2.8b et 2.9 montrent que la transition E_1H_1 peut posséder une énergie inférieure à celle du gap du matériau puits ; dans nos échantillons la transition se situe typiquement plus de 300 meV en dessous de l’énergie de gap de GaN.

Excitons 2D, raies d’absorption et luminescence La figure 2.7b donne l’allure du spectre d’absorption d’un puits quantique. En l’absence de l’interaction coulombienne, le spectre serait le reflet de la densité d’états joints $\rho_{2D}(E) \propto \mathcal{H}(E - E_{\text{gap}})$ en 2D. Tout

quantification du mouvement relatif de l’électron et du trou dans le plan du puits quantique.

10. En régime de bandes plates, les fonctions d’onde des états E_1 et H_1 sont paires. Ainsi, l’approche perturbative doit être poussée à l’ordre deux pour prendre en compte l’effet du champ électrique qui se traduit par une dépendance quadratique de l’énergie de transition avec l’intensité F_{IN} de ce champ. Lorsque le champ électrique est suffisamment grand, le décalage tend à devenir linéaire car les fonctions d’onde adoptent des parités différentes sous l’effet de ce champ.

comme pour le cas 3D, l'interaction coulombienne fait non seulement apparaître les raies excitoniques sous le gap, mais augmente également le coefficient d'absorption pour $E > E_{\text{gap}}$. La densité d'états d'excitons possède également une allure de marche d'escalier mais, en raison de la conservation de la quantité de mouvement, seules les recombinaisons avec $\mathbf{K}_X \approx \mathbf{0}$ sont possibles lors de l'émission d'un photon : on peut dire que « le cône radiatif se vide par les états froids ». Enfin, compte tenu de l'important écart énergétique (~ 10 meV) entre le premier excité ($n = 2$) et le fondamental ($n = 1$), seule la luminescence du niveau fondamental est en pratique observée.

Modulation du champ interne Notons que l'intensité F_{IN} du champ électrique interne, et donc l'énergie de la transition radiative, est susceptible de varier car :

- Un accroissement de la composition en aluminium des barrières augmente le champ interne et **diminue donc l'énergie de l'exciton**. La composition en aluminium des barrières peut éventuellement varier localement dans le plan (xy) et conduire au phénomène de localisation des excitons, discuté au paragraphe suivant.
- Un accroissement de la densité d'excitons (par exemple par un pompage optique plus important) conduit à un écrantage du champ électrique interne qui **augmente l'énergie de l'exciton**. C'est grâce à ce décalage énergétique vers les hautes énergies (*blueshift*) de l'énergie E_0 de la raie excitonique

$$E_0(n_X) = E_0(n_X = 0) + E_{\text{int}}(n_X) \quad (2.12)$$

où $E_{\text{int}}(n_X)$ représente l'accroissement énergétique de l'énergie d'un exciton à cause des interactions répulsives avec ses homologues, que l'on **estime la densité n_X d'excitons**¹¹.

- Le dépôt d'une électrode métallique en surface ou l'application d'une tension de polarisation modifie le champ interne et donc également l'énergie de l'exciton. C'est par ce mécanisme que l'on réalise des pièges électrostatiques (cf chap. 4) et que l'on est capable de contrôler électriquement le transport des excitons (cf chap. 6).

Durée de vie radiative, teneur en aluminium et largeur de puits Comme nous l'avons précisé, une augmentation de la composition en aluminium dans les barrières augmente le champ interne et, d'une part, diminue l'énergie de la transition et d'autre part, sépare spatialement davantage les fonctions d'onde de l'électron et du trou, ce

11. La relation entre le *blueshift*, E_{int} , et la densité excitonique n'est pas nécessairement linéaire. Différents modèles seront proposés au chapitre suivant pour approcher cette relation (cf §3.5).



qui diminue leur recouvrement. Or, l'intensité radiative I est fonction de la densité excitonique n_X , de la teneur x_{Al} en aluminium et de la largeur L_w du puits quantique selon

$$I = \frac{n_X}{\tau_{\text{rad}}(n_X, x_{\text{Al}}, L_w)} \quad (2.13)$$

où le taux de recombinaison $1/\tau_{\text{rad}}(n_X, x_{\text{Al}}, L_w)$ est proportionnel au carré du recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou [92]

$$1/\tau_{\text{rad}} \propto |\langle \Phi_e | \Phi_h \rangle|^2. \quad (2.14)$$

Choisir un système expérimental pour réaliser un fluide d'excitons indirects implique de choisir une durée de vie radiative τ_{rad} relativement longue, typiquement la μs , et donc imposer une relation entre la largeur du puits quantique et la composition en aluminium : l'augmentation de l'une de ces deux grandeurs est compensée par la diminution de l'autre de manière à laisser invariante la durée de vie radiative. Le calcul des fonctions d'onde excitoniques qui a été réalisé dans cette thèse permet de fixer l'espace des paramètres liés à la conception des échantillons, comme sur la figure 2.10 : il est représenté par l'évolution conjointe de la largeur de puits avec la teneur en aluminium (tracé bleu, axe de gauche). Le tracé rouge (axe de droite) montre que l'énergie de la transition suit une évolution principalement décroissante avec l'augmentation de la teneur en aluminium¹². C'est en se basant sur ce raisonnement qu'ont été choisis les paramètres des échantillons utilisés dans cette thèse et qui sont décrits au paragraphe 2.5.

2.3 Effet du désordre et localisation

On pourrait définir *le désordre* comme étant l'écart à l'idéalité :

- la structure cristalline n'est pas parfaite mais présente des défauts que l'on peut classer par dimensionnalité (lacunes, atomes en sites interstitiels, dislocations, macles, joints de grains, etc...). Un défaut peut jouer le rôle de centre de recombinaison non radiatif ou de piège capturant un électron par exemple ;
- dans un alliage ternaire tel que $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, la composition chimique n'est pas rigoureusement uniforme et, à l'échelle du nanomètre, le nombre d'atomes d'aluminium à proximité d'un électron de conduction ou d'un trou de la bande de

12. Cette décroissance quasi-linéaire de la largeur de puits avec la teneur en aluminium montre que la variation du terme $-FL_w$ de l'effet Stark confiné est dominée par le terme du type $-L_w\Delta F$ et non par le terme $-F\Delta L_w$. Cela résulte de la dépendance exponentielle du recouvrement des fonctions d'onde avec la largeur de puits. Une variation relative importante de la teneur en aluminium est compensée par une variation relative très faible de la largeur du puits quantique.



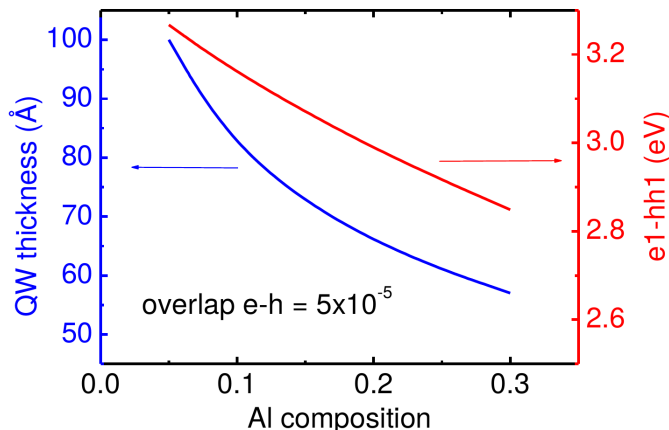


FIGURE 2.10 – Évolution contrainte de la largeur du puits quantique (axe de gauche) et de la composition en aluminium dans la barrière de manière à **maintenir constante la durée de vie radiative**. L'hypothèse utilisée pour le calcul est un overlap $|\langle \varphi_e | \varphi_h \rangle|^2 = 5 \times 10^{-5}$, ce qui correspond à une durée de vie radiative de l'ordre de 1 ns. L'énergie de la transition est tracée en rouge (axe de droite).

valence varie notablement lorsqu'on se déplace dans le plan du puits quantique. L'intensité du champ électrique interne varie alors dans l'espace, il en résulte pour l'exciton un potentiel énergétique possédant de nombreux minima locaux répartis dans le plan du puits quantique ;

- le nombre de monocouches constituant la largeur du puits quantique est contrôlé du mieux possible, c'est-à-dire à la monocouche près. Ainsi les parois du puits sont donc constituées d'îlots se distinguant les uns des autres par une monocouche d'épaisseur. Cet effet est ici encore à l'origine d'un potentiel énergétique désordonné *via* la variation du terme Stark, $-FL_w$, avec L_w .

De plus, le désordre est une notion relative qui dépend de l'échelle d'observation adoptée. Son effet sera *a priori* **plus marqué pour le trou** que pour l'électron car, sa masse étant plus élevée, sa fonction d'onde est davantage localisée et, en quelque sorte, moyenne moins efficacement les variations locales de composition [100, 101]¹³, que ne ferait celle de l'électron dont l'extension spatiale est supérieure.

Nous décrivons ci-après quelques unes des principales manifestations du désordre qui sont utiles pour accéder à une meilleure compréhension du comportement des excitons dipolaires dans un puits quantique large.

Désordre et recombinaisons non-radiatives On constate expérimentalement que l'intensité de luminescence de la raie excitonique diminue lorsque l'on augmente la

13. Cet effet de « rétrécissement motionnel » (*motional narrowing*) résulte du fait que le désordre ΔV d'un potentiel $V(x, y)$ énergétique engendre une faible dispersion $\Delta\rho_{2D} \ll \Delta V$ de la densité d'états en énergie résultant de la résolution de l'équation de Schrödinger : tout se passe comme si, l'étendue spatiale de la fonction d'onde contribuait à lisser le désordre « vu par la particule quantique ».

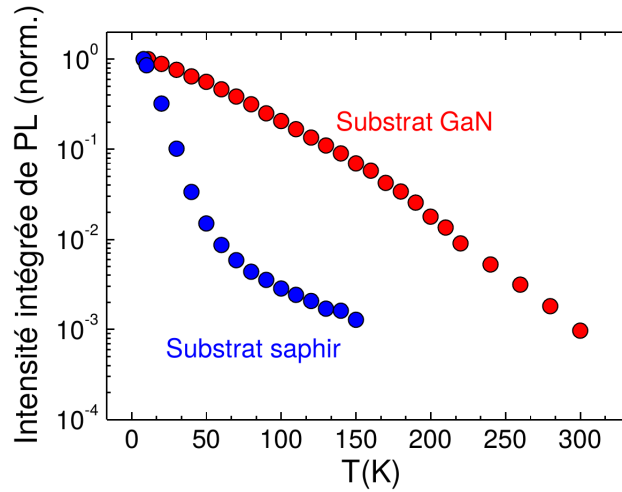


FIGURE 2.11 – Évolution de l'intensité de la raie excitonique d'un puits quantique AlGaIn/ GaN de 7 nm en fonction de la température pour deux substrats distincts. La teneur en aluminium de la barrière est de 19% (données CRHEA).

température (cf fig. 2.11), toutes choses égales par ailleurs. Cela est dû à la compétition entre les phénomènes radiatifs et la destruction des excitons par des processus non-radiatifs. La densité d'exciton, n_X , obéit à l'équation de conservation suivante :

$$\frac{dn_X}{dt} = g - \frac{n_X}{\tau_{\text{rad}}} - \frac{n_X}{\tau_{\text{nr}}} \quad (2.15)$$

où $1/\tau_{\text{rad}}$ ($1/\tau_{\text{nr}}$) est le taux recombinaison radiatif (non-radiatif), g le taux de génération de paires ; $I = n_X/\tau_{\text{rad}}$ étant l'intensité de luminescence. Le taux de transition radiatif $1/\tau_{\text{rad}}$ est, *a priori*, peu dépendant de la température. Sous l'effet d'un accroissement de la température, les recombinaisons non-radiatives sont favorisées ($\tau_{\text{nr}} \rightarrow 0$), ce qui réduit davantage la densité de porteurs n_X et donc l'intensité radiative. Le rôle du désordre peut être envisagé comme suit : lorsque la température est faible, les excitons sont plus facilement « localisés » au niveau des minima de potentiel du désordre ce qui limite la probabilité qu'ils rencontrent, dans leur mouvement, les centres de recombinaison non-radiatifs (dislocations par exemple). Par ailleurs, lorsque la température s'élève, les excitons accèdent à des états d'énergie cinétique supérieure et leurs interactions avec les phonons sont plus nombreuses, ils sont ainsi moins cantonnés à proximité des minima de potentiel¹⁴ : ils accèdent ainsi plus facilement aux centres de recombinaison non-radiatifs¹⁵.

14. Cela est également en accord avec la forme en « S » de la figure 2.12b montrant l'écart à la relation empirique de Varshni [102] donnant l'évolution de l'énergie du gap avec la température.

15. Mentionnons également l'effet de la localisation d'excitons sur la formation de complexes excitoniques dans des puits ZnO/ZnMgO non polaires [103].

Localisation et décalage de Stokes Dans les puits quantiques fins de force d'oscillateur élevée, et de durée de vie radiative courte, on constate expérimentalement qu'il existe un décalage énergétique (appelé décalage de Stokes [104], ou « Stokes-shift ») entre, d'une part, la raie de luminescence excitonique d'un puits quantique telle qu'on peut l'observer dans une expérience de photoluminescence¹⁶ et, d'autre part, la chute de réflectivité¹⁷ qui est la signature du seuil d'absorption de ce même puits quantique. Dans l'hypothèse d'une structure idéale sans désordre, l'absorption et l'émission par les porteurs thermalisés s'effectuent à l'énergie du niveau fondamental de l'exciton. En pratique, on constate que l'énergie de la photoluminescence à basse température est **inférieure au seuil d'absorption** déterminé par la courbe de réflectivité, cette différence d'énergie est en général de l'ordre de quelques meV. Le Stokes-shift [105] dans les puits quantiques est principalement dû aux fluctuations de largeur du puits et au désordre d'alliage [106]. Les excitons qui se recombinent sont ceux qui se sont localisés sur les minima de potentiel : d'une part ce sont les états les plus peuplés aux basses températures et, d'autre part, la localisation favorise les recombinaisons radiatives au détriment des processus non-radiatifs comme expliqué au paragraphe précédent. La bonne qualité d'un puits quantique est d'ailleurs souvent quantifiée en terme d'une faible valeur de Stokes-shift. *A contrario*, **dans le cas d'un puits quantique large**, la force d'oscillateur est faible et les mesures de réflectivité (ou d'absorption) ne présentent aucune singularité au voisinage de l'énergie de la transition E_1H_1 qui correspond à la valeur seuil de la *densité d'états délocalisés*, $\rho_{2D}(E)$ du puits. La seule information que l'on est susceptible d'obtenir est l'énergie des *états localisés via* la luminescence. Toutefois, le concept de Stokes-shift, au sens où il représente l'écart entre, d'une part, la densité d'états **délocalisés** et, d'autre part, la densité d'états localisés, demeure pertinent¹⁸. Une possibilité pour réduire ce Stokes-shift est d'ajouter une mince couche d'AlN (une ou deux monocouches) qui réduit le désordre d'alliage et augmente la hauteur de barrière. L'utilisation d'une telle couche est déjà répandue dans les technologies de transistors à haute mobilité électronique (HEMT), elle porte le nom d'espaceur (« spacer » [107]). Cette couche doit être apposée sur le bord du puits où se localise le trou car, comme nous l'avons expliqué (cf 2.3), c'est lui qui est le plus sensible au désordre.

16. La *photoluminescence* (PL) est le phénomène d'émission de lumière par une couche active (luminescence) dans laquelle on a apporté des charges libres à l'aide d'une excitation optique absorbée par des états d'énergies supérieures à celle où la luminescence se produit.

17. La *réflectivité* est une technique expérimentale qui consiste à mesurer l'intensité réfléchie par un échantillon illuminé à l'aide d'un rayonnement laser dont on fait varier la longueur d'onde, à puissance constante. La diminution du ratio puissance « réfléchie / incidente » quantifie le coefficient d'absorption. L'avantage de cette technique est qu'elle permet d'avoir une information sur l'absorption sans nécessiter un montage « traversant ».

18. Les états localisés possèdent vraisemblablement une plus grande force d'oscillateur et contribuent donc majoritairement à la luminescence ; les états délocalisés quant à eux contribuent au transport.



Désordre et écart à la loi de Varshni La figure 2.12a présente l'énergie de la raie de photoluminescence excitonique en fonction de la température¹⁹. On note un écart à la loi empirique de Varshni lorsque la température diminue en dessous de 130 K environ : l'énergie de la photoluminescence diminue lors du refroidissement de l'échantillon. Cela s'explique par la localisation des excitons au niveau des minima de potentiel du désordre [108]. Lorsque la température diminue encore davantage, une remontée de l'énergie s'observe : la mobilité des excitons est tellement réduite qu'ils n'explorent plus suffisamment le potentiel désordonné et se recombinent avant d'atteindre les états les plus profonds en énergie. La forme de « S » de cette courbe est donc bien une manifestation du désordre.

Influence du désordre sur la largeur de raie Sur la figure 2.12b, la largeur de raie de luminescence (FWHM) est représentée en fonction de la largeur du puits quantique AlGaN/ GaN pour différentes compositions en aluminium de la barrière. On constate l'existence d'un optimum pour lequel la raie de luminescence est la plus fine. Cet optimum est le fruit d'une compétition entre deux effets agissant en sens contraire sur la largeur de raie. Supposons que la composition nominale en aluminium x augmente localement de Δx , cette variation de composition d'aluminium s'accompagne également :

- d'une augmentation du champ interne F_{IN} d'une quantité ΔF . L'augmentation du champ diminue à son tour l'énergie de l'émission de la quantité $e\Delta F.L_w$. Il s'agit donc d'une diminution proportionnelle à L_w .
- d'une augmentation de l'énergie de gap du semi-conducteur AlGaN constituant les barrières du puits. Ainsi, les énergies de confinement quantique E_{e1} et E_{h1} (cf éq. 2.11) augmentent-elles aussi de manière quasi proportionnelle à la teneur en aluminium. Il en résulte une **augmentation de l'énergie indépendante de L_w** .

Ainsi, on comprend qu'il existe une largeur optimale de puits quantique L_0 en deçà de laquelle l'effet du désordre est dominé par les fluctuations du potentiel de confinement, et au dessus de laquelle, c'est la variation locale de champ interne qui explique majoritairement l'élargissement de la raie [109]. L'étoile rouge représente la largeur de raie obtenue avec l'échantillon D704 dont la composition en aluminium est $x=0,09$ et avec lequel nous avons travaillé. On constate, de manière surprenante, que ce point expérimental se situe bien en deçà des largeurs de raies obtenues pour des échantillons aussi larges. Pour expliquer cet apparent paradoxe, il faut distinguer les conditions

19. Les deux échantillons de la figure 2.12 issue de l'article de GALLART *et al.* [108] ne diffèrent que par la valeur du champ électrique interne : l'échantillon numéro 2, composé de 4 puits, possède un champ interne plus faible, ainsi une dépendance au désordre moins marquée que l'échantillon numéro 1.



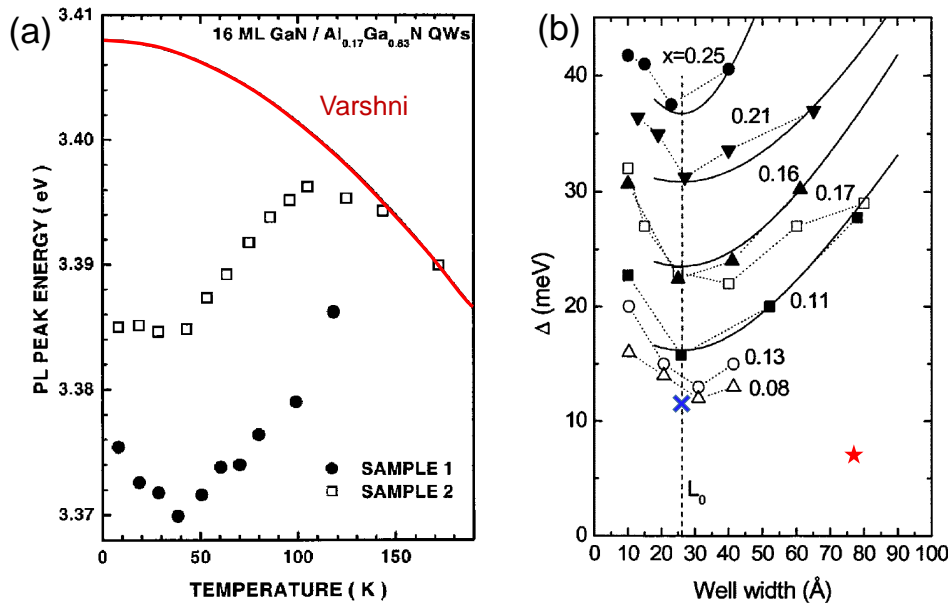


FIGURE 2.12 – (a) Évolution de l'énergie de la raie de photoluminescence excitonique en fonction de la température. La courbe rouge correspond à la loi empirique $E_0 - \alpha T^2 / (\beta + T)$. (b) Largeurs à mi-hauteur (FWHM) de la raie excitonique en fonction des largeurs de puits (AlGaN/GaN). La concentration x en aluminium dans les barrières AlGaN est indiquée sur le graphe. La modélisation $\Delta(x, L_w)$ (courbes en traits noirs) rend compte de la dépendance en concentration et en largeur de puits [109]. La croix bleue (échantillon EPFL [44]) et l'étoile rouge (échantillon étudié dans cette thèse) correspondent aux données de puits quantiques à 9% d'aluminium.

d'excitation et de collecte de la luminescence dans lesquelles la mesure a été faite par rapport aux conditions des autres points de ce graphe. Les autres points (y inclus la croix bleue qui est également un échantillon à 9% d'aluminium) sont issus de mesures de macrophotoluminescence pour lesquelles un spot laser large est utilisé. Au contraire, les données du D704 sont issues d'une expérience de microphotoluminescence dans laquelle la lumière est collectée dans une zone spatiale uniforme en excitons que nous avons tout spécialement créée dans ce but : les excitons piégés s'y sont accumulés et possèdent des conditions de thermalisation bien meilleures²⁰, c'est d'ailleurs l'un des principaux résultats de cette thèse qui sera précisé dans les chapitres suivants.

2.4 Magnéto-exciton

Pour un exciton 2D ou 3D, c'est l'interaction coulombienne, à l'origine de sa formation, qui conditionne l'extension spatiale de sa fonction d'onde : elle est de l'ordre de son rayon Bohr, a_B . En présence d'un champ magnétique B , il apparaît une interaction supplémentaire dont l'intensité définit une échelle d'espace caractéristique appelée *longueur magnétique*²¹

$$\ell_B = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}}, \quad (2.16)$$

avec, pour fixer les idées, ℓ_B qui vaut environ 26 nm pour $B = 1$ T et 8,1 nm pour 10 T. A la limite des très forts champs magnétiques, la liaison excitonique est détruite et les états du système électron-trou sont décrits par des « orbites cyclotroniques » dont les énergies sont quantifiées, il s'agit des niveaux de Landau (LL) :

$$E_e^{LL} = \hbar\omega_c^e(N_e + 1/2) \quad \text{et} \quad E_h^{LL} = -\hbar\omega_c^h(N_h + 1/2) \quad (2.17)$$

où $E_{e(h)}$ est le niveau de Landau de l'électron (du trou) qui dépend, non seulement de sa masse *via* la pulsation $\omega_c^{e(h)} = eB/2m_{e(h)}$ mais aussi, du champ magnétique de manière linéaire.

Lorsqu'un exciton est plongé dans un champ magnétique, l'énergie de sa luminescence est modifiée par

1. un terme Zeeman, ayant pour origine la structure de spin de l'électron et de pseudo-spin du trou (cf § 2.1). Le décalage énergétique qui en résulte évolue linéairement avec le champ magnétique et proportionnellement au facteur de

20. Davantage de détails sont donnés au paragraphe 4.4.2.

21. La longueur magnétique est la taille typique du rayon classique de l'orbite cyclotronique du plus faible niveau de Landau. Elle s'obtient à partir de l'égalité $\Delta x \cdot \Delta p = \hbar$, avec $x = r$ et $r = p/eB$, où r , p sont le rayon de l'orbite et l'impulsion de la particule.



Landé g_X de l'exciton

$$\Delta E_{\text{Zeeman}} = \pm g_X \mu_B B \quad (2.18)$$

où μ_B est le magnéton de Bohr. Il en résulte un dédoublement énergétique de la raie de PL pouvant être résolu par l'analyse de sa polarisation ;

2. un terme « orbital », fonction du rayon de Bohr a_B de l'exciton, et dont la dépendance avec le champ magnétique est

(a) quadratique avec le champ magnétique, lorsque la longueur magnétique est grande devant le rayon de Bohr, $\ell_B \gg a_B$, et donné par le décalage diamagnétique

$$\Delta E_{1s}^{\text{dia}} = \frac{e^2 \langle r_{\perp}^2 \rangle}{8\mu_X} B^2 = \gamma_D B^2, \quad (2.19)$$

où $a_B^{\perp} = \sqrt{\langle r_{\perp}^2 \rangle}$ est le rayon de Bohr dans le plan perpendiculaire au champ appliqué et $\gamma_D = e^2 (a_B^{\perp})^2 / 8\mu_X$ est appelé coefficient diamagnétique,

(b) ou bien selon une dépendance plus complexe avec le champ magnétique, lorsque $a_B > \ell_B$, c'est-à-dire lorsque l'interaction magnétique n'est plus négligeable devant l'interaction coulombienne et le système électron-trou doit être décrit comme un « magnéto-exciton ».

Ainsi, le magnéto-exciton peut être défini comme un objet quantique qui décrit l'état d'un système électron-trou lorsque les interactions coulombienne et magnétique sont du même ordre de grandeur. LOZOVIK *et al* ont montré qu'en 2D, il pouvait exister une transition de phase brutale entre un exciton hydrogénoïde et un magnéto-exciton, la relation de dispersion et donc la masse effective de l'exciton étant également affectées par la présence du champ magnétique [110].

Magnéto-absorption, masse et rayon de Bohr de l'exciton L'évolution sous champ magnétique de l'énergie de l'exciton donne accès à son rayon de Bohr a_B et aussi à son facteur de Landé, g_X , *via* le suivi des décalages, respectivement, diamagnétique et Zeeman [111, 112, 113]. La figure 2.13a donne les énergies E_{σ^+} et E_{σ^-} , de chaque polarisation σ^+ et σ^- , des transitions ns obtenues en spectroscopie d'absorption sous champ magnétique pour une monocouche de disulfure de tungstène (WS_2 , cf § 1.4). On constate sur la figure 2.13b que la variation de l'énergie diamagnétique, avec le champ magnétique se fait :

- de manière quadratique, $\Delta E^{\text{dia}} \propto B^2$, sur toute la gamme de champ magnétique pour les états fortement liés 1s et 2s.



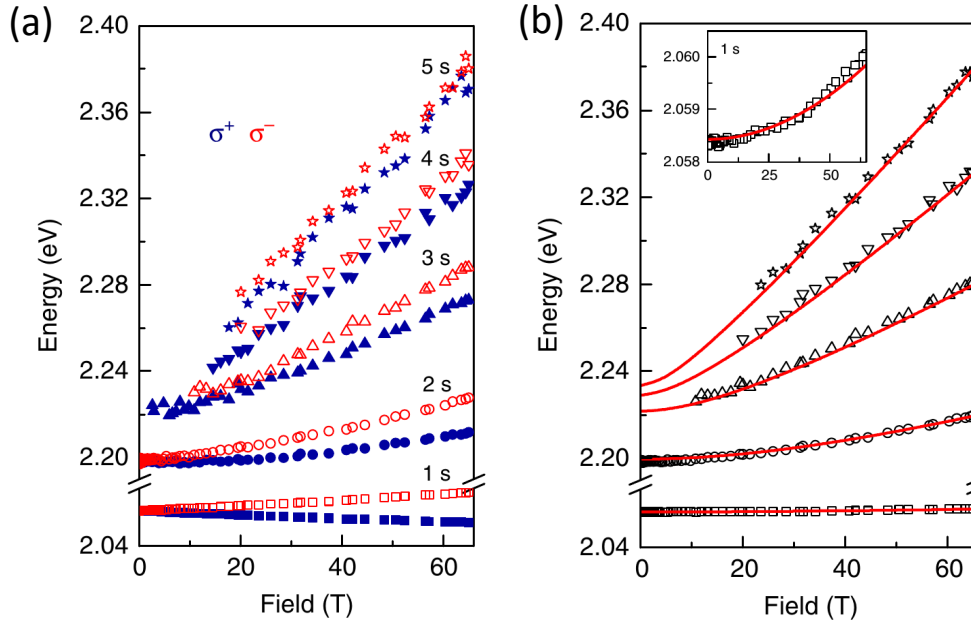


FIGURE 2.13 – Résultats de spectroscopie magnéto-optique sur une monocouche WS_2 : (a) énergies des transitions excitoniques 1s à 5s en fonction du champ magnétique appliqué, pour les deux polarisations σ^\pm . (b) moyenne des énergies des transitions σ^\pm de chaque état ns , s'affranchissant de l'effet Zeeman et mettant en évidence le décalage diamagnétique. Les courbes rouges sont issues de la modélisation « Coulomb Rytova-Keldysh » décrite dans l'article d'où sont tirées ces figures [111].

- avec une évolution, d'abord quadratique pour les faibles valeurs de B , puis linéaire aux fortes valeurs de B pour les états 3s à 5s dont la liaison excitonique est moins forte.

Ces observations s'interprètent de la façon suivante.

- Tant que l'énergie magnétique est faible devant l'énergie de l'édifice excitonique, l'approche perturbative est satisfaisante et le modèle quadratique $\Delta E^{\text{dia}} \propto B^2$ faisant intervenir la masse réduite de l'exciton μ_X et le rayon de Bohr dans le plan $a_B = \sqrt{\langle r_\perp^2 \rangle}$, est bien adapté.
- Lorsque l'énergie magnétique est suffisamment grande et l'énergie de liaison des niveaux ns suffisamment faible, l'interaction magnétique n'est plus négligeable devant l'interaction de Coulomb.

Les courbes rouges de la figure 2.13b résultent d'une telle modélisation : on constate que, pour les niveaux 3s, 4s et 5s, le décalage énergétique tend à devenir linéaire à fort champ, en accord avec un comportement d'orbite cyclotronique (niveaux de Landau). Ce modèle permet, en outre, de déterminer la masse effective des excitons mais aussi les paramètres relatifs à l'écrantage du potentiel coulombien.

En conclusion, cette étude montre comment les mesures de magnéto-absorption permettent d'accéder aux propriétés des excitons de ces matériaux 2D.

Champ magnétique : désordre et transport La mesure du décalage diamagnétique donne accès à l'étendue spatiale de la fonction d'onde. Cette idée est utilisée [101, 100, 114, 115] afin de sonder les effets de localisation des excitons dans les fluctuations de potentiel du désordre²². Des expériences de magnéto-microphotoluminescence avec des puits quantiques AlGaAs/GaAs ont permis d'établir que plus l'exciton est énergétique, plus son « shift diamagnétique » est grand et moins sa fonction d'onde est localisée [116]. Par ailleurs, il a été montré que, dans les puits quantiques CQWs AlGaAs/GaAs, les **propriétés de transport** des magnéto-excitons (MX) sont largement influencées par le champ magnétique : à fort champ magnétique, l'accroissement de la masse des MX réduit significativement leur vitesse de diffusion [117, 118, 75].

2.5 Échantillons

Les échantillons proviennent du Centre de Recherche pour l'Hétéro-Epitaxie et ses Application (CNRS-CRHEA, Valbonne, France).

Epitaxie Il s'agit d'une croissance homoépitaxiale par jet moléculaire sous ultra-vide (MBE) sur les plans c d'un substrat GaN. Les deux types d'échantillons avec lesquels nous avons travaillé (baptisés D704 et D713), proviennent de deux substrats différents. L'échantillon D704 est crû sur le substrat LUMILOG, dopé n, dont la densité de dislocations traversantes (TDD) est de l'ordre de $2 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$. L'échantillon D713 est crû sur le substrat AMMONO, dopé n, dont la densité de dislocations traversantes (TDD) est plus faible, de l'ordre de $1 \times 10^4 \text{ cm}^{-2}$. Le changement de substrat par rapport aux travaux antérieurs de F. Fedichkin dans l'équipe (utilisant principalement un substrat saphir) constitue un progrès majeur de cette étude.

Métallisation des surfaces La figure 2.14a représente la vue en coupe de l'échantillon : on y distingue les métallisations effectuées par lithographie optique. Une bicouche métallique (Ni 5 nm / Au 5nm) joue le rôle d'électrode semi-transparente (thin NiAu). Une électrode plus épaisse (400 nm, thick NiAu) permet de réaliser les contacts électriques externes afin de polariser électriquement les structures. La face arrière est également métallisée²³ et constitue l'électrode de masse. Dans certains échantillons, l'électrode épaisse est séparée du matériau nitrure par une couche isolante d'oxyde SiO_2 , initialement dans le but de limiter les éventuels courants de fuite.

22. Cf § 2.3 pour une description succincte du désordre et des effets de localisation.

23. La métallisation de la face arrière est constituée de quatre dépôts successifs : Ti 30 nm, Al 180 nm, Ni 40 nm, Au 200 nm.



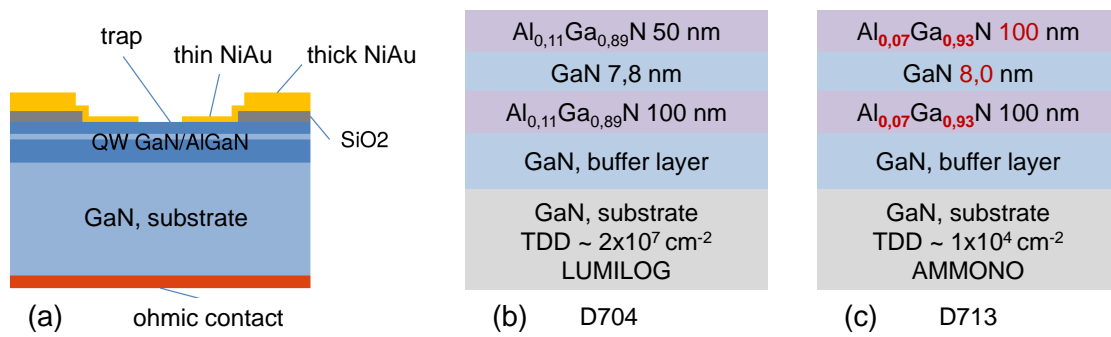


FIGURE 2.14 – Structure des échantillons utilisés. (a) vue en coupe de l'échantillon avec le substrat, la structure épitaxiale, les électrodes métalliques et le contact ohmique en face arrière. (b,c) échantillons D704 et D713 qui diffèrent par la teneur en aluminium dans les barrières, la largeur de la barrière supérieure, l'épaisseur du puits quantique et la nature du substrat.

Teneur en aluminium Les deux échantillons D704 et D713 avec lesquels nous avons travaillé **se distinguent également par la teneur en aluminium** dans les barrières (cf fig. 2.14b,c). La diminution de la teneur en aluminium a pour objectif d'améliorer la qualité de l'échantillon en réduisant l'effet du désordre d'alliage (cf §. 2.3). En accord avec l'analyse présentée sur la figure 2.10, la réduction de la teneur en Al (11% \rightarrow 7%) est compensée par une légère augmentation de la largeur du puits quantique de manière à maintenir la durée de vie radiative de l'ordre de la centaine de nanosecondes.

Différentes géométries de pièges Pour chacun des deux échantillons D704 et D713, plus de **91** structures distinctes ont été conçues et réalisées. Elles constituent 7 familles de pièges électrostatiques²⁴ parmi lesquelles :

- les pièges « ronds » qui sont des disques de diamètre 5, 10, 20, 30, 40 60, 80 ou 100 μm . Ils sont destinés à une excitation ponctuelle ou avec un spot en forme d'anneau. Ils constituent la première génération de pièges.
- les pièges « fils » qui sont des surfaces rectangulaires de longueur 150 μm et de largeur 3, 5, 10 ou 20 μm . Comme nous allons le montrer au chapitre 6, cette géométrie de piège « allongée », dont la surface totale demeure limitée, permet de réaliser un piège qui se remplit aisément d'excitons tout en éloignant la zone d'injection laser de la zone d'étude de la luminescence d'excitons.
- les pièges filiformes dont la géométrie est courbée en forme de « S ». Nous verrons qu'ils servent à distinguer (1) la luminescence produite par le fluide excitonique qui épouse cette géométrie courbée de (2) la lumière diffusée dont la propagation s'effectue en ligne droite (cf fig. 4.14, § 4.3.2).

24. Ces familles sont décrites de manière exhaustive dans le tableau de la figure E.1 en annexe.

Le lecteur trouvera davantage d'informations sur les échantillons dans l'annexe E, notamment les schémas des différentes géométries de pièges, l'implantation des contacts ainsi que des clichés réalisés en microscopies optique et électronique.

2.6 Techniques expérimentales

2.6.1 Microphotoluminescence

Le schéma de l'expérience de microphotoluminescence est donné sur la figure 2.15. L'excitation laser peut être issue (1) d'une chaîne laser Titane-Saphir avec un taux de répétition de 82 MHz, doublé en fréquence, (2) d'un laser continu à 266 nm (modèle Crylas FQCW 266, puissance nominale 50 mW) ou bien (3) d'un laser continu à 355 nm (modèle Coherent OBIS, puissance nominale 20 mW). Un éclairage de Köhler est également utilisé pour les réglages en lumière blanche et la visualisation de l'échantillon, le faisceau lumineux étant injecté via une lame semi-réfléchissante (BS2).

La puissance de l'excitation est contrôlée par des densités optiques (OD) associées à une lame $\lambda/2$ précédant un cube polariseur (Polarizer). Après être réfléchi par un miroir dichroïque²⁵ (BS1, fig. 2.15) le faisceau est envoyé dans l'objectif d'un microscope d'ouverture numérique $NA=0,4$ et adapté à la gamme spectrale 190 nm jusqu'à 450 nm. Un système de mise en forme du faisceau (LE1, LE2 « beam Expander », fig. 2.15) permet d'accroître la surface d'ouverture du faisceau envoyé dans le microscope et parvenir ainsi à focaliser le faisceau d'excitation sur un spot de $\sim 1 \mu\text{m}$ de diamètre sur l'échantillon.

L'échantillon est placé sous vide secondaire ($\sim 10^{-5}$ mbar) dans un cryostat à doigt froid (Microstat-HiRes, Oxford Instruments) qui permet d'asservir la température entre 4 K et 300 K à l'aide d'un flux d'hélium liquide et d'une résistance de chauffage dans le doigt froid. Pour l'étude sous polarisation électrique, ce cryostat a dû être adapté. Ce travail de conception mécanique, câblage électrique, tests et validation des performances thermiques est résumé dans l'annexe I. La luminescence est collectée par le même objectif et envoyée à la détection *via* les miroirs MP1 et MP2.

Une première lentille de projection (LP1) permet de visualiser directement une image de l'échantillon sur une caméra à l'aide d'un miroir escamotable (MP3). Une seconde lentille de projection, dont les déplacements sont motorisés axialement et transversalement, permet d'imager l'échantillon sur la fente d'entrée du spectromètre (Horiba Jobin Yvon iHR550) doté d'un choix de réseaux (150, 1200 traits/mm ou d'un miroir). Le signal est ensuite envoyé sur une caméra CCD refroidie par un élément Peltier

25. Lorsque nous utilisons la source laser à 355 nm, le miroir posséderait des oscillations parasites à l'énergie de la PL, cet élément est donc remplacé par une lame séparatrice.



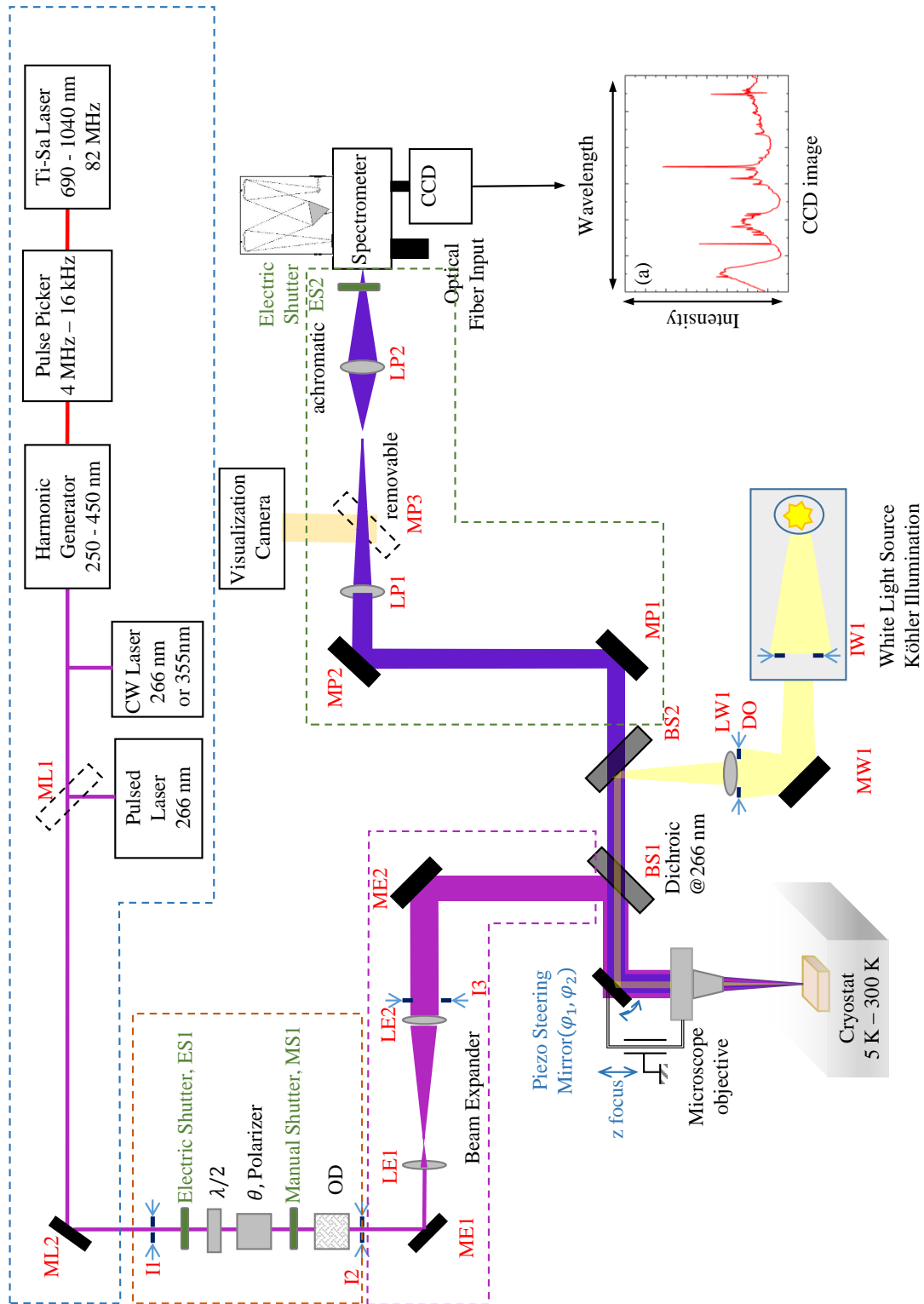


FIGURE 2.15 – Schéma du montage de microphotoluminescence.



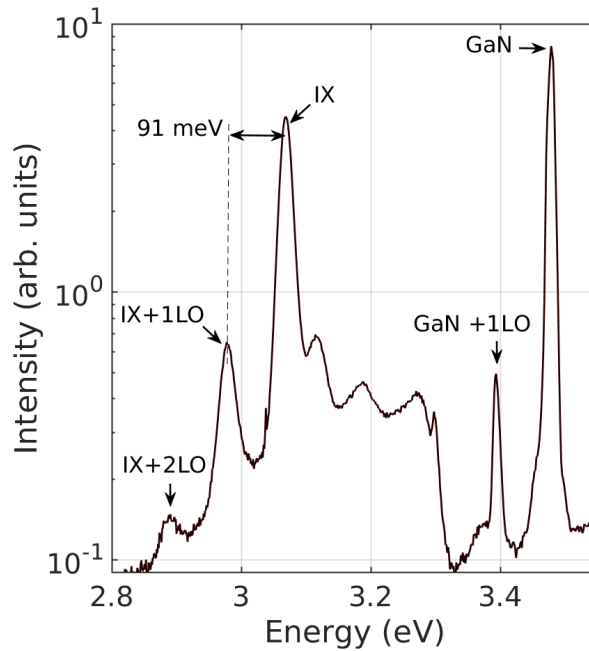


FIGURE 2.16 – Allure typique d’un spectre expérimental. On observe non seulement la raie excitonique (IX) ainsi que deux répliques phonons (IX+1LO et IX+2LO) mais aussi l’émission par le substrat (GaN) et une de ses répliques phonons (GaN+1LO).

à -70 °C (Synapse, Horiba Jobin Yvon, 2048×512 pixels). Chaque pixel correspond à une distance de $0,405\ \mu\text{m}$ sur l’échantillon. Cette valeur est inférieure à la plus petite taille de spot que notre objectif peut réaliser ($800\ \text{nm}$).

L’ensemble du montage est piloté à l’aide d’une interface LabVIEW « maison » qui permet la gestion automatique des acquisitions tout en variant certains paramètres de mesures (puissance, position de la lentille imageuse LP2, par exemple).

En conclusion, ce dispositif expérimental permet d’imager spatialement la luminescence avec une résolution spectrale. Ce type d’image, (ou *images PL*), possède un axe représentant les positions spatiales et un axe les énergies de la luminescence, la valeur de chaque pixel étant l’intensité de luminescence collectée durant la fenêtre d’intégration temporelle. Selon la puissance du laser, les durées d’acquisition varient de quelques secondes à plusieurs dizaines de minutes (par exemple, 12 répétitions de 180 secondes). L’allure typique d’un spectre collecté sous le spot laser est donnée sur la figure 2.16. On y identifie notamment la raie excitonique, ses répliques phonons ainsi que la luminescence du substrat GaN.

2.6.2 Macrophotoluminescence sous champ magnétique

Pour simultanément appliquer un champ magnétique intense (jusqu’à $10\ \text{T}$) et abaisser la température de l’échantillon jusqu’à environ $2\ \text{K}$, nous utilisons un cryostat

magnéto-optique, installé sur une autre table optique, dont le schéma est donné sur la figure 2.17. L'échantillon est placé dans la chambre d'un insert à température variable (VTI) dont la température est régulée de 2 K à l'ambiante. Le champ magnétique est obtenu par la circulation d'un courant électrique intense (jusqu'à 100 A) dans des bobines supraconductrices maintenues à 4 K. Une fois mis à froid, le dispositif requiert un contrôle régulier des niveaux de fluides cryogéniques (azote, hélium) ce qui oblige à réaliser les mesures dans une plage de temps limitée. Notons que les éléments d'optique doivent être situés à l'extérieur du cryostat, ce qui limite la qualité de l'imagerie et donc la résolution spatiale des mesures.

Le montage réalisé est schématisé sur la figure 2.18. On utilise la même source laser (émission continue à 355 nm Coherent OBIS, puissance nominale 20 mW) que pour les mesures de microphotoluminescence décrites au paragraphe précédent. Le faisceau est d'abord mis en forme par un élargisseur (Expander) de manière à augmenter l'ouverture numérique incidente sur la lentille objectif (LO) qui focalise l'excitation à la surface de l'échantillon. Le diamètre du spot laser ainsi focalisé peut être réduit jusqu'à environ $20 \mu\text{m}$ ²⁶.

La luminescence est collectée par la même lentille objectif (LO). Un filtre sélectif (Filter) placé derrière une lame semi-réfléchissante (BS) élimine la réflexion du faisceau laser. L'image de l'échantillon est faite sur la fente d'entrée du spectromètre (Horiba Jobin Yvon iHR550). Le signal est alors envoyé sur la caméra CCD : chaque pixel correspond à $27 \mu\text{m}$ sur l'échantillon, la **résolution spatiale** de ce montage est donc **bien moindre** que celle du montage de microphotoluminescence (μPL) décrit au paragraphe précédent. C'est pourquoi nous qualifierons de *macrophotoluminescence* (macroPL) sous champ magnétique ce dispositif expérimental car l'excitation laser n'est jamais aussi bien focalisée que dans le montage de μPL .

2.6.3 Mesures électriques et contrôle du transport

Nous sommes capables de contrôler le transport des excitons par une tension électrique, cela fait l'objet du chapitre 6. Ce contrôle électrique est permis par les contacts métalliques qui sont déposés sur le semi-conducteur et forment des jonctions de type « Schottky » qu'il nous a fallu, dans un premier temps, caractériser. Ainsi, les mesures électriques réalisées au cours de cette thèse sont de deux types :

- d'une part, les caractérisations de ces jonctions Schottky à température ambiante sans excitation optique (cf § 6.1), qui incluent les mesures courant-tension (I-V) et capacité-tension (C-V) et,

²⁶. La lentille LO utilisée pour la focalisation de l'image est plan-convexe. Entre le plan de cette lentille et le plan de l'échantillon, se situent plusieurs dioptries plans qui affectent la qualité de la focalisation.

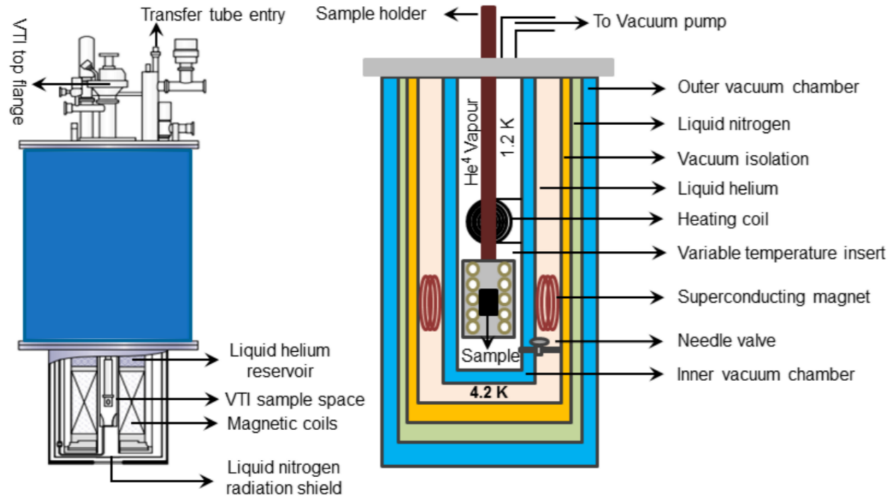


FIGURE 2.17 – Schéma du cryostat magnéto-optique utilisé pour caractériser l'influence du champ magnétique sur la luminescence. La canne porte-échantillon (Sample holder) est placée dans un insert à température variable (VTI) contenant de l'hélium (gazeux ou liquide selon les conditions cryogéniques). Les bobines supraconductrices baignent dans l'hélium liquide à 4 K. Une garde à l'azote limite les pertes thermiques.

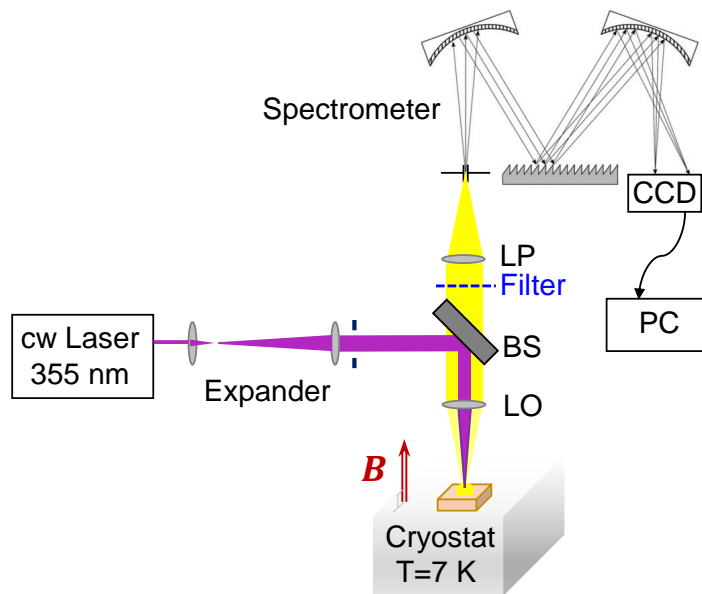


FIGURE 2.18 – Schéma du montage utilisé pour l'étude sous champ magnétique.

- d'autre part, les mesures de microphotoluminescence à basse température sous polarisation électrique (cf § 6.2). Pour chaque valeur de polarisation (V_{biais}), on relève les valeurs de courant avec éclairage (I_{light}) et sans éclairage (I_{dark}).

Les équipements utilisés sont listés ci-dessous. Les protocoles de ces mesures sont détaillés dans les paragraphes 6.1.1 et 6.1.1.2 du chapitre 6.

Station de mesure sous pointe Dotée de quatre micropositionneurs (Cascade Microtech, modèle DPP 105) équipés de pointes (diamètre 12 μm), la station de mesure que nous avons utilisée permet de réaliser des mesures électriques à 4 pointes afin de s'affranchir des résistances des connectiques (fils de mesure et contacts). La station est équipée d'une loupe binoculaire et d'une lampe ce qui permet d'ajuster manuellement le positionnement des pointes.

HP 4294A RLC meter et Agilent E4980A Ces deux appareils, impédancemètres de haute précision, ont été utilisés pour les mesures C-V : ils donnent accès à l'évolution de la capacité des jonctions métal/semi-conducteur en fonction de la tension de polarisation appliquée.

Keithley 2602B, Source Measure Unit Le sourcemètre (SMU) est un type de multimètre qui combine plusieurs fonctions de mesure et permet notamment d'imposer la circulation d'un courant électrique à travers un dipôle électrique à tester tout en mesurant simultanément la tension à ses bornes et l'intensité du courant qui le parcourt effectivement. Cet appareil est utilisé pour les mesures I-V à l'ambiante mais aussi pour l'étude du transport à basse température. Le modèle utilisé comporte deux voies, ce qui a permis d'imposer trois niveaux de potentiels électriques distincts afin de caractériser le fonctionnement de certaines structures conçues sur le modèle d'un transistor (Base, Emetteur, Collecteur). L'appareil est entièrement piloté par ordinateur. Les acquisitions automatisées sont donc insérées dans la chaîne de mesure de microphotoluminescence (schéma fig. 2.15) ce qui permet de réaliser une série d'*images PL* pour différentes valeurs de polarisation appliquée (cf § 6.2), en mesurant « en direct » le photocourant.



Chapitre 3

Modélisation des IXs dans les puits quantiques larges

Dans ce chapitre nous présentons certains modèles et cas limites idéalisés : ces modèles ont pour but de parvenir à *une meilleure compréhension* de la physique des excitons indirects dans les puits quantiques larges tout en fournissant, dans la mesure du possible, des *outils prédictifs* permettant d'optimiser la conception des structures mais également d'aider à interpréter les résultats expérimentaux (par exemple en contribuant à affiner l'estimation de la densité d'excitons). Ce chapitre est donc volontairement inséré entre la description qualitative faite au chapitre précédent et les résultats expérimentaux qui sont présentés dans la suite. Les notions abordées couvrent notamment

- Le diagramme de bandes du puits quantique, en fonction de la présence d'électrodes métalliques,
- La transition E_1H_1 du puits quantique, son énergie et son temps de vie radiatif, en tenant compte d'un point de vue électrostatique de la densité de particules et de l'écrantage du champ électrique vertical associé,
- L'exciton, son énergie de liaison et son rayon de Bohr, en tenant compte de la densité de particules et du même écrantage du champ électrique vertical,
- Le fluide excitonique, dont l'énergie est modifiée par les corrélations exciton-exciton traitées en champ moyen et au-delà du champ moyen,
- Le plasma neutre d'électrons et de trous et son spectre de PL,
- La thermodynamique décrivant la coexistence des deux phases, le fluide d'excitons et le plasma d'électrons et de trous, jusqu'à la transition de Mott lorsque l'écrantage de l'interaction coulombienne, dans le plan du puits, annule l'énergie de liaison de l'exciton,
- Le transport du fluide d'excitons au sein de pièges bidimensionnels.



Sommaire

2.1	Cristal de GaN massif, excitons et structure fine	32
2.2	Puits quantique large et polarisation électrique	40
2.3	Effet du désordre et localisation	45
2.4	Magnéto-exciton	51
2.5	Échantillons	54
2.6	Techniques expérimentales	56
2.6.1	Microphotoluminescence	56
2.6.2	Macrophotoluminescence sous champ magnétique	58
2.6.3	Mesures électriques et contrôle du transport	59

3.1 Environnement électrostatique du puits quantique dans la barrière métal/semi-conducteur

Avant de focaliser notre réflexion sur la nature, le comportement et les interactions des charges injectées dans le puits quantique, nous envisageons une problématique plus globale : comment la structure semi-conductrice accueillant les excitons indirects, (c'est-à-dire l'hétérostructure à puits quantique), s'intègre-t-elle dans l'environnement électrostatique de l'échantillon semi-conducteur ? La réponse à cette question est donnée par le profil des bandes $E_C(z)$ (conduction) et $E_V(z)$ (valence) qui découle de la résolution de l'équation de Poisson, avec les densités de charges et les conditions limites adéquates :

$$-\frac{d^2V}{dz^2} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\rho_{HJ} + \rho_{Pol} + \rho_{\Sigma} + e(-n + p + N_d^i - N_a^i) \right) \quad (3.1)$$

où, d'une part, n , p , N_d^i et N_a^i sont les densités volumiques, respectivement, d'électrons libres, de trous libres, de donneurs ionisés et d'accepteurs ionisés et, d'autre part, les densités ρ_{HJ} , ρ_{Pol} et ρ_{Σ} sont les densités de charges dues, respectivement, à l'hétérojonction, à la polarisation et à l'interface semi-conducteur/vide ou semi-conducteur/métal selon le cas. La linéarité de l'équation de Poisson fait que l'on peut envisager ces effets séparément. C'est ce que nous faisons dans la suite.



3.1.1 Hétérojonctions, polarisations spontanée et piézo

On envisage dans ce paragraphe, l'effet des hétérojonctions et des charges de polarisation sur l'environnement électrostatique du puits quantique indépendamment des autres effets. Ces derniers seront appréhendés dans la suite.

La maille cristalline de GaN n'est pas invariante par l'inversion $c \rightarrow -c$. La conséquence la plus directe de ce résultat est l'existence d'un champ de polarisation spontanée, P_{spont} , orienté parallèlement à la direction de croissance (voir figure 3.1).

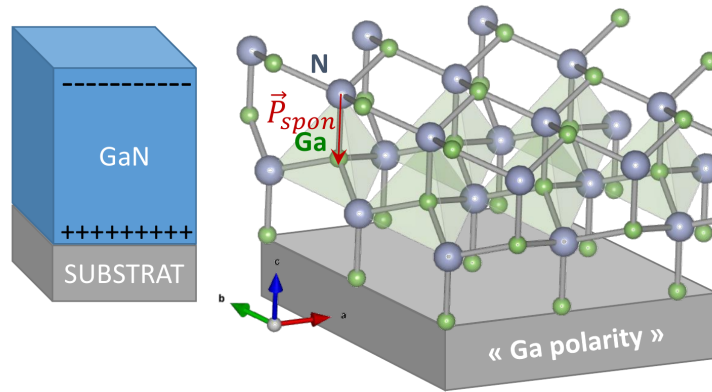


FIGURE 3.1 – Nature polaire du GaN dans la direction c : pour nos échantillons, la croissance du cristal est effectuée dans la direction polaire de la maille cristalline. Le moment dipolaire spontané est orienté de la surface supérieure de l'échantillon vers la face inférieure (substrat), on parle de « polarité Gallium ».

A cette polarisation spontanée s'ajoute éventuellement une polarisation piézo, $P_{piézo}$ résultant d'un état de contrainte non relaxé suite à l'épitaxie. Dans le cas de l'échantillon D704, les valeurs des polarisations [119, 91] sont

- $P_{spont,B} = -0,0334 \text{ C.m}^{-2}$, $P_{piézo,B} = -0,0037 \text{ C.m}^{-2}$ pour la barrière,
- $P_{spont,W} = P_W = -0,0290 \text{ C.m}^{-2}$ pour le puits supposé non contraint.

La différence de polarisation totale, $P_{tot} = P_{spont} + P_{piézo}$, entre la barrière, P_B , et le puits, P_W , peut être modélisée par une densité surfacique de charges liées, $\sigma = P_B - P_W$ localisée au niveau de l'interface. La seconde hétérojonction puits/barrière fait également apparaître la même densité surfacique de signe opposé. La figure 3.2 représente les charges surfaciques résultant des différentes interfaces de l'échantillon D704 en fonction de la côte z , depuis la surface extérieure, en $z = 0$, vers l'intérieur de l'échantillon.

L'existence des champs de polarisation P_B et P_W est à l'origine d'un champ électrique interne à la zone active, F_{IN} . Afin d'estimer sa valeur, faisons l'hypothèse, pour le potentiel électrique $V(z)$, de conditions limites périodiques entre

- la côte $z = 0$

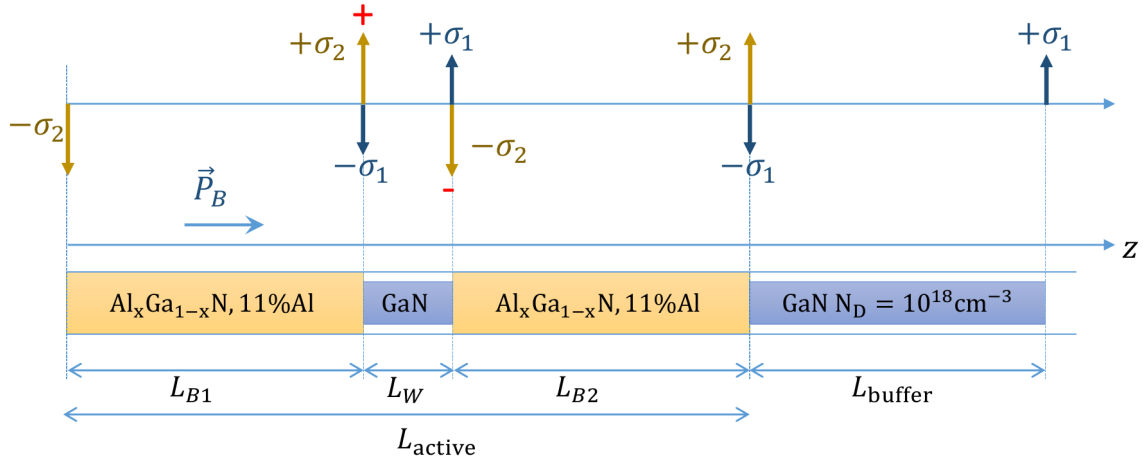


FIGURE 3.2 – Représentation schématique des différentes interfaces de l'hétérostructure de l'échantillon D704. La direction z est orientée de la surface supérieure de l'échantillon (à gauche de la figure) vers le substrat (à droite de la figure). Les charges de polarisation σ_1 et σ_2 représentent les densités surfaciques de charges, respectivement, du puits et de la barrière. La différence de signe entre les charges nettes sur les faces en regard du puits ((+) et (-) sur la figure) est à l'origine du champ électrostatique interne, $F_{IN} = F_W$, ayant pour conséquence de séparer les charges électriques de signes opposées dans le puits quantique.

- et la côte $z = L_{\text{active}} = L_{B1} + L_{B2} + L_W$,

soit

$$V|_{z=0} = V|_{z=L_{\text{active}}}. \quad (3.2)$$

Dans le matériau barrière de longueur $L_B = L_{B1} + L_{B2}$ (cf fig. 3.2) ou dans le matériau puits de longueur L_W , le vecteur déplacement électrique, D_B (D_W), est

$$D_{B,W} = \varepsilon_{B,W} F_{B,W} + P_{B,W} \quad (3.3)$$

où ε_B (ε_W) est la permittivité de la barrière (B) ou du puits (W) et F_B (F_W) le champ électrique correspondant. L'absence de charges libres dans la structure entraîne l'uniformité ($\text{div} \mathbf{D} = 0$) du champ de déplacement électrique, soit

$$D_W = D_B. \quad (3.4)$$

La nullité de la circulation du champ électrique sur la longueur L_{active} (équation 3.2),

$$F_W L_W + F_B L_B = 0 \quad (3.5)$$



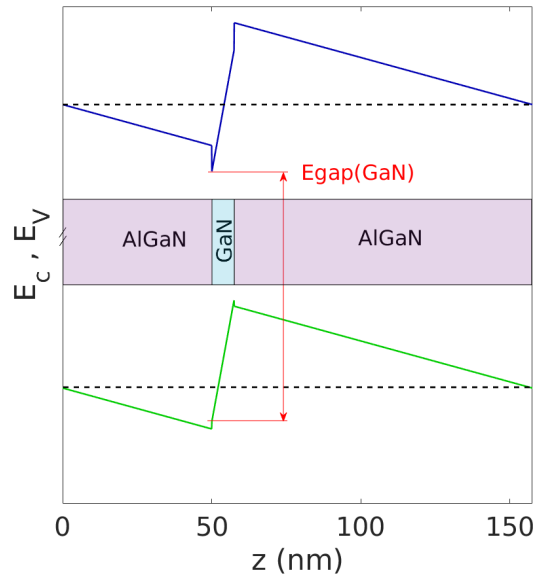


FIGURE 3.3 – Diagramme des bandes de valence, E_V , en vert, et de conduction E_C , en bleu, dans l’approximation des conditions limites périodiques, et en l’absence de charges injectées, pour l’échantillon D704. Les traits pointillés repèrent la continuité du potentiel électrique entre les interfaces de la couche active $z = 0$ et $z = L_{\text{active}}$. L’énergie de gap du matériau puits est matérialisée par la flèche rouge.

associée à l’équation 3.4 fournit l’expression du **champ électrique interne**

$$F_{\text{IN}} = F_W = \frac{L_B}{\varepsilon_W L_W + \varepsilon_B L_B} (P_B - P_W). \quad (3.6)$$

Enfin, il faut tenir compte des discontinuités entre les bandes de valence et de conduction entre le matériau puits et le matériau barrière : l’offset de bande de conduction vaut 80%, le gap de GaN à 4 K vaut 3,51 eV, celui de $\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$ 3,71 eV, voir [91]. On obtient alors le diagramme de bandes qui est tracé sur la figure 3.3. Le champ électrique interne est de l’ordre de $\sim 980 \text{ kV.cm}^{-1}$.

3.1.2 Interface semi-conducteur/vide

Le diagramme de bandes de la figure 3.3 ne tient pas compte, ni des charges mobiles, ni des effets de surface. Bien que les matériaux de la couche active (puits et barrières) soient non intentionnellement dopés, il existe une densité résiduelle de dopants donneurs dont la concentration est typiquement $N_{nid} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ [120]. L’existence d’une non uniformité du potentiel électrostatique, $V(z)$, entraîne l’apparition d’une zone de désertion de ces charges mobiles (ZCE) laissant, dans l’hypothèse de Schockley, une densité de charge volumique $+eN_{nid}$ tendant à rétablir l’uniformité du potentiel électrique. Dans la ZCE, on montre que le potentiel créé par cette densité uniforme

varie quadratiquement avec la côte z , la longueur de désertion ayant pour expression

$$L_{ZCE} = \sqrt{\frac{2\varepsilon V}{eN_{nid}}} \quad (3.7)$$

Pour $V \sim 1V$, et $\varepsilon = \varepsilon_{GaN}$, on a $L_{ZCE} \sim 300$ nm. Ainsi, comme $L_{ZCE} > L_{active}$, on peut conclure que la zone active est suffisamment peu dopée pour que le diagramme de bandes établi sur la figure 3.3 ne soit pas notablement affecté. Par ailleurs, sous la couche active est située la couche « buffer », fortement dopée, $N_{D,buffer} \sim 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, la zone de désertion correspondante, $L_{ZCE} \sim 5$ nm, étant très faible, cette couche buffer constituera avec une bonne approximation une région isopotentielle. Notons également qu'au niveau de l'interface $z = L_{active}$ (voir figure 3.2), il apparaît un gaz bidimensionnel d'électrons (2DEG) résultant de l'hétérojonction AlGaN/GaN.

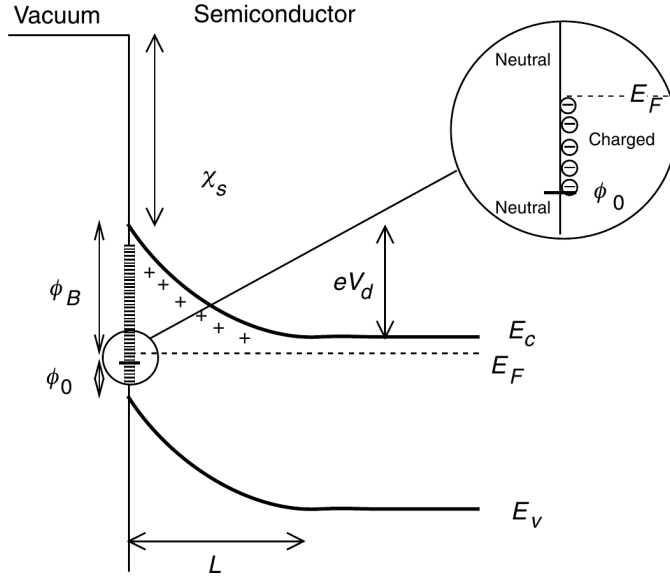


FIGURE 3.4 – Figure d'après [92] : schématisation de la courbure des bandes de valence E_V et de conduction E_C à l'interface semi-conducteur/vide résultant de l'existence d'états de surface. L'occupation des états de surface entre le niveau de Fermi, E_F , et Φ_0 (niveau de neutralité des états de surface) crée une charge surfacique σ négative qui est compensée par la zone de charge d'espace (ZCE) de longueur L . χ_S est l'affinité du semi-conducteur, V_d est la chute de potentiel électrostatique dans la ZCE, Φ_B est la hauteur de barrière Schottky.

Considérons à présent l'effet de l'interface semi-conducteur/vide, repérée par la côte $z = 0$. L'existence de cette interface rompt l'invariance par translation du cristal et est à l'origine de « liaisons pendantes » que l'on peut modéliser par une densité surfacique uniforme d'états électroniques, N_{SS} , localisés en $z = 0$. Ces états de surface ont pour conséquence l'ancrage du niveau de Fermi (« Fermi-level pinning ») [92, 121, 122] et l'apparition d'une barrière de potentiel $\Phi_B = E_c(0) - E_F$ entre le niveau de la bande

de conduction à la surface et le niveau de Fermi imposé par ces états de surface. Une description plus complète de ces effets peut être trouvée dans la référence [123] p. 36-45 mais aussi dans l'article de Bardeen [124].

L'effet des états de surfaces et de la zone de charge d'espace est illustré sur la figure 3.4. La position exacte du niveau de Fermi à la surface dépend de nombreux paramètres tels que les conditions de croissance par exemple, on considère généralement que celui-ci est situé ~ 1 eV en dessous du minimum de la bande de conduction à la surface, noté $E_C(0)$ [123].

3.1.3 Interface semi-conducteur/métal

L'effet du dépôt de l'électrode métallique (Ni 5 nm + Au 5 nm) sur la surface supérieure de l'hétérostructure est très bien décrit par le modèle d'une barrière Schottky [123]. Le potentiel de surface est décalé de l'ordre de ~ 1 eV [125, 126]. Cela entraîne une réduction du champ électrique interne, F_W (voir figure 3.5a). La figure 3.5b permet de visualiser l'ensemble du diagramme de bande qui prend en compte ces deux effets supplémentaires :

- l'interface métal/semi-conducteur, en $z = 0$, qui contribue à relever le niveau de la bande de conduction environ 1 eV au dessus du niveau de Fermi,
- le gaz bidimensionnel d'électrons (2DEG) qui se forme dans la couche tampon fortement dopée.

L'énergie de l'exciton est alors augmentée par rapport à la configuration sans électrode en surface. La présence des électrodes crée donc un potentiel répulsif, confinant les excitons dans un piège dont la hauteur de barrière énergétique est environ $E_t \approx 55$ meV, d'après les résultats de modélisation (fig. 3.5a).

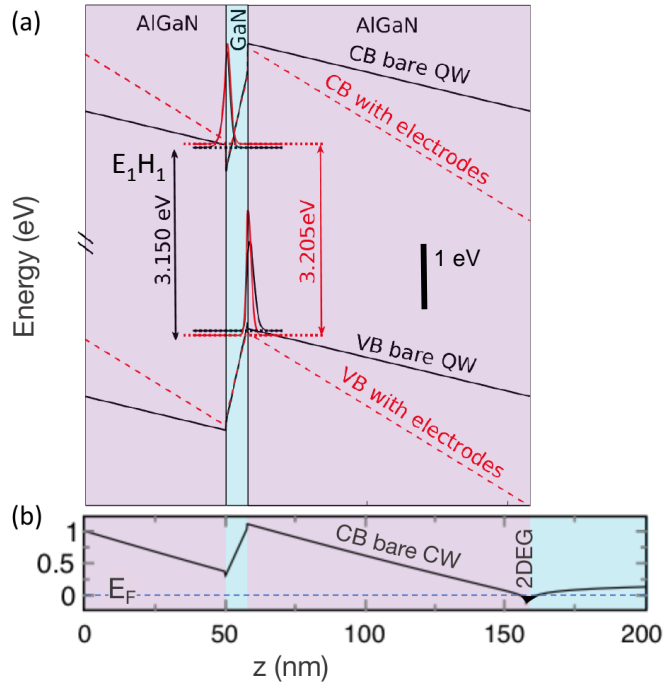


FIGURE 3.5 – Figure (a) : diagramme de bandes calculé pour le puits quantique de l'échantillon D704. Les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde associées sont également représentés en présence (tirets rouges) et en l'absence (traits noirs) de l'électrode métallique. Seule la zone active de l'échantillon est prise en compte. Figure (b) : diagramme de la bande de conduction et niveau de Fermi dans la structure complète, y inclus la couche tampon GaN fortement dopée dans laquelle se forme un gaz bidimensionnel d'électrons.

3.2 Transition interbande : densité de charges et champ électrique interne

Cette section présente les outils de modélisation qui sont utilisés pour estimer l'énergie de la transition interbande entre, d'une part, la sous-bande E_1 de la bande de conduction et, d'autre part, la sous-bande H_1 de la bande de valence. Cette transition est notée E_1H_1 , tel qu'indiqué sur la figure 3.5. L'énergie de cette transition s'obtient par la résolution des équations de Schrödinger pour les fonctions enveloppes $\Phi_e(z)$ et $\Phi_h(z)$ dans les potentiels $V_e(z)$ et $V_h(z)$ respectivement. En l'absence de porteurs injectés, ces potentiels résultent des paramètres de l'hétérostructure (discontinuités des bandes de conduction et de valence) mais également du champ électrique interne consécutif à la différence de polarisation entre le puits et ses barrières. De plus, comme nous l'avons vu au paragraphe 3.1, il est nécessaire de tenir compte de la courbure de bande inhérente à l'interface métal/semi-conducteur, aux états de surface de AlGaIn ou encore à la tension de polarisation appliquée. Par ailleurs, à mesure que la densité de charges injectées augmente, comme conséquence de l'équation de Poisson, les potentiels électrostatiques se redessinent et les fonctions d'onde doivent être recalculées. Ainsi,

pour tenir compte de l'effet d'écrantage du champ interne induit par l'augmentation de la densité de charges, il est devenu nécessaire de résoudre les équations de Poisson et de Schrödinger de manière couplée. Cette résolution est effectuée à l'aide d'une technique numérique qui est présentée ci-après. Outre l'évolution croissante de l'énergie de la transition E_1H_1 , nous serons en mesure d'estimer l'augmentation de l'intensité radiative qui résulte de l'augmentation de l'intégrale de recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou.

3.2.1 Résolution de l'équation de Schrödinger 1D

Pour résoudre l'équation de Schrödinger unidimensionnelle (1D) relative la fonction enveloppe $\Phi(z)$, dans un potentiel arbitraire $V(z)$ et relatif à un champ de masse effective $m(z)$,

$$-\frac{\hbar^2}{2} \frac{d}{dz} \left(\frac{1}{m(z)} \frac{d}{dz} \Phi(z) \right) + V(z)\Phi(z) = E\Phi(z) \quad (3.8)$$

nous utilisons un schéma de différence finie d'ordre deux basé sur un maillage uniforme de pas d'espace Δz . On se ramène ainsi à résoudre l'équation aux valeurs propres

$$(H_{ij} + V_i\delta_{ij}) \Phi_j = E_j\Phi_j \quad (3.9)$$

dans lequel $H = (H_{ij})$ est la matrice $N \times N$ tridiagonale donnée par :

$$H = \begin{pmatrix} D_1 & U_1 & & \dots & 0 \\ L_2 & D_2 & U_2 & \dots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ & & & & U_{N-1} \\ 0 & \dots & 0 & L_N & D_N \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

où les coefficients des diagonales supérieure (U_i), inférieure (L_i) et principale (D_i) sont, pour $1 < i < N$,

$$\begin{aligned} U_i &= \frac{\hbar^2}{4\Delta z^2} \left(\frac{1}{m_{i+1}} + \frac{1}{m_i} \right) \\ L_i &= \frac{\hbar^2}{4\Delta z^2} \left(\frac{1}{m_i} + \frac{1}{m_{i-1}} \right) \\ D_i &= -\frac{\hbar^2}{4\Delta z^2} \left(\frac{1}{m_{i+1}} + \frac{2}{m_i} + \frac{1}{m_{i-1}} \right). \end{aligned}$$



En prenant un pas d'espace de valeur typique $\Delta z \sim 0,1$ nm, on vérifie que les valeurs propres et vecteurs propres sont déterminés avec une très bonne précision numérique ($\sim 10^{-6}$ pour la précision relative des niveaux d'énergie).

3.2.2 Résolution de l'équation de Poisson 1D

Les porteurs photocréés redessinent le diagramme de bandes en leur présence. Les nouvelles expressions des potentiels électrostatiques $V_e(z)$ et $V_h(z)$ sont déterminées en résolvant l'équation de Poisson

$$\frac{d}{dz} \left(\varepsilon(z) \frac{d}{dz} V(z) \right) = -\rho(z) \quad (3.11)$$

où $\varepsilon(z)$ est la permittivité diélectrique de la barrière ou du puits – selon la valeur de l'abscisse z – et $\rho(z)$ est la densité volumique de charge. Pour établir les valeurs des potentiels électrostatiques aux nœuds $V_i = V(z_i)$ d'un maillage d'espace discret, nous effectuons une double intégration numérique avec deux conditions limites sur le bord « gauche », en $z = 0$ – nullité du potentiel et du champ électrique :

$$V(z) = - \int_0^z d\xi \left[\frac{1}{\varepsilon(\xi)} \int_0^\xi d\xi' \rho(\xi') \right] \quad (3.12)$$

3.2.3 Résolution Poisson-Schrödinger couplée

La résolution des équations couplées Poisson et Schrödinger se fait de la manière suivante. D'abord à partir 1) des paramètres de l'hétérostructure « nue » (*ie* sans porteurs injectés), 2) de la courbure de potentiel due aux effets de surface et 3) du potentiel électrostatique éventuellement appliqué, on construit les potentiels $V_0^e(z)$, pour les électrons et, $V_0^h(z)$, pour les trous. Ensuite, on détermine les énergies et fonctions propres $\Phi_e(\Phi_h)$ pour les bandes de conduction (de valence). Enfin, pour une valeur de densité de paires, n , on actualise les potentiels électrostatiques en résolvant l'équation de Poisson pour la densité, $\rho_n(z)$, de charges supplémentaires

$$\rho_n(z) = ne \left[-|\Phi_e|^2(z) + |\Phi_h|^2(z) \right]. \quad (3.13)$$

Cette procédure de résolution couplée Poisson-Schrödinger est effectuée de manière itérative avec une actualisation « douce » du potentiel électrique additionnel, V_j^{add} , à chaque itération

$$V_{j+1}^{add} = (1 - \alpha)V_j^{add} + \alpha V \quad (3.14)$$



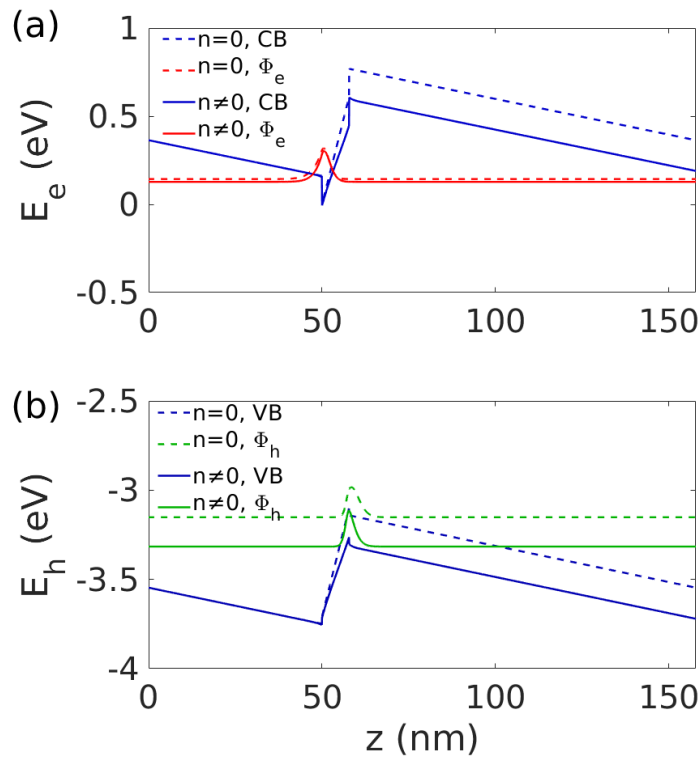


FIGURE 3.6 – Bande de conduction (a) et de valence (b) calculées pour l'échantillon expérimental D704 en fonction de l'abscisse z à partir de la surface. Ces résultats découlent de notre simulation Poisson-Schrödinger basée sur les paramètres AlGaN [91]. (a) en bleu est représentée la bande de conduction et, en rouge, la fonction d'onde de l'électron dans l'état fondamental. (b) la bande de valence est tracée en bleu, la fonction d'onde de trou apparaît en vert. Pour les deux figures, les lignes en tirets correspondent à la structure « nue » (densité $n = 0$), les lignes en trait plein correspondent à la situation où la densité de paires injectées vaut $n = 1,14 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

où α est un coefficient numérique ($0 < \alpha < 1$) convenablement choisi pour améliorer la vitesse de convergence tout en conservant la stabilité numérique.

La figure 3.6 représente les résultats de simulation pour les bandes de conduction (3.6a) et de valence (3.6b). Les structures sans porteurs sont représentées en tirets, les structures avec porteurs apparaissent en traits continus. On observe que les bandes sont aplaties sous l'effet des charges réparties sur deux plans distincts, à la manière d'un condensateur plan. Sur la même figure, on constate également l'évolution des fonctions d'onde d'électrons et de trous : l'écrantage du champ interne conduit à *amoindrir la séparation spatiale des charges* et ainsi à favoriser leurs recombinaisons radiatives. La question de savoir comment ces prédictions numériques peuvent être quantifiées sur le spectre de photoluminescence est abordée dans le paragraphe suivant.



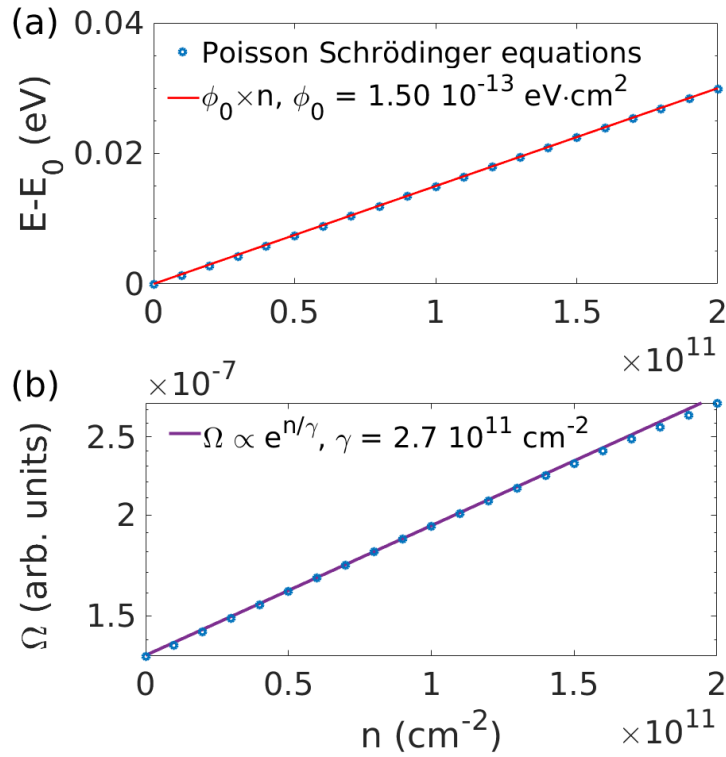


FIGURE 3.7 – Effet des porteurs photocr ees sur le d placement  nerg tique de la transition E_1H_1 (a) et sur l'int grale de recouvrement (b). Les symboles montrent les calculs selon la m thode Poisson-Schr dinger coupl e. Les lignes en trait plein sont les r sultats des r gressions, lin aire (a) et exponentielle (b), avec la densit  de charge n , de l' volution, respectivement, du d calage  nerg tique et de l'int grale de recouvrement. Les param tres extraits, Φ_0 et γ^{th} sont donn s dans le texte.

3.2.4 Effet de la densit  sur la photoluminescence du puits quantique

L'effet de l'augmentation de la densit  de porteurs photocr ees est double :

- d'une part, la transition E_1H_1 subit un d calage vers le bleu, r sultant de l'effet d' crantage du champ interne que nous avons d j   voqu  dans la section 3.5 ;
- d'autre part, l'int grale de recouvrement,

$$\Omega = \left| \int dz \Phi_e(z) \Phi_h(z) \right|^2 \quad (3.15)$$

est  galement augment e. Cela a pour effet de diminuer la dur e de vie radiative et donc d'augmenter l'intensit  de photoluminescence.

L'effet de la densit  de porteurs est donn  sur la figure 3.7. Comme on pouvait s'y attendre, l' nergie de la transition augmente quasi-lin airement avec la densit  (fig. 3.7a), du moins dans la limite des basses densit s. Dans ce cas, la pente obtenue par r gression lin aire des r sultats du calcul num rique, Φ_0 (cf fig. 3.7), est l g rement



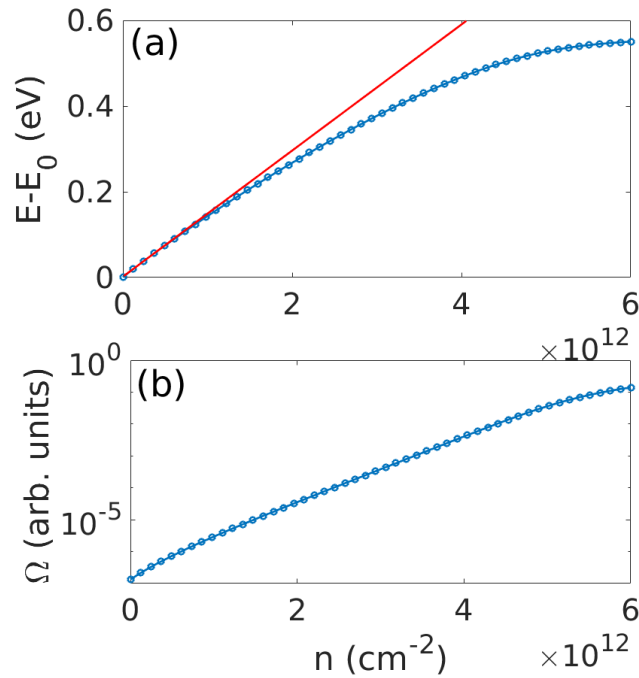


FIGURE 3.8 – Effet des porteurs photocr es sur le d placement  nerg tique de la transition E_1H_1 (a) et sur l’int grale de recouvrement (b). Le trait rouge est un *fit* lin aire aux faibles valeurs qui fait ressortir le fait que, dans le r gime des fortes injections, l’ volution du d placement  nerg tique $E-E_0$ avec la densit  est sous-lin aire.

moins que celle que l’on obtient par le mod le de condensateur plan

$$\phi'_0 = \frac{e^2 L_W}{\epsilon_W} \approx 1,59 \times 10^{-13} \text{ eV.cm}^2 \quad (3.16)$$

avec ϵ_W la constante di lectrique du mat riau puits et $L_W \sim 8\text{nm}$ la large du puits. Cette diff rence est due   la localisation des fonctions d’onde  lectrons et trous qui tend   r duire la largeur effective du puits quantique. De plus, pour des densit s croissantes, le champ  lectrique interne devient plus faible. Ainsi, la s paration spatiale des fonctions d’onde devient moins efficace ce qui r duit encore la largeur effective du puits quantique – voir par exemple la figure 3.9 r alis e dans les conditions de forte injection, $n = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Cela explique la variation *sous-lin aire* du d calage  nerg tique avec la densit  (cf fig. 3.8).

L’ volution du recouvrement, Ω , avec la densit  de paires est trac e sur la figure 3.7 (b). On constate une croissance quasi exponentielle de cette quantit  avec la densit  de paires. En cons quence, le taux de recombinaison radiatif, $\tau_{rad}(n)$, suit une d pendance exponentielle avec la densit  n ,

$$\tau_{rad}(n) = \tau_{rad}^0 e^{-n/\gamma} \quad (3.17)$$

avec $\gamma^{\text{th}} \approx 2,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.



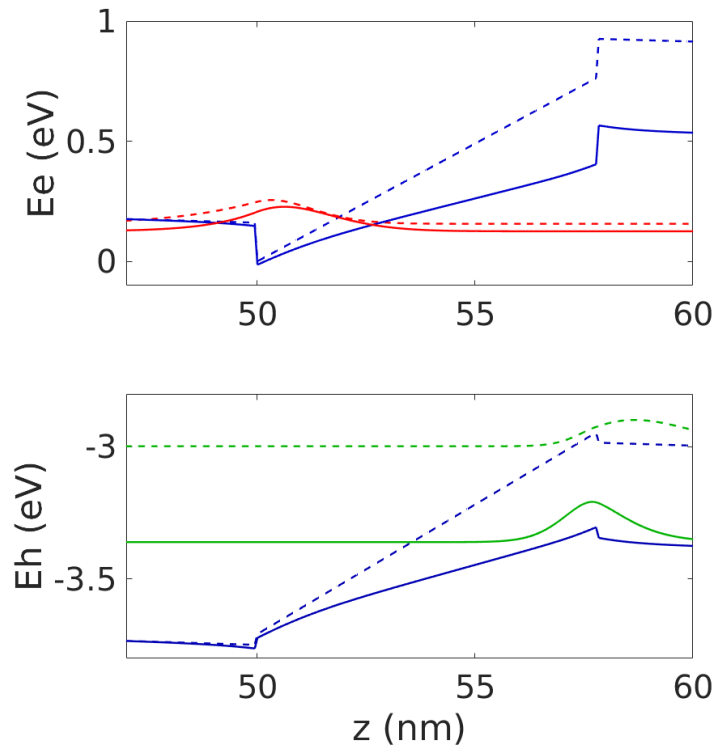


FIGURE 3.9 – Effet de l'injection des porteurs sur les digrammes de bande. Description détaillée voir fig. 3.6. Ici, la densité de porteurs est augmentée à $n = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

3.2.5 Désordre de monocouche

L'effet du désordre d'une monocouche est évalué en calculant l'énergie de la transition E_1H_1 du puits quantique pour deux configurations : d'une part, dans le cas d'un puits de largeur nominale $L_W = 7,8 \text{ nm}$ et, d'autre part, dans le cas d'un puits de largeur $L_W \pm 1 \text{ ML}$ avec $1 \text{ ML} = c/2$, c étant le paramètre de la maille wurtzite du GaN dans la direction z . On obtient une énergie de la transition E_1H_1 , respectivement, diminuée de 23 meV (augmenté de 25 meV) lorsque la largeur du puits augmente (diminue) d'une monocouche. L'accroissement de l'énergie avec la réduction de la largeur de puits est une conséquence immédiate de l'effet Stark quantique confiné (QCSE) : l'ordre de grandeur énergétique de cet effet est de $F_{\text{IN}} \times 1 \text{ ML}$. Pour l'échantillon D704, le champ interne étant de l'ordre de 980 kV.cm^{-1} et $1 \text{ ML} \sim 0,26 \text{ nm}$, on retrouve bien les 25 meV de décalage énergétique. La simulation met également en évidence une augmentation du recouvrement, Ω (voir paragraphe 3.2.4), des fonctions d'onde du trou et de l'électron avec la réduction de la largeur de puits. Le recouvrement Ω est multiplié, respectivement, par $0,45$ ($2,17$) lorsque la largeur du puits augmente (diminue) d'une monocouche.

3.3 Calcul autocohérent variationnel de l'énergie de l'exciton

Nous détaillons la méthode permettant d'estimer l'énergie de liaison de l'exciton dans un puits quantique. La méthode de calcul que nous avons mise en œuvre a été proposée par J. M. BERROIR et G. BASTARD [127], elle est largement décrite dans la thèse de BELLABCHARA [128] qui l'appliquait aux structures CdTe/CdMnTe. Cette méthode utilise conjointement

- une technique de potentiel effectif
- un calcul variationnel autocohérent

ce qui permet d'ajuster la morphologie des fonctions d'essai bidimensionnelles en prenant en compte l'effet mutuel de l'électron sur le trou et réciproquement [119, 129].

3.3.1 Méthode du potentiel effectif

3.3.1.1 Principe

Supposons que l'on cherche à résoudre le problème aux valeurs propres suivant, dans lequel le Hamiltonien bidimensionnel $\hat{H}_{(x,y)}$ n'est pas séparable vis-à-vis des variables spatiales x et y :

$$\hat{H}_{(x,y)}\Phi(x, y) = E\Phi(x, y) \quad (3.18)$$

On décide de restreindre la recherche des solutions stationnaires à la forme générique suivante

$$|\Phi\rangle = |f\rangle \otimes |g\rangle \quad (3.19)$$

soit

$$\Phi(x, y) = f(x)g(y) \quad (3.20)$$

dans laquelle la fonction $y \rightarrow g(y)$ est supposée connue. Sous cette hypothèse simplificatrice, projetant sur $g(y)$ et intégrant sur la dimension y , il vient :

$$\langle g | \hat{H}_{(x,y)} \Phi \rangle = E \langle g | \Phi \rangle \quad (3.21)$$



ou encore,

$$\underbrace{\left[\int dy g^*(y) \hat{H}_{(x,y)} g(y) \right]}_{\hat{H}_x^{eff}} f(x) = E \langle g|g \rangle f(x) \quad (3.22)$$

L'opérateur \hat{H}_x^{eff} ainsi défini n'agit que sur la variable x et permet donc un découplage du problème vis-à-vis des dimensions x et y . En effet, en supposant la fonction g normée, il vient :

$$\forall x \quad \hat{H}_x^{eff} f(x) = E f(x) \quad (3.23)$$

On se ramène donc à un système unidimensionnel dont l'inconnue $f(x)$ est une fonction propre du hamiltonien effectif \hat{H}_x^{eff} construit grâce à la partie spatiale selon y , $g(y)$ supposée connue.

3.3.1.2 Fonction d'essai 2D pour le Hamiltonien excitonique

On considère une paire électron-trou évoluant dans un puits quantique dont les potentiels de confinement dus à l'hétérostructure sont notés $V_e(z)$ pour l'électron et $V_h(z)$ pour le trou. Dans le référentiel du centre de masse, la fonction d'onde stationnaire de l'exciton est une fonction propre du Hamiltonien suivant :

$$\hat{H} = \hat{H}_{z_e}^e + \hat{H}_{z_h}^h + \hat{H}_{(\rho, z_e - z_h)}^x \quad (3.24)$$

avec

$$\hat{H}_{z_e}^e = -\frac{\hbar^2}{2} \left(\partial_{z_e} m_e^{-1} \partial_{z_e} \right) + V_e(z_e) \quad (3.25)$$

$$\hat{H}_{z_h}^h = -\frac{\hbar^2}{2} \left(\partial_{z_h} m_h^{-1} \partial_{z_h} \right) + V_h(z_h) \quad (3.26)$$

$$\hat{H}_{(\rho, z_e - z_h)}^x = -\frac{\hbar^2}{2\mu_{\perp}} \left(\partial_{\rho}^2 + \rho^{-1} \partial_{\rho} \right) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon \sqrt{\rho^2 + (z_e - z_h)^2}} \quad (3.27)$$

où

- $m_{e,h}(z)$ est la masse effective de l'électron e (du trou h) dans la direction de croissance z ;
- μ_{\perp} est la masse effective réduite dans le plan du système « électron- trou », supposée isotrope ;
- e est la charge élémentaire ;
- ϵ est la constante diélectrique du matériau puits.



On identifie aisément dans l'équation 3.24

- les trois contributions d'énergie cinétique : les deux termes électron et trou relatifs aux variables z_e et z_h ainsi que le terme de mouvement relatif selon la variable ρ ;
- les deux termes dus aux potentiels de confinement $V_e(z_e)$ et $V_h(z_h)$ pour l'électron et le trou respectivement (déjà introduits dans l'équation 3.8) ;
- le terme coulombien attractif inversement proportionnel à la distance $\sqrt{\rho^2 + (z_e - z_h)^2}$ entre l'électron et le trou.

Nous choisissons une fonction d'essai bidimensionnelle, $\Phi_\alpha^{2D}(z_e, z_h, \rho)$, sous la forme générique suivante

$$\Phi_\alpha^{2D}(z_e, z_h, \rho) = F_e(z_e)F_h(z_h)F_{ex,\alpha}(\rho) \quad (3.28)$$

pour résoudre l'équation aux valeurs propres

$$\left[\hat{H}_{z_e}^e + \hat{H}_{z_h}^h + \hat{H}_{(\rho, z_e - z_h)}^x \right] \Phi_\alpha^{2D}(z_e, z_h, \rho) = E_X^e \Phi_\alpha^{2D}(z_e, z_h, \rho) \quad (3.29)$$

La fonction d'essai a sa partie radiale

$$F_{ex,\alpha}(\rho) = A \exp(-\rho/\alpha) \quad (3.30)$$

caractérisée par le paramètre variationnel α qui régule la portée de la fonction d'onde dans le plan $(x, y) = (\rho, \theta)$. Ce paramètre α constitue le pseudo-rayon de Bohr. Les fonctions axiales $F_e(z_e)$ et $F_h(z_h)$, supposées normées, traduisent le confinement selon la direction z de l'électron et du trou respectivement, tandis que la fonction radiale, $F_{ex,\alpha}(\rho)$, de type hydrogénoïde, indique un maximum de probabilité de présence de l'électron à proximité du trou. L'expression de la constante de normalisation $A^2 = 2/\pi\alpha^2$ se déduit de l'égalité

$$\int_0^\infty d\rho 2\pi\rho |F_{ex,\alpha}(\rho)|^2 = 1. \quad (3.31)$$

Notons que la forme choisie pour la fonction d'essai *ne permet pas de rendre compte des corrélations* entre l'électron et le trou : la probabilité de présence de l'électron en $z = z_e$ est indépendante de la probabilité de présence du trou en $z = z_h$. Cette limitation n'est, dans le cas d'un puits large où les fonctions d'onde de l'électron et du trou sont séparées, que peu problématique dans la mesure où les zones spatiales accessibles aux charges opposées sont disjointes. Ces corrélations sont donc, *a priori*, faibles et seront négligées.



3.3.1.3 Potentiel effectif excitonique relatif à F_e et construit sur F_h

On applique la méthode décrite dans la section 3.3.1.1, en multipliant l'égalité 3.29 par $F_h(z_h)F_{ex,\alpha}(\rho)$ et en intégrant sur z_h et ρ . On obtient alors, relativement à la variable z_e et à la fonction d'onde $F_e(z_e)$, le Hamiltonien effectif suivant :

$$\underbrace{\left[|A|^2 \iint dz_e d\rho 2\pi\rho F_h^*(z_h) e^{-\rho/\alpha} \hat{H} F_h(z_h) e^{-\rho/\alpha} \right]}_{\text{Hamiltonien effectif construit à partir de } \hat{H}} F_e(z_e) = E_X^e F_e(z_e) \quad (3.32)$$

Un calcul simple mais un peu laborieux permet d'explicitier les différents termes de ce hamiltonien effectif

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2} \left(\partial_{z_e} m_e^{-1} \partial_{z_e} \right) + V_\alpha^{\text{eff}}(z_e) \right] F_e(z_e) = E_X F_e(z_e) \quad (3.33)$$

et fait apparaître le *potentiel effectif*, $V_\alpha^{\text{eff}}(z_e)$, relatif à F_e et construit sur F_h

$$V_\alpha^{\text{eff}}(z_e) = \frac{\hbar^2}{2\mu_\perp \alpha^2} - \frac{2e^2}{4\pi^2 \varepsilon \alpha^2} \int dz_h |F_h|^2 \underbrace{\int d\rho 2\pi\rho \frac{e^{-2\rho/\alpha}}{\sqrt{\rho^2 + z^2}}}_{2\pi\alpha F_u(z/\alpha)} + V_e(z_e) + E_h \quad (3.34)$$

où $z = z_e - z_h$. Attention, l'énergie E_h n'est plus nécessairement une valeur propre de l'opérateur $\hat{H}_{z_h}^h$ (donné par l'équation 3.26) mais vérifie

$$E_h = \langle F_h | \hat{H}_{z_h}^h | F_h \rangle = \int dz F_h^*(z_h) \hat{H}_{z_h}^h F_h(z_h). \quad (3.35)$$

La fonction

$$F_u(u) = \int_0^\infty dx \frac{x e^{-2x}}{\sqrt{x^2 + u^2}} \quad (3.36)$$

est une fonction numérique qu'il est possible de tabuler afin d'augmenter l'efficacité numérique du calcul. On donne ci-dessous le code MatLab permettant de calculer efficacement l'intégrale double

$$-\frac{e^2}{\pi \varepsilon \alpha} \int dz_h |F_h|^2 F_u(|z_h - z_e|/\alpha) \quad (3.37)$$

apparaissant dans l'équation 3.34 à l'aide de la fonction auxiliaire F_u . Notre algorithme utilise une table bidimensionnelle `zhi-zei` des différences de coordonnées z_e et z_h ce qui permet, d'une part, le calcul de l'intégrale par sommation, et évite, d'autre part, la boucle sur les indices de la table des $z_e(i)$.



```

1 % Maillage spatial
2 zi=linspace(0,L,Nstep);           % Table unidimensionnelle
3 deltaz=zi(2)-zi(1);             % Pas d'espace
4
5 % tables zhi, zei bidimensionnelles
6 zhi=zi'*ones(1,length(zi));     % Table1
7 zei=zhi';                       % Table2
8
9 %Energie cinetique radiale
10 EcPerp=-hbar^2/(2*muPerp*alpha^2);
11
12 coeff=qe^2/(pi*epsilon*alpha); % Facteur constant
13
14 Veff=EcPerp-coeff*sum(Fh(zhi).^2.*...
15     Fu(abs(zei-zhi)/alpha),1)+Ve(zi)+Eh;
    
```

Les grandeurs E_h , F_h et F_u désignent respectivement l'énergie $E_h = \langle F_h | \hat{H}_{z_h}^h | F_h \rangle$, la fonction d'onde de trou $F_h(z_h)$, la fonction numérique auxiliaire tabulée, F_u .

3.3.2 Calcul variationnel autocohérent

Pour chaque morphologie de la fonction d'onde de trou, $F_h(z_h)$, et chaque valeur du paramètre variationnel α , il existe une unique fonction d'onde propre $F_e(z_e)$ telle que la fonction d'essai $\Phi_\alpha^{2D}(z_e, z_h, \rho)$ soit l'état fondamental du Hamiltonien effectif construit à partir de ce couple (F_e, α) . La valeur propre associée, $E_{X,\alpha}^e$, est donc, au sens de la méthode du Hamiltonien effectif, l'énergie de l'exciton confiné dans l'hétérostructure. Pour obtenir la meilleure estimation possible avec cette méthode, il est nécessaire

- d'optimiser la valeur du paramètre variationnel α de manière à minimiser l'énergie de la fonction d'essai 2D, $E_X^e = \min_\alpha \{E_{X,\alpha}^e\}$;
- d'optimiser la forme de la fonction de trou, $F_h(z_h)$, ayant servi à construire le potentiel effectif $V_\alpha^{\text{eff}}(z_e)$. On utilise pour cela la même méthode de potentiel effectif construit non pas sur la fonction F_h mais sur la fonction F_e que l'on vient d'établir;
- de réitérer le processus en déterminant la morphologie de F_e pour une fonction F_h donnée puis d'alterner en cherchant la morphologie de F_h pour la fonction F_e que l'on vient d'établir, etc...

L'algorithme d'un tel processus est illustré sur la figure 3.10. On obtient ainsi une suite d'estimations de l'énergie de l'exciton

$$E_{X,n=0}^e, E_{X,n=0}^h, \dots, E_{X,n}^e, E_{X,n}^h, E_{X,n+1}^e, E_{X,n+1}^h, \dots \quad (3.38)$$



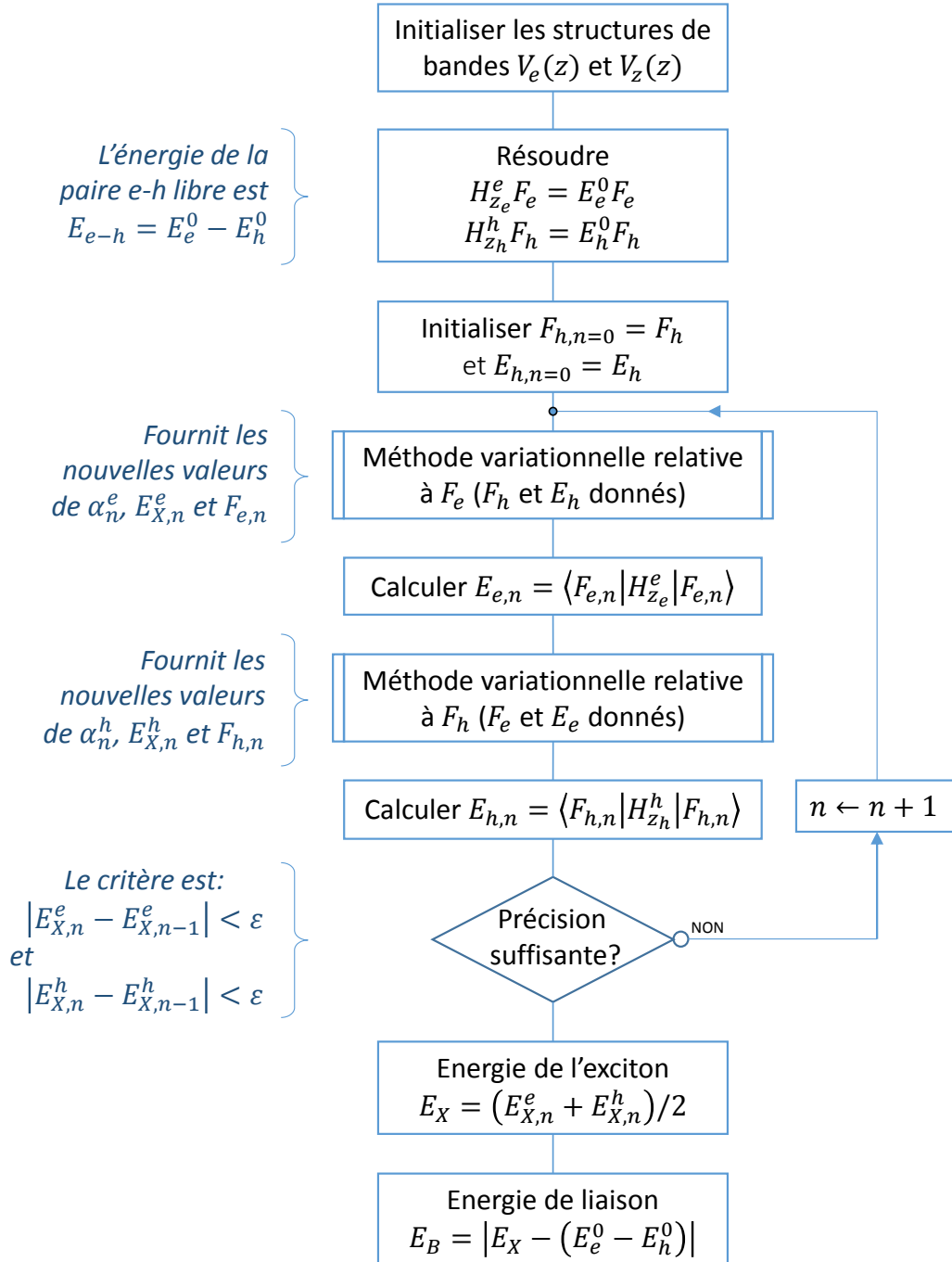


FIGURE 3.10 – Algorithme de la méthode autocohérente en potentiel effectif



alternativement relative à l'optimisation de la morphologie de la fonction d'onde de l'électron (F_e) puis à celle du trou (F_h), jusqu'à convergence de la méthode.

La méthode d'optimisation du paramètre variationnel est décrite sur l'algorithme de la figure 3.11 : on utilise un encadrement du paramètre α dans un intervalle $[\alpha_A, \alpha_B]$ que l'on fait évoluer successivement en utilisant la convexité de la fonction $\alpha \rightarrow E_B$, donnant l'énergie de liaison en fonction du paramètre α . La convergence de cette méthode variationnelle est illustrée sur la figure 3.12 sur laquelle on constate la forme convexe de la fonction $\alpha \rightarrow E_B$. On peut constater que la convergence est très bonne : en pratique une quinzaine d'itérations suffisent à déterminer le paramètre variationnel α avec une précision du centième de nanomètre, soit une incertitude sur l'optimum énergétique inférieure au dixième de milli électronvolt.

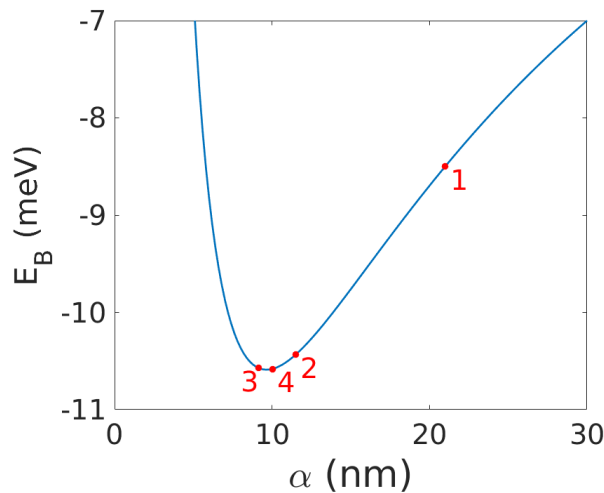


FIGURE 3.12 – Évolution du niveau fondamental du hamiltonien effectif en fonction du paramètre variationnel α . Les points indicés correspondent aux itérations réalisées pour la recherche de l'optimum.

3.3.3 Application : cas du puits quantique polaire de GaN

En mettant en œuvre la méthode numériquement précédemment décrite, on obtient, pour l'échantillon D704, dans la limite des très faibles densités de porteurs,

- l'énergie de liaison excitonique, $E_B = 10,6$ meV,
- la valeur du pseudo-rayon de Bohr, $\alpha \sim 9,5$ nm.

Il est également possible d'effectuer le calcul de l'énergie excitonique pour une densité de porteurs injectée non nulle : on utilise pour cela, préalablement au calcul de l'énergie excitonique, la technique décrite dans la section 3.2. La figure 3.13 représente les diagrammes des bandes de conduction et de valence en l'absence et en présence de porteurs injectés ($n = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$). Sur cette figure, les fonctions d'onde de l'électron

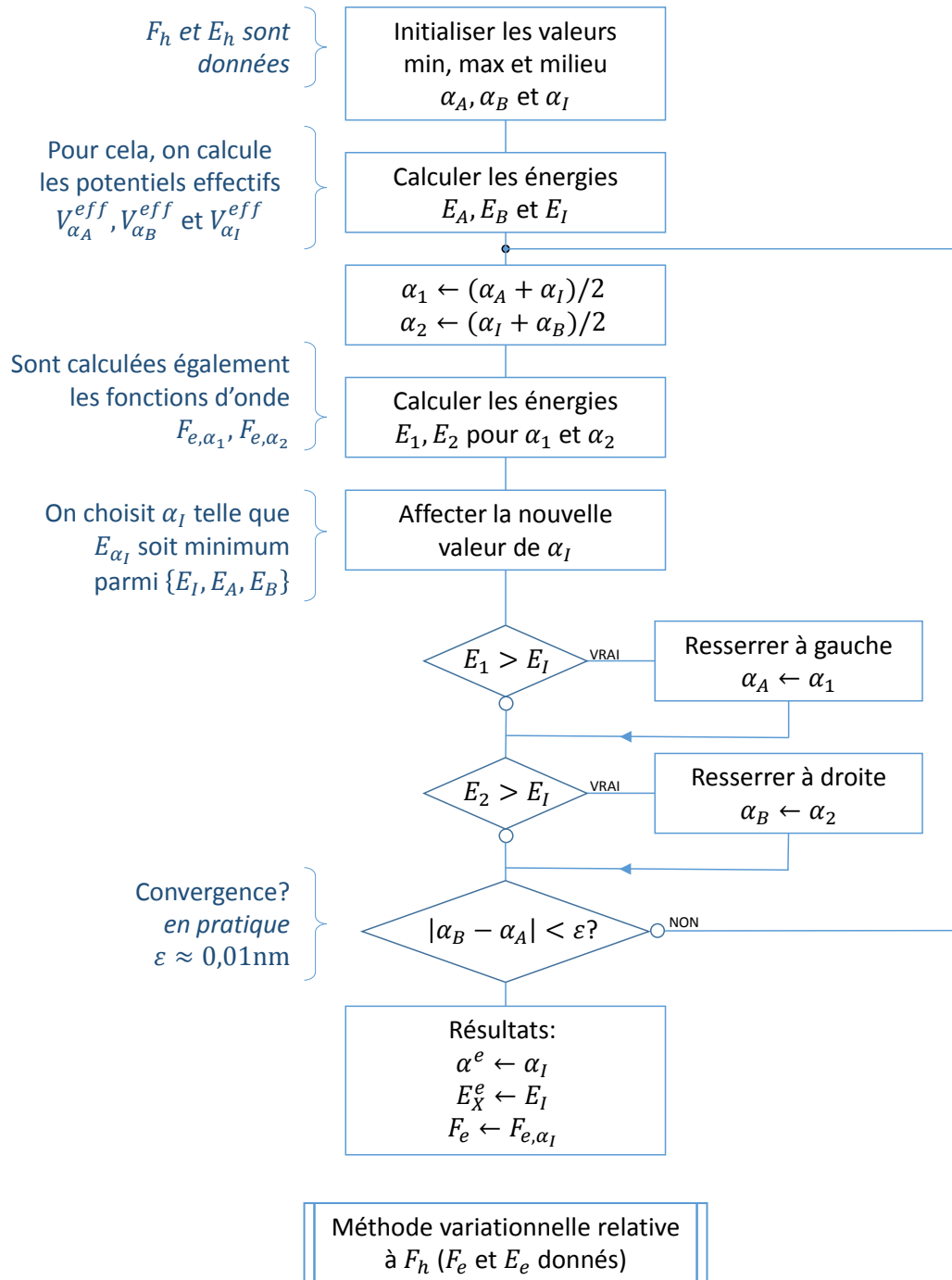


FIGURE 3.11 – Algorithme de la méthode variationnelle



et du trou sont également tracées, respectivement, en rouge sur la figure 3.13a et en vert sur la figure 3.13b. On constate que l'effet de la densité de porteurs sur les diagrammes de bandes et sur les fonctions d'onde est similaire à ce qui est décrit dans le paragraphe 3.2.4. En outre, l'*interaction coulombienne* entre l'électron et le trou, apparaissant dans le Hamiltonien excitonique, est également visible. En effet, le potentiel effectif, $V_\alpha^{\text{eff}}(z_e)$ ($V_\alpha^{\text{eff}}(z_h)$), relatif à F_e (F_h) est tracé sur la figure 3.13 respectivement, (a) pour l'électron et (b) pour le trou. Sur la figure 3.13b, on constate que la présence de l'électron affecte le potentiel effectif du trou (tracé noir) engendrant ainsi une position du maximum de probabilité de présence de la fonction d'onde de trou (tracé magenta) **très différente de ce qu'elle était sans la prise en compte de l'interaction coulombienne**. Dans la direction z , la distance entre l'électron et le trou peut être évaluée en introduisant la grandeur

$$d = \left| \int z_e |\Phi_e(z_e)|^2 dz_e - \int z_h |\Phi_h(z_h)|^2 dz_h \right|. \quad (3.39)$$

Pour $n = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, on obtient par le calcul une distance électron-trou qui, d'une valeur $d_{eh}(\text{free}) = 5,1 \text{ nm}$ ne tenant pas en compte l'interaction coulombienne, diminue à la valeur $d_{eh}(\text{bound}) = 2,7 \text{ nm}$ lorsque l'interaction coulombienne est prise en compte.

L'effet de la densité de porteurs peut évidemment être étudié pour une large gamme de densités. A titre informatif, le calcul auto-cohérent de l'énergie de l'exciton précédé de l'algorithme Poisson-Schrödinger pour une liste de 30 valeurs de densités de porteurs variant de manière régulière entre $n = 0$ et $n_{\text{max}} = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ requiert environ 10 minutes sur un *laptop* standard de 2020.

La figure 3.14 synthétise la manière dont la prise en compte de l'interaction coulombienne est affectée par la densité de porteurs. Tout d'abord, la figure 3.14a montre que le pseudo-rayon de Bohr ainsi que les distances électron-trou sont des fonctions décroissantes de la densité de porteurs injectés. Ce résultat est en accord avec l'effet d'écrantage du champ interne qui tend à rapprocher les charges. On constate de plus qu'à partir d'une densité $n \sim 5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, l'interaction coulombienne localise de manière bien plus abrupte le trou à proximité de l'électron que ne le fait l'écrantage du champ interne. Cette effet d'accroissement de la force coulombienne est également visible sur la figure 3.14b sur laquelle on peut constater une accélération de l'augmentation de l'énergie de l'exciton avec la densité de porteurs autour de cette même valeur seuil $n \sim 5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. La figure 3.14c illustre l'évolution croissante de l'énergie de la transition E_1H_1 correspondant à un système électron-trou « libre » (tracé bleu) et celle de la recombinaison excitonique. A densité fixée, l'écart entre ces deux transitions définit l'énergie de liaison excitonique. Enfin, l'augmentation de l'intensité de photoluminescence avec la densité est visible sur la figure 3.14d. De part la plus



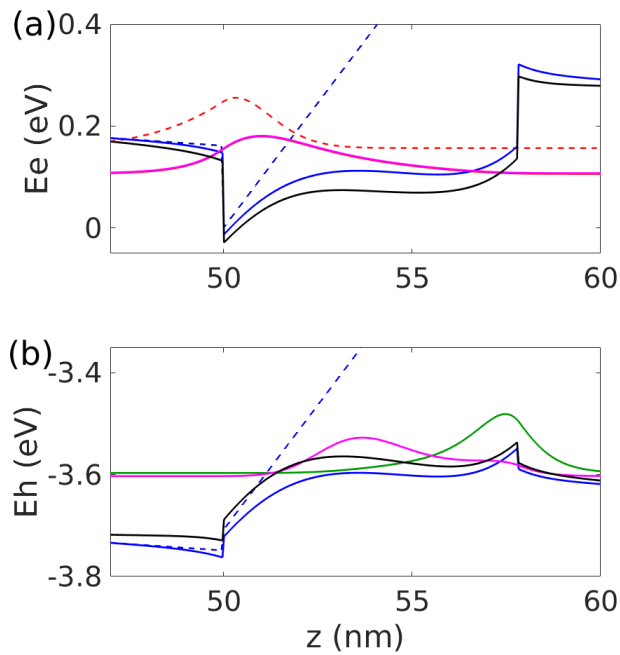


FIGURE 3.13 – Bandes de conduction (a) et de valence (b) calculées pour l'échantillon expérimental D704 en fonction de l'abscisse z à partir de la surface $z = 0$. En tirets bleus sont tracées les bandes sans injection de porteurs. En traits bleus continus, nous avons tracé les mêmes bandes avec une densité de porteurs $n = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Les fonctions d'onde propres de l'état fondamental de l'électron (a) et du trou (b) sont tracées, respectivement, en rouge et en vert. Sur la figure (a), le trait noir correspond au potentiel effectif $V_\alpha^{\text{eff}}(z_e)$, relatif à F_e et construit sur F_h . Sur la figure (b), le trait noir représente le potentiel effectif $V_\alpha^{\text{eff}}(z_h)$, relatif à F_h . Le résultat de l'optimisation autocohérente des fonctions d'essais excitoniques est tracé en magenta, sur la figure (a) représentant $F_e(z_e)$, et sur la figure (b) $F_h(z_h)$, toujours pour $n = 6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

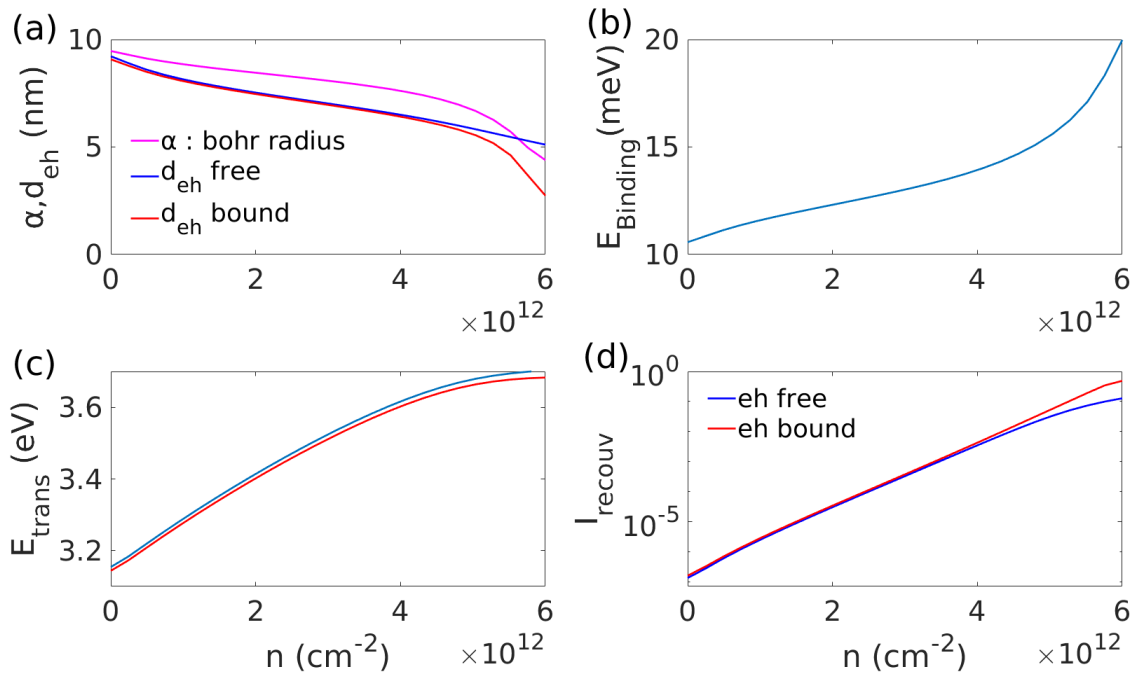


FIGURE 3.14 – Effet de la densité de porteurs injectés sur le calcul excitonique : (a) évolution, en fonction de la densité, du pseudo-rayon de Bohr α et des distances entre électron-trou libres $d_{eh}(free)$ et liés $d_{eh}(bound)$; (b) énergie de liaison excitonique, E_B , en fonction de la densité; (c) énergies des transitions radiatives du système électron-trou libre (en bleu) et lié (en rouge); (d) évolution de l'intégrale de recouvrement électron-trou dans le cas où l'interaction coulombienne n'est pas prise en compte (*eh free*, en bleu) et dans le cas où cette interaction est prise en compte (*eh bound*, en rouge).

grande proximité de l'électron et du trou en présence de l'interaction coulombienne, l'intégrale de recouvrement est toujours supérieure pour l'exciton que pour le système électron-trou libre. Les deux courbes bleue et rouge suivent une évolution similaire avec toutefois un décrochement à partir de la valeur $n \sim 5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Un autre enseignement de ces calculs est que l'énergie de l'exciton est une fonction croissante de la densité de porteurs injectés. Une manière simple de comprendre ce résultat est de rappeler que le rayon de Bohr d'un exciton massif dans GaN est de l'ordre de 3 nm. Or, le fort champ interne régnant dans le puits effectue la séparation des charges sur une distance $\sim L_W > 3 \text{ nm}$, donc amoindrit l'interaction coulombienne et diminue ainsi l'énergie de liaison excitonique. On comprend donc que, les charges injectées, en réduisant le champ interne, contribuent à limiter cette séparation entre l'électron et le trou et rétablissent donc *l'intensité de la liaison coulombienne*. En d'autres termes, plus l'exciton est peu étendu en z , plus son énergie et sa probabilité de recombinaison radiative augmentent [129]. Ce comportement est inversé dans le cas de puits étroits, *ie* tels que $L_W < 3 \text{ nm}$.

Enfin, pour illustrer le concept de sphéricité de l'exciton, la figure 3.15 donne l'évo-

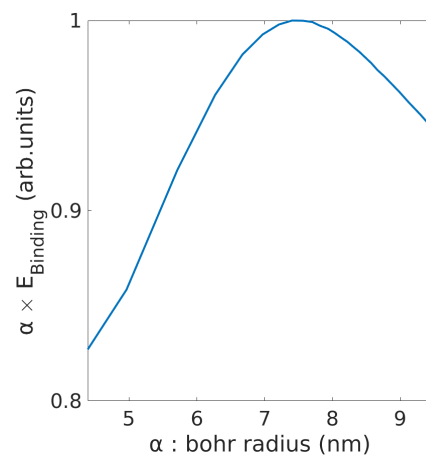


FIGURE 3.15 – Évolution du produit entre le pseudo-rayon de Bohr et l'« énergie de liaison excitonique » en fonction du pseudo-rayon de Bohr, noté α .

lution du « produit $\alpha \times E_B$ » entre le pseudo-rayon de Bohr et l'énergie de l'exciton, en fonction du pseudo-rayon de Bohr. Dans le cas d'un système parfaitement hydrogénoïde, ce produit serait constant car l'énergie de liaison varie inversement proportionnellement au rayon de Bohr. Dans le cas de ce puits quantique, lorsque le rayon de Bohr varie d'un facteur 2, on constate que le produit $\alpha \times E_B$ varie de moins de 20%. Ce résultat tend à prouver que le concept d'exciton à symétrie sphérique n'est pas si mauvais.

3.4 Modélisation des spectres d'émission spontanée du puits quantique

Cette section a pour but de détailler la manière dont sont modélisés les spectres d'émission spontanée du puits quantique. Le formalisme mis en oeuvre dans cette section s'inspire en grande partie de l'ouvrage de E. ROSENCHER et B. VINTER [92]. Même si ces deux cadres interprétatifs de la luminescence, due à la phase excitonique d'une part, et due la recombinaison de paires électron-trou non liées d'autre part, peuvent apparaître comme contradictoires, il est apparu très utile d'analyser les spectres expérimentaux avec une approche mixte. La coexistence de ces deux phases sera traitée dans la section 3.6. Les grandeurs physiques utiles à la description de l'émission spontanée du puits quantique sont définies dans le tableau 3.1.

Paramètre	Description	Unité
n_{e-h}	densité bidimensionnelle de paires électron-trou	cm^{-2}
E_{Fe}	quasi-niveau de Fermi électronique	eV
E_{Fh}	quasi-niveau de Fermi de trou	eV
$m_e^\perp, m_{h^A}^\perp, m_{h^B}^\perp$	masses effectives dans l'approximation parabolique avec $i \in \{e : \text{électron}, h^A : \text{trou A}, h^B : \text{trou B}\}$	kg
$m_e^z, m_{h^A}^z, m_{h^B}^z$	masses effectives dans la direction du confinement	kg
$k_B T$	énergie thermique à la température T	eV
$E_{e,h} = \hbar^2 k_{e,h}^2 / 2m_{e,h}$	énergie cinétique $\perp z$ pour les porteurs e, h	eV
$\hbar\omega$	énergie du photon pour la transition optique	eV
$m_i^\perp / \pi \hbar^2$	densité d'états 2D pour les bandes $i \in \{e, h^A, h^B\}$	$\text{eV}^{-1} \text{cm}^{-2}$
$\tau_{A,B}(E)$	durées radiatives des transitions de type A ou B	s
$\Delta_{A,B}$	décalage énergétique des transitions A et B tenant compte du diagramme de bandes au point Γ de la zone de Brillouin et du confinement quantique	eV
$f_{FD}(E, T, E_F)$	$[1 + \exp \{(E - E_F)/k_B T\}]^{-1}$ statistique de Fermi-Dirac pour les porteurs non liés en équilibre à T	1
$E_{QW}(n_{e-h})$	énergie de la transition $E_1 H_1$ pour la bande de trou A au point Γ où $k_e = k_h = 0$ et tenant compte du blueshift en densité	eV
$f_{i,j}(E = \hbar\omega)$	taux d'occupation du porteur $i \in \{e, h\}$ dont l'état est compatible avec la transition d'énergie $E = \hbar\omega$	1
$\mathcal{H}(x)$	fonction d'Heaviside égale à 1 si $x \geq 0$, 0 sinon	1

TABLE 3.1 – Grandeurs physiques pour la modélisation de l'émission spontanée



3.4.1 Taux d'émission spontanée

3.4.1.1 Transitions interbandes

Le taux d'émission spontanée correspond à la relaxation radiative d'un électron occupant la sous-bande E_1 de la bande de conduction vers la sous bande $H_{1,A}$ de la bande de valence A. Il est donné par la somme sur toutes les transitions ($E_1; \mathbf{k}_c \rightarrow H_{1,A}; \mathbf{k}_v$). Une de ces transitions est représentée sur la figure 3.16 où sont également tracées les relations de dispersion des bandes de conduction et de valence notées, respectivement, $E_c(\mathbf{k}_c)$ et $E_v(\mathbf{k}_v)$.

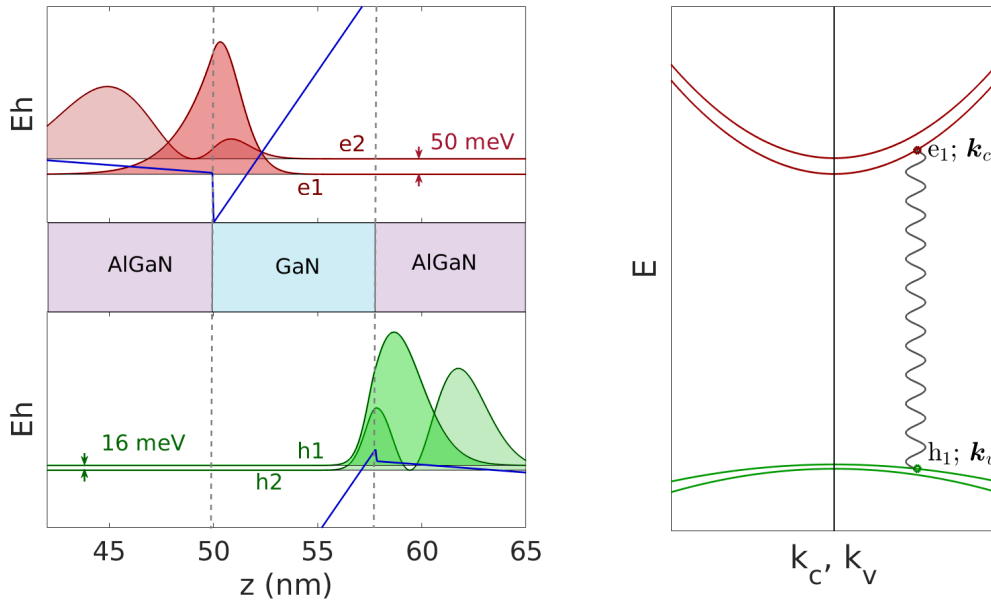


FIGURE 3.16 – Figure de gauche : schéma des bandes de conduction et de valence du puits quantique et des fonctions d'onde du niveau fondamental et premier excité correspondant à l'échantillon D704. La côte $z = 0$ repère la surface de l'échantillon. Figure de droite : relation de dispersion $E_c(\mathbf{k}_c)$ et $E_v(\mathbf{k}_v)$ de chacune des quatre sous-bandes E_1, E_2, H_1, H_2 . On note que dans ce schéma la dégénérescence de la bande de trous n'est pas représentée.

La conservation de l'énergie ($E_c(\mathbf{k}_c) - E_v(\mathbf{k}_v) = \hbar\omega$) implique que la quantité de mouvement du photon est négligeable devant celles de l'électron et du trou. Ainsi, les règles de sélection imposent que les transitions optiques sont quasi-verticales ($\mathbf{k}_v = \mathbf{k}_c = \mathbf{k}$)¹, le taux d'émission spontanée est ainsi donné par la sommation ([92] p. 312)

$$R_{\text{spont}}(\hbar\omega) = \sum_{\mathbf{k}} \frac{2}{\tau_R(\mathbf{k})} f_c(\mathbf{k}) (1 - f_{v,A}(\mathbf{k})) \delta(E_c(\mathbf{k}) - E_v(\mathbf{k}) - \hbar\omega).$$

1. Notons qu'un trou dans l'état \mathbf{k}_v possède une impulsion $\mathbf{p}_h = \hbar\mathbf{k}_h = -\hbar\mathbf{k}_v$, si bien que vecteur d'onde total, $\mathbf{K} = \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h$ du système électron-trou se recombinant est nul.

où les vecteurs $\mathbf{k}_\perp = (k_x, k_y)$ se limitent à la première zone de Brillouin, le facteur 2 tenant compte de la multiplicité de spin. $\tau_R(\mathbf{k})$ désigne le temps de vie radiatif de la transition ($\mathbf{k} : E_1 \rightarrow H_{1,A}$). Les grandeurs $f_c(\mathbf{k})$ et $f_{v,A}(\mathbf{k})$ sont les taux d'occupation des états électroniques $\mathbf{k} = \mathbf{k}_\perp$, respectivement, de la bande de conduction et de la bande valence. On introduit alors la densité bidimensionnelle d'états joints, D_{cv}^{2D} , associée aux transitions ($\forall \mathbf{k}_\perp : E_1 H_{1,A} \rightarrow \hbar\omega$).

$$D_{cv}^{2D}(\hbar\omega) = \sum_{\mathbf{k}_\perp} \delta(E_c(\mathbf{k}) - E_v(\mathbf{k}) - \hbar\omega) \quad (3.40)$$

On transforme la sommation discrète de la zone de Brillouin en somme continue

$$2 \sum_{\mathbf{k}_\perp} \dots \quad \rightarrow \quad 2 \int_{\mathbf{k}_\perp} \frac{d^2 \mathbf{k}_\perp}{(2\pi)^2} \dots = \frac{1}{\pi} \int_{k=0}^{\infty} k dk \dots$$

Ainsi,

$$D_{cv}^{2D}(\hbar\omega) = 2 \int_{\mathbf{k}_\perp} \frac{d^2 \mathbf{k}_\perp}{(2\pi)^2} \delta(E_c(\mathbf{k}) - E_v(\mathbf{k}) - \hbar\omega)$$

Si on suppose que la durée de vie radiative est indépendante de \mathbf{k} et que les relations de dispersion des bandes de valence et de conduction sont isotropes ($E_v(\mathbf{k}) = E_v(\|\mathbf{k}\|)$ et $E_c(\mathbf{k}) = E_c(\|\mathbf{k}\|)$), le spectre d'émission spontanée s'écrit simplement :

$$R_{\text{spont}}(\hbar\omega) \propto D_{cv}^{2D}(\hbar\omega) f_c(\hbar\omega) (1 - f_{v,A}(\hbar\omega)). \quad (3.41)$$

Cette expression s'interprète de la manière suivante : l'émission spontanée d'un photon d'énergie $\hbar\omega$ est proportionnelle au nombre d'états joints possédant l'énergie $E = \hbar\omega$ pondéré par les taux, respectivement, d'occupation de la bande de conduction $f_c(\hbar\omega)$ et de vacance de la bande de valence $(1 - f_{v,A}(\hbar\omega))$.

3.4.1.2 Quasi niveaux de Fermi et bandes paraboliques

Dans l'hypothèse où les relations de dispersion sont paraboliques, les masses effectives m_c^\perp et $m_{v,A}^\perp$ permettent de déterminer explicitement les expressions des taux d'occupation des bandes de conduction et de valence pour la transition d'énergie $E = \hbar\omega$. En effet, si on choisit l'origine des énergies au point $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ de la bande de valence, les relations de dispersion

$$E_c(\mathbf{k}_\perp) = \frac{\hbar^2}{2m_c^\perp} \mathbf{k}_\perp^2 + E_0 \quad (3.42)$$

$$E_v(\mathbf{k}_\perp) = -\frac{\hbar^2}{2m_v^\perp} \mathbf{k}_\perp^2 \quad (3.43)$$



permettent de relier directement l'énergie du photon

$$\hbar\omega = E_c(\mathbf{k}_\perp) - E_v(\mathbf{k}_\perp) = E_0 + \frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{m_c^\perp} + \frac{1}{m_v^\perp} \right) \mathbf{k}_\perp^2 \quad (3.44)$$

aux énergies des états dans les bandes c et v par :

$$E_c(\hbar\omega) = \frac{m_v^\perp}{m_v^\perp + m_c^\perp} (\hbar\omega - E_0) + E_0 \quad (3.45)$$

$$E_v(\hbar\omega) = -\frac{m_c^\perp}{m_v^\perp + m_c^\perp} (\hbar\omega - E_0), \quad (3.46)$$

E_0 représentant l'énergie de la transition $E_1H_{1,A}$ en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. Les taux d'occupation $f_c(\hbar\omega)$ et $f_{v,A}(\hbar\omega)$ sont alors donnés par les statistiques de Fermi-Dirac impliquant les quasi-niveaux de Fermi d'électrons et de trous $E_{F,e}$ et $E_{F,h}$:

$$f_c(\hbar\omega) = \left\{ \exp \left(\frac{E_c(\hbar\omega) - E_{F,e}}{k_B T} \right) + 1 \right\}^{-1} \quad (3.47)$$

$$f_h(\hbar\omega) = \left\{ \exp \left(\frac{E_v(\hbar\omega) - E_{F,h}}{k_B T} \right) + 1 \right\}^{-1}. \quad (3.48)$$

$$(3.49)$$

Lorsque les bandes sont paraboliques, la densité d'états conjoints est uniforme et s'exprime simplement en fonction des masses effectives m_c^\perp et m_v^\perp :

$$D_{cv}^{2D}(\hbar\omega) = 2 \int_{\mathbf{k}_\perp} \frac{d^2\mathbf{k}_\perp}{(2\pi)^2} \delta \left(E_0 + \frac{\hbar^2}{2\mu^\perp} \mathbf{k}_\perp^2 - \hbar\omega \right) = \frac{\mu^\perp}{\pi\hbar^2} \mathcal{H}(\hbar\omega - E_0) \quad (3.50)$$

$$(3.51)$$

où $\mu^\perp = m_c^\perp m_v^\perp / (m_c^\perp + m_v^\perp)$ est la masse effective réduite du système {électron-trou} et \mathcal{H} représente la fonction d'Heaviside.

3.4.1.3 Cas de bandes non paraboliques

Dans le cas où les relations de dispersion $E_c(\mathbf{k}_\perp)$ et $E_v(\mathbf{k}_\perp)$ demeurent isotropes dans le plan (k_x, k_y) mais ne sont plus paraboliques, les relations précédentes sont modifiées. La densité d'états conjoints devient

$$D_{cv}^{2D}(\hbar\omega) = \frac{1}{\pi} \int_{k=0}^{\infty} k dk \delta(E_{cv}(k) - \hbar\omega) \quad (3.52)$$

$$(3.53)$$



où $E_{cv}(k) = E_c(k) - E_v(k)$ est l'énergie de la transition, uniquement fonction de la norme $k = \|\mathbf{k}_\perp\|$ du vecteur d'onde dans le plan (k_x, k_y) . Soit, avec la propriété

$$\delta(g(x)) = \frac{1}{g'(x_i)} \delta(x - x_i) \quad \text{où } x_i \text{ est tel que } g(x_i) = 0, \quad (3.54)$$

il vient

$$D_{cv}^{2D}(\hbar\omega) = \frac{1}{\pi} k \frac{1}{\frac{\partial E_{cv}}{\partial k}} \Big|_{k|E_{cv}(k)=\hbar\omega} \times \mathcal{H}(\hbar\omega - E_0). \quad (3.55)$$

Par comparaison avec l'équation (3.50), on peut définir la *masse effective de densité d'états conjoints*, $\mu^{DOS}(\hbar\omega)$, par :

$$\frac{1}{\mu^{DOS}(\hbar\omega)} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{k} \frac{\partial E_{cv}}{\partial k} \Big|_{k|E_{cv}(k)=\hbar\omega}$$

De même, les énergies $E_c(\hbar\omega)$ et $E_v(\hbar\omega)$ qui interviennent dans les expressions (4.9 et 4.10) donnant les taux d'occupation doivent être remplacées par :

$$\left. \begin{array}{l} E_c(\hbar\omega) = E_c(k) \\ E_v(\hbar\omega) = E_v(k) \end{array} \right\} \quad \text{avec } k \text{ tel que } E_{cv}(k) = E_c(k) - E_v(k) = \hbar\omega \quad (3.56)$$

Afin d'illustrer la conséquence de la non-parabolicité, nous avons représenté sur la figure 3.17 les relations de dispersion des bandes de trous *A* et *B* calculées selon la méthode KP avec un jeu de paramètres adapté au GaN [130]. Sur la figure de droite sont représentées les densités d'états des bandes de trous A et B correspondant à ces relations de dispersion. On constate sur cette dernière figure que, dès que le remplissage des états de trous se situe à quelques 8 meV sous le bord de bande, les masses effectives de densité d'états pour ces trous tendent à se stabiliser et s'établissent à $m_{v,A}^\perp \sim 1,6 m_0$ et $m_{v,B}^\perp \sim 0,3 m_0$, ce qui rend légitime l'utilisation d'une masse effective de densité d'états uniforme dans ce régime de remplissage. Toutefois, pour des niveaux de remplissage faibles, la masse effective de densité d'états est inférieure et il est beaucoup plus délicat de lui attribuer une valeur unique.

Parallèlement, on peut constater la relativement bonne adéquation, au voisinage du bord de bande, de la relation de dispersion $E_{v,A}(k_z)$ avec une courbe parabolique. Les valeurs de masses effectives dans la direction *z*, concept adapté à l'approximation de la fonction enveloppe,

$$\frac{1}{m_z^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k^2}, \quad (3.57)$$



est plutôt bien modélisée par une valeur de l'ordre de $1,45 m_0$ pour la bande de trou A.

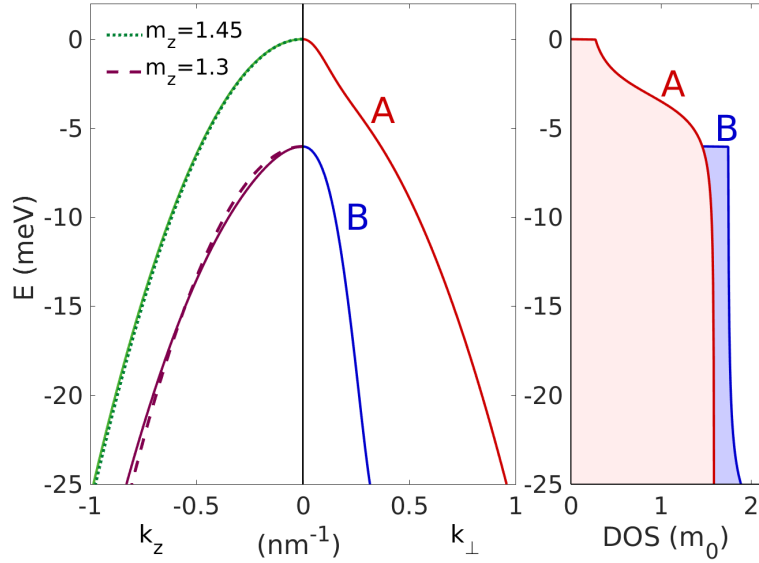


FIGURE 3.17 – Illustration de deux notions de masses effectives : masse effective pour l'approximation de la fonction enveloppe et masse effective de densité d'états.

Figure de gauche : relations de dispersion $E_{v,A}(k_{\perp})$, $E_{v,B}(k_{\perp})$ et $E_{v,A}(k_z)$, $E_{v,B}(k_z)$ calculées par la méthode k.p. En pointillés, deux régressions quadratiques fournissant les masses effectives adaptées à la théorie de la fonction enveloppe. *Figure de droite* : densité d'états en énergie pour les bandes de valence des trous A et B ; cette densité d'états a été divisée par $m_0/\pi\hbar^2$ (qui s'exprime en cm^{-2}) pour en faire une grandeur adimensionnée.

Dans ce qui suit, nous supposons les bandes paraboliques. Dans ce cas, la masse effective est un concept pertinent pour décrire les densités d'états. Nous prendrons les valeurs suivantes :

- $m_{h,A}^{\perp} = 0,8 m_0$ pour la masse effective des trous A dans le plan du puits. Cette masse intervient dans la densité d'états.
- $m_{h,A}^z = 1,45 m_0$ pour la masse effective des trous A dans la direction du confinement. Cette masse intervient dans le désordre comme nous allons le voir dans la section suivante.

Pour les électrons de la bande de conduction du GaN, la relation de dispersion $E_c(\mathbf{k})$ peut être considérée comme isotrope avec une bonne approximation. En conséquence, nous prendrons $m_e^{\perp} = m_e^z = 0,2 m_0$.



3.4.1.4 Désordres gaussiens

Le désordre est pris en compte en supposant que l'énergie bande à bande, E_0 , de la transition $E_1 \rightarrow H_{1,A}$ suit une loi de désordre gaussien. Le schéma de la figure 3.18 donne une représentation de ce désordre dont la fonction de distribution $p(E_0)$ est une gaussienne d'écart type σ_{E_0} , qui correspond à l'élargissement inhomogène des spectres expérimentaux. Si le niveau de remplissage des états se situe bien au dessus du niveau du désordre, $E_f \gg \sigma_{E_0}$, il est légitime de considérer que les quasi niveaux de Fermi sont les paramètres pertinents pour décrire l'occupation d'un état désordonné dont l'énergie, $E_{0,i}$, correspond à une réalisation de la variable aléatoire E_0 selon la densité de probabilité $p(E_0)$.

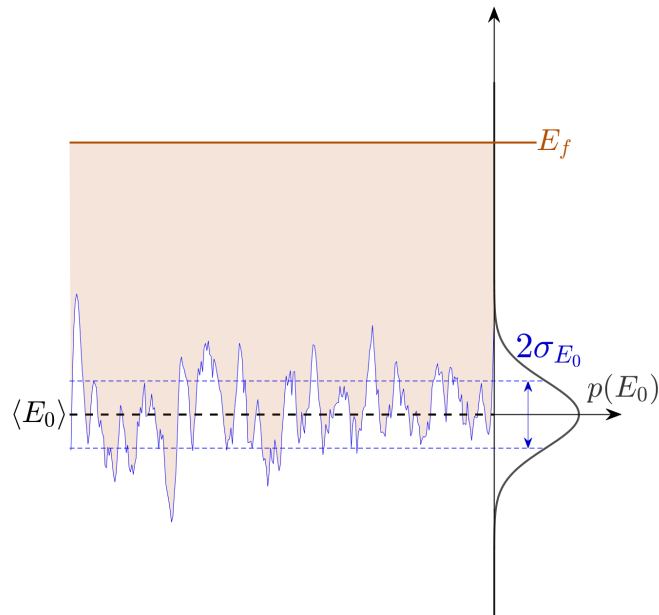


FIGURE 3.18 – Illustration du désordre gaussien : l'énergie E_0 est une variable aléatoire gaussienne, de valeur moyenne $\langle E_0 \rangle$ et d'écart type σ_{E_0} . Le remplissage des états au dessus du bas de bande est décrit par l'écart entre les quasi-niveaux de Fermi d'électrons et de trous $\Delta E_F = E_{F_e} - E_{F_h}$.

Pour déduire les quasi niveaux de Fermi à partir des densités de porteurs il est nécessaire de connaître les désordres de chaque bande, conduction et valence. Ces désordres sont modélisés par les variables aléatoires, respectivement notées E_{0c} et E_{0v} , gaussiennes d'écart type σ_c et σ_v . En supposant un désordre d'épaisseur des puits, induisant une dispersion de l'énergie de confinement quantique des porteurs e et h , il est légitime de supposer que le désordre en énergie se répartisse de manière inversement

proportionnelle à la masse effective dans la direction du confinement (direction z), ainsi :

$$\frac{\sigma_c}{\sigma_v} = \frac{m_v^z}{m_c^z}. \quad (3.58)$$

De plus, les variables aléatoires E_{0c} et E_{0v} ne sont pas indépendantes : on suppose qu'une cause de désordre sur le trou aura également une influence proportionnelle sur l'électron. Ce qui implique une simple relation d'additivité entre les écarts-types

$$\sigma_{E_0} = \sigma_c + \sigma_v. \quad (3.59)$$

Dans ces conditions, les désordres des bandes c et v s'expriment linéairement en fonction du désordre σ_{E_0} de la transition $E_1 \rightarrow H_{1,A}$:

$$\sigma_c = \frac{m_v^z}{m_v^z + m_c^z} \sigma_{E_0} \quad (3.60)$$

$$\sigma_v = \frac{m_c^z}{m_v^z + m_c^z} \sigma_{E_0}. \quad (3.61)$$

3.4.1.5 Quasi niveaux de Fermi avec désordre

Les quasi niveaux de Fermi d'électrons et de trous se déduisent de la condition de normalisation du nombre de particules. Supposons que la densité surfacique de paires électron-trou, n_{e-h} , soit connue, nous avons la relation suivante :

$$n_{e-h} = \int_{-\infty}^{\infty} dE D_c^{2D}(E) f_{FD}(E, E_{Fe}, T) \quad (3.62)$$

où

- $f_{FD}(E, E_{Fe}, T)$ est la fonction de distribution de Fermi Dirac

$$f_{FD}(E, T, E_{Fe}) = \left\{ \exp\left(\frac{E - E_{Fe}}{k_B T}\right) + 1 \right\}^{-1} \quad (3.63)$$

- $\widetilde{D}_c^{2D}(E)$ est la densité d'états bidimensionnelle de la bande c en présence du désordre gaussien donnée par :

$$\widetilde{D}_c^{2D}(E) = \frac{m_c^\perp}{\pi \hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dE_{0c,i} p(E_{0c,i}) \mathcal{H}(E - E_{0c,i}) = \frac{m_c^\perp}{\pi \hbar^2} \frac{1}{2} \left(\operatorname{erf}\left(\frac{E - \langle E_{0c} \rangle}{\sqrt{2} \sigma_c}\right) + 1 \right) \quad (3.64)$$



où $p(E_{0c,i})$ est la loi normale de moyenne $\langle E_{0c} \rangle$ et d'écart type σ_c

$$p(E_{0c,i}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_c} \exp\left(-\frac{E_{0c,i}^2}{2\sigma_c^2}\right) \quad (3.65)$$

et erf est fonction erreur définie par :

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x dt e^{-t^2}. \quad (3.66)$$

En pratique, il est possible d'inverser numériquement la relation $n_{eh} = n_e(E_{Fe})$ et ainsi de déterminer le niveau de Fermi électronique E_{Fe} pour chaque valeur de la densité de paires n_{e-h} à l'aide du code Matlab suivant :

```

1 % distribution de Fermi Dirac
2 fFD=@(E,EF,T) 1./ ( exp((E-EF)*qe0/(kB*T)) +1);
3 % DOS électronique
4 rhoe=@(E) qe0*mcperp/(pi*hbar^2)*( erf((E-E0)/...
5     (sqrt(2)*sigmac)) +1)/2;
6 %densite totale avec E en electron Volts
7 nTotale=@(EFe) integral( @(E) rhoe(E).*fFD(E,EFe,T) ,...
8     E0-5*sigmac,E0+0.2);
9 % Determine le niveau de Fermi correspondant a n(EFe)=neh
10 EFe=fzero(@(x) nTotale(x)-neh,10e-3); %valeur initiale=10meV
    
```

Les variables E_{Fe} , sigmac , neh désignent respectivement, le quasi niveau de Fermi électronique, le désordre de la bande c et la densité de paires électron-trou.

Des relations analogues lient le quasi niveau de Fermi de trou et la densité de paires électron-trou.

3.4.1.6 Prise en compte du désordre dans le spectre d'émission spontanée

L'idée générale permettant la prise en compte du désordre est de considérer que chaque réalisation $E_{0,i}$ de la variable aléatoire E_0 modélisant le désordre contribue, avec son poids $p(E_{0,i})$, au spectre d'émission spontanée : c'est l'hypothèse de l'**élargissement inhomogène** de la raie. On effectue donc une sommation de chacune de ces contributions élémentaires pour élaborer le spectre d'émission spontanée.

Chacune de ces contributions élémentaires, $R_{\text{spon},i}$ se calcule à partir de la relation 3.41 où chacun des termes est relatif à la transition, non plus E_0 mais $E_{0,i}$

$$R_{\text{spon},i} = D_{cv,i}^{2D}(\hbar\omega) f_{c,i}(\hbar\omega) (1 - f_{v,A,i}(\hbar\omega)). \quad (3.67)$$

Prendre en compte la réalisation $E_{0,i}$ du désordre revient, pour la densité d'états joints,



à une simple translation dans l'espace des énergies, soit

$$D_{cv,i}^{2D}(\hbar\omega) = \frac{\mu_{\perp}}{\pi\hbar^2} \mathcal{H}(\hbar\omega - E_{0,i}). \quad (3.68)$$

Le désordre modifie également les expressions des taux de remplissage f_c et f_v dont les nouvelles expressions,

$$f_{c,i}(\hbar\omega) = \left\{ \exp \left(\frac{\frac{m_v^{\perp}}{m_v^{\perp} + m_c^{\perp}} (\hbar\omega - E_{0,i}) + E_0 - \left(E_{Fe} - \frac{m_v^z}{m_v^z + m_c^z} (E_{0,i} - \langle E_{0,i} \rangle) \right)}{k_B T} \right) + 1 \right\}^{-1} \quad (3.69)$$

$$f_{v,i}(\hbar\omega) = \left\{ \exp \left(\frac{-\frac{m_c^{\perp}}{m_v^{\perp} + m_c^{\perp}} (\hbar\omega - E_{0,i}) - \left(E_{Fh} + \frac{m_c^z}{m_v^z + m_c^z} (E_{0,i} - \langle E_{0,i} \rangle) \right)}{k_B T} \right) + 1 \right\}^{-1} \quad (3.70)$$

tiennent compte du fait que :

- l'énergie de la transition n'est plus E_0 mais $E_{0,i}$
- le niveau de Fermi des électrons a sa capacité de remplissage des états décalée d'une valeur

$$(E_{0,i} - \langle E_{0,i} \rangle) \frac{m_v^z}{m_v^z + m_c^z}$$

- le niveau de Fermi des trous a sa capacité de remplissage des états décalée d'une valeur

$$-(E_{0,i} - \langle E_{0,i} \rangle) \frac{m_c^z}{m_v^z + m_c^z}.$$

3.4.1.7 Estimation du terme de gain

Le gain correspond au bilan net d'émission stimulée (voir [92] p. 315), obtenu en comptant :

- positivement l'émission stimulée, proportionnelle au produit du taux d'occupation de la bande c par le *taux de vacance* de la bande v

$$f_c(\hbar\omega)(1 - f_v(\hbar\omega)) \quad (3.71)$$

- négativement l'absorption, proportionnelle au produit du taux d'occupation de la



bande v par le *taux de vacance* de la bande c

$$f_v(\hbar\omega)(1 - f_c(\hbar\omega)). \quad (3.72)$$

Le terme de gain est donc proportionnel à la différence

$$f_c(\hbar\omega)(1 - f_v(\hbar\omega)) - f_v(\hbar\omega)(1 - f_c(\hbar\omega)) = f_c(\hbar\omega) - f_v(\hbar\omega). \quad (3.73)$$

Chacun de ces termes est sommé pour tenir compte de toutes les contributions du désordre, tel qu'illustré dans l'algorithme suivant.

```

1 GAMMA(E)=0
2 RSPON(E)=0
3 POUR TOUTES LES REALISATIONS E0i % E0 est leur moyenne
4 % Calcul de fc(E)
5   fc(E)=(exp((mvperp/(mvperp+mcperp)*(E-E0i)
6     -(Efe-(E0i-E0)*mvz/(mvz+mcz)))/(Kb*T))+1)^(-1)
7 % Calcul de fv(E)
8   fv(E)=...
9   RSPON(E)+=POIDS(E0i)*fc(E)*(1-fv(E))*Heaviside(E-E0i);
10  GAMMA(E)+=POIDS(E0i)*(fc(E)-fv(E))*Heaviside(E-E0i);

```

Les variables E_{0i} , $mvperp$, $mcperp$, mvz , mcz désignent respectivement, la réalisation du désordre $E_{0,i}$ de poids $POIDS(E_{0i})$, les masses effectives dans la bande de valence et de conduction, pour les directions perpendiculaires (**perp**) ou parallèles (**z**) à l'axe z . Cette contribution nette entre absorption et émission stimulée dans lequel n'est pas prise en compte la force d'oscillateur de la transition sera désignée par « gain relatif » et noté $G^0(\hbar\omega)$. Il s'agit ainsi d'un nombre sans dimension compris entre -1 et 1.

3.4.1.8 Implémentation numérique

A l'aide des éléments précédemment décrits, on élabore de façon numérique le spectre modèle d'émission spontanée en fonction des paramètres suivants :

1. n , densité surfacique de porteurs [cm^{-2}];
2. T_{car} , température des porteurs;
3. E_0 , énergie moyenne de la transition;
4. σ_{E_0} , désordre gaussien de la transition E_0 .

La fonction ci-dessous effectue le calcul de l'intensité de photoluminescence pour chaque énergie des photons de la liste **EiList** :

```

1 function [Rspn Gamma EFe EFh]=RspnSpec(Ei,n,T,E0,sigmaE0)

```



Elle renvoie également le gain net relatif $\Gamma = G^0(\hbar\omega)$ (cf paragraphe précédent) ainsi que les quasi niveaux de Fermi E_{Fe} et E_{Fh} .

Le modèle que nous venons de décrire permet de prédire l'allure de raies de luminescence pour une température et une densité d'excitons données. Les courbes donnant l'évolution de l'allure des raies en fonction de la densité de porteurs sont tracées dans l'annexe C. On y trouve également la comparaison de ces modèles avec une situation expérimentale concrète : cette comparaison nous permet de valider ce modèle qui sera utilisé au chapitre 4 pour estimer la densité et la température du fluide d'excitons piégés.



3.5 Corrélations X-X répulsives et estimation du blueshift

Nous présentons dans cette section la méthode utilisée pour relier, d'une part, la densité particulaire n et, d'autre part, le déplacement énergétique « blueshift » (BS), E_{int} , résultant des interactions répulsives entre les bosons composites dipolaires. Cette problématique est encore un sujet débattu. Schématiquement, les excitons se comportent comme des dipôles électrostatiques alignés dans la direction de croissance z et dont l'interaction de paires évolue, à grande distance, en $1/r^3$.

3.5.1 Modèle capacitif

Commençons par rappeler l'approche la plus simple : elle consiste à supposer que le système de paires de charges en interaction, pour lequel le potentiel interparticulaire répulsif est

$$U_{dd}(r) = \frac{2e^2}{4\pi\epsilon} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\sqrt{r^2 + d^2}} \right), \quad (3.74)$$

se comporte comme un condensateur plan dont les charges de signes opposés sont uniformément réparties sur deux plans perpendiculaires à la direction z et distants de d . Ce cas limite fournit une relation linéaire entre le décalage énergétique E_{int} et la densité particulaire, n :

$$E_{\text{int}}^{\text{capa}} = \int n U_{dd}(r) d\mathbf{r} = n \int_{r \rightarrow 0^+}^{\infty} \frac{2e^2}{4\pi\epsilon} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\sqrt{d^2 + r^2}} \right) 2\pi r dr = u_0 n \quad (3.75)$$

avec $u_0 = e^2 d / \epsilon$. La somme de ce termes $E_{\text{int}}^{\text{capa}}$ sur toutes les particules est l'énergie, E_{capa} de constitution du condensateur plan de surface S de charge totale Q et de capacité $C = \epsilon S / d$

$$E_{\text{capa}} = \frac{1}{2} S u_0 n^2 = \frac{Q^2}{2C} \quad (3.76)$$

où la densité surfacique des paires de charges est $n = Q / (eS)$, le facteur $1/2$ évite de compter deux fois l'énergie d'interaction. Une prise en compte plus fine des interactions répulsives entre particules a été proposée par LAIKHTMAN et RAPAPORT [53, 52] sur la base d'une statistique Boltzmannienne, dite « sans écrantage » (*ns, not-screened*). Elle conduit à

$$E_{\text{int}}^{\text{ns}} = n \frac{e^2 d}{\epsilon} f_E \left(\frac{dk_B T}{4\pi\epsilon e^2} \right) \quad (3.77)$$



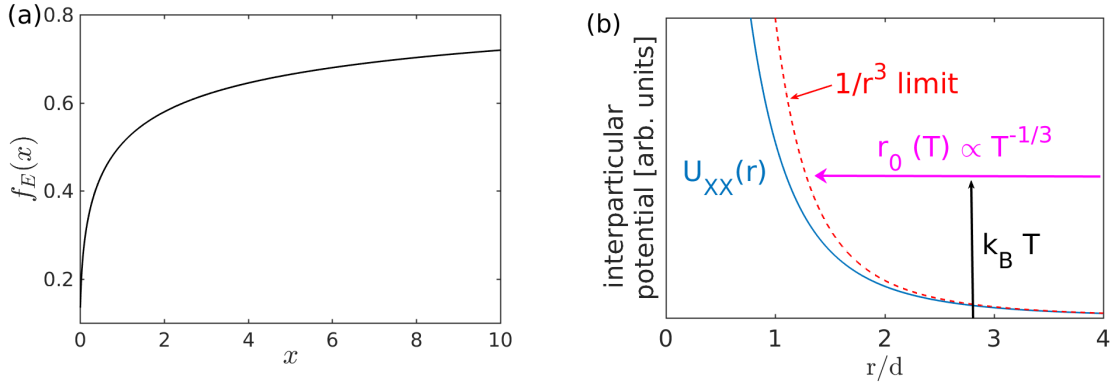


FIGURE 3.19 – (a) Évolution de la fonction $f_E(x)$, obtenue d’après [52]; (b) Potentiel répulsif interparticulaire $U_{XX}(r)$ et distance minimale d’approche $r_0(T)$. La distance minimale d’approche représente une limite « faible densité » de la relation 3.77.

où $f_E(x)$ est tracée sur la figure 3.19a. La relation 3.77 n’est toutefois valable que dans la limite où la distance moyenne entre deux particule, $\Lambda = n^{-1/2}$, demeure faible devant le rayon d’exclusion classique, $r_0(T)$, qui est la distance minimale d’approche d’une particule voisine possédant une énergie cinétique $k_B T$ (voir figure 3.19b et § 1.3.3) :

$$r_0(T) \sim \left(\frac{e^2 d^2}{4\pi\epsilon} \right)^{1/3} (k_B T)^{-1/3}. \quad (3.78)$$

En effet, dans le cas de fortes densités particulières, il devient nécessaire de tenir compte des corrélations entre particules qui revient à dire que le rayon minimal d’approche, $r_0(T, n)$, diminue lorsque la densité de particule augmente. C’est un problème complexe qui demande à prendre en compte l’interaction entre les diverses paires de charges. Déterminer l’influence moyenne de ces interactions sur une particule conduit à l’équation d’Ornstein–Zernike [131]. Ce problème n’a en général pas de solutions explicites sans hypothèses simplificatrices. Nous donnons ci-après les hypothèses retenues et le calcul qui conduit à la relation $E_{\text{int}} = f(n, T)$ utilisée pour notre étude.

3.5.2 Équilibre local du gaz d’excitons corrélés

L’énergie d’un exciton dans le champ de ses voisins s’obtient par la sommation

$$E_{\text{int}}^{\text{corr}} = \int n_\ell(r, T, n) U(r) dr \quad (3.79)$$

où $n_\ell(r, T, n)$ est la densité locale d’excitons, à une distance r d’un exciton, en équilibre à la température T et pour une densité globale n . D’après [132], cette grandeur locale



est donnée par l'équation

$$1 - e^{-T_0(r)/T} = \left(1 - e^{-T_0^{(0)}/T}\right) e^{-(U(r)+u_0n_\ell-u_0n)/(k_B T)} \quad (3.80)$$

où :

- $k_B T_0(r) = \pi \hbar^2 n_\ell(r)/(2M_X)$, représente la densité locale, $n_\ell(r)$ exprimée en unité énergétique de potentiel chimique ;
- $k_B T_0^{(0)} = \pi \hbar^2 n/(2M_X)$, représente la densité globale, n , exprimée en unité énergétique de potentiel chimique ;
- $U(r)$ est le potentiel d'interaction exciton-exciton. Selon le modèle choisi, il est possible de prendre

$$U(r) = U_{dd}(r) = \frac{2e^2}{4\pi\epsilon} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\sqrt{d^2 + r^2}} \right)$$

ce qui correspond à un modèle « charges ponctuelles » de l'interaction dipôle-dipôle, la distance d étant la distance séparant les plans de charges opposées. On remarque qu'à la limite $r \rightarrow \infty$, le potentiel est dipolaire, $U(r) \propto r^{-3}$:

$$U(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \frac{d^2}{r^3} \quad (3.81)$$

- $u_0 = e^2 d/\epsilon$ où $u_0 n$ est l'énergie d'interaction par particule dans la limite d'une densité uniforme, n . Ce terme correspond à une correction de type « champ moyen ».

Les paragraphes suivants établissent la relation 3.80 donnant la densité locale $n_\ell(r, T, n)$ en précisant les hypothèses retenues.

3.5.3 Hypothèses

Les excitons sont considérés comme un gaz de particules bosoniques, ayant une masse M_X , en équilibre à la température T et possédant un potentiel chimique μ_X . Les excitons situés à la plus proche distance r sont dans un *paysage énergétique* dont le « fond », $E_0(r)$, dépend de l'environnement local selon deux contributions :

$$E_0(r) = U(r) + u_0 n_\ell(r) \quad (3.82)$$

- la première contribution énergétique, $U(r)$, tient compte du plus proche voisin, situé à la distance r ,
- la seconde contribution énergétique, $u_0 n_\ell(r)$, tient compte de la correction résultant de la présence des nombreuses charges à la distance r . Pour cette correction, on



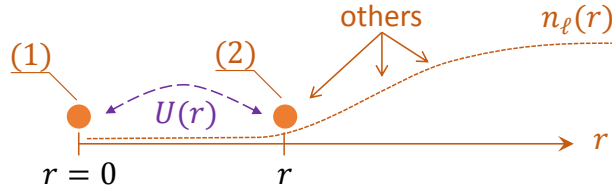


FIGURE 3.20 – Schéma illustrant la prise en compte des corrélations : pour évaluer la densité locale des excitons de type (2) à proximité de l'exciton (1) en $r = 0$, on tient compte de l'interaction de (2), non seulement avec (1) mais aussi avec « tous les autres » excitons évoluant dans le champ de (1) et dont la densité locale est $n_\ell(r)$.

utilise une correction de champ moyen en multipliant simplement la densité locale par la constante de champ moyen, u_0 .

Le schéma de la figure 3.20 représente les termes pris en compte dans le calcul des corrélations : on envisage les interactions d'un exciton de type (2), situé à la distance r de l'exciton (1) servant de référence, avec l'ensemble de ses voisins. Le calcul des interactions de cet exciton (2) se fait en considérant, d'une part, l'exciton (1) via le terme $U(r)$ et, d'autre part, « tous les autres » selon le terme de champ moyen $u_0 n_\ell(r)$. Cette simplification correspond à une troncature dans la hiérarchie des corrélations entre particules.

3.5.4 Densité d'états bidimensionnelle de bosons et potentiel chimique

A l'équilibre thermodynamique, potentiel chimique et densité locale du gaz de bosons sont liés par la règle de remplissage décrite par la statistique de Bose-Einstein

$$n_\ell(r, T, \mu, n) = \int_{E=-\infty}^{\infty} dE \frac{\rho(E)}{\exp\left(\frac{E-\mu_X}{k_B T}\right) - 1} \quad (3.83)$$

où $\rho(E)$ est la densité d'états en énergie du gaz bidimensionnel de bosons dans le paysage énergétique local

$$\rho(E) = g_{\text{spin}} \frac{M_X}{2\pi\hbar^2} \mathcal{H}(E - E_0(r)) \quad (3.84)$$

où la dégénérescence de spin, g_{spin} , vaut $g_{\text{spin}} = 4$ pour les excitons, bosons composites constitués de deux fermions. La densité locale vaut donc :

$$n_\ell(r, T, \mu_X, n) = -\frac{2M_X k_B T}{\pi\hbar^2} \ln\left(1 - e^{\frac{\mu_X - E_0(r)}{k_B T}}\right). \quad (3.85)$$



Le potentiel chimique des bosons s'en déduit alors sous forme explicite

$$\mu_X = E_0(r) + k_B T \ln(1 - e^{-T_0(r)/T}) \quad (3.86)$$

où l'on a introduit la grandeur $T_0(r)$ telle que $k_B T_0(r) = \pi \hbar^2 n_\ell(r)/(2M_X)$.

3.5.5 Potentiel chimique et profil de densité locale

Tout comme pour la température que nous supposons être un paramètre thermodynamique uniforme et pertinent pour décrire l'équilibre des excitons en interaction, le potentiel chimique est une grandeur que nous supposons adaptée pour décrire l'équilibre des excitons dans l'environnement énergétique « à une distance r » d'un autre exciton. En conséquence, l'équation 3.86 doit être vérifiée quelle que soit la distance r , et en particulier dans la limite $r \rightarrow \infty$ pour laquelle $E_0(r) \rightarrow u_0 n$. Cette remarque conduit à l'égalité suivante :

$$\forall r > 0, \mu_X = E_0(r) + k_B T \ln(1 - e^{-T_0(r)/T}) = u_0 n + k_B T \ln(1 - e^{-T_0^0/T}) \quad (3.87)$$

où $T_0^0 = T_0(r \rightarrow \infty)$ est telle que $k_B T_0^0 = \pi \hbar^2 n/(2M_X)$.

L'équation 3.87 conduit alors à la relation recherchée :

$$1 - e^{-T_0(r)/T} = \left(1 - e^{-T_0^0/T}\right) e^{-(U(r)+u_0(n_\ell-n))/(k_B T)}. \quad (3.88)$$

3.5.6 Dépendance de l'énergie d'interaction avec la densité à température fixée

La mise en œuvre numérique de l'équation 3.88 permet d'évaluer la densité locale $n_\ell(r, T, \mu_X, n)$ et la fonction de corrélation de paires

$$g(r) = \frac{n_\ell(r, T, n)}{n} \quad (3.89)$$

qui représente la probabilité, par rapport à celle d'un gaz idéal, de trouver une particule à la distance r d'une particule quelconque. La figure 3.21 donne son évolution radiale pour un système en équilibre à la température $T = 4\text{K}$. Le calcul est effectué pour des valeurs de densité globale augmentant régulièrement. On vérifie ainsi que la prise en compte des corrélations a pour effet de réduire la distance minimale d'approche entre deux particules : les interactions répulsives entre particules tendent à « peupler le voisinage $r < r_0(T)$ » sous la pression imposée par la densité n . La conséquence de ces corrélations sur l'énergie d'interaction $E_{\text{int}}(n, T)$ est illustrée sur la figure 3.22, pour $T = 4\text{K}$. Pour comparer les différents modèles, on introduit le facteur de correction



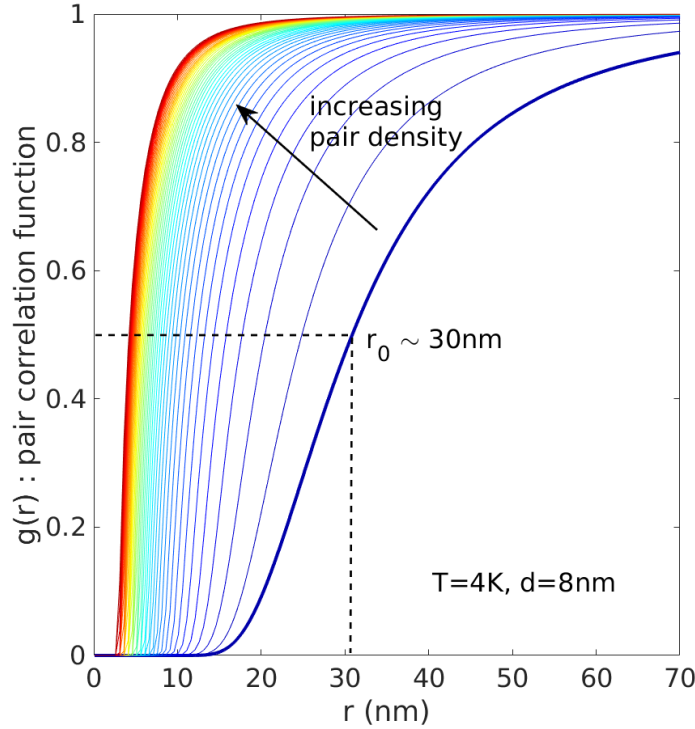


FIGURE 3.21 – Fonctions de corrélation de paires calculées pour différentes valeurs de la densité particulaire, n , augmentant par pas de $1,6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ jusqu'à $7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. La température est de 4 K . On note que la forme de la courbe devient plus abrupte à mesure que le rayon d'exclusion r_0 diminue de $\sim 30 \text{ nm}$ à faible densité jusqu'à la valeur $r_0(n)$ telle que $U(r_0(n)) \sim u_0 n$ à haute densité.

$f(n, T)$ (fig. 3.22b) défini comme le rapport de l'énergie d'interaction à la valeur obtenue par le modèle du condensateur plan

$$f(n, T) = \frac{E_{\text{int}}}{u_0 n}. \quad (3.90)$$

On constate que, si le modèle du condensateur plan (pointillés noirs) *surestime* l'énergie d'interaction, le modèle avec rayon d'exclusion et sans écrantage (trait bleu), au contraire, *sous-estime* cette énergie. Le résultat du calcul prenant en compte les corrélations et l'écrantage est représenté par les courbes en tirets rouges (fig. 3.22). Ce calcul est basé sur la correction de champ moyen $u_0 n_\ell(r)$ décrite au paragraphe précédent 3.5.3). Il est possible d'itérer la prise en compte des corrélations en utilisant pour la correction de champ moyen la nouvelle expression de l'énergie d'interaction $E_{\text{int}}(n_\ell(r), T)$. Le résultat de cette **approche adaptative** est représentée sur les courbes 3.22. Il est satisfaisant de constater que, dans la gamme de densités considérée ($n < 7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$), cette nouvelle correction à l'énergie d'interaction demeure faible. En conclusion, pour les puits étudiés à $T = 4 \text{ K}$ et possédant une distance de séparation



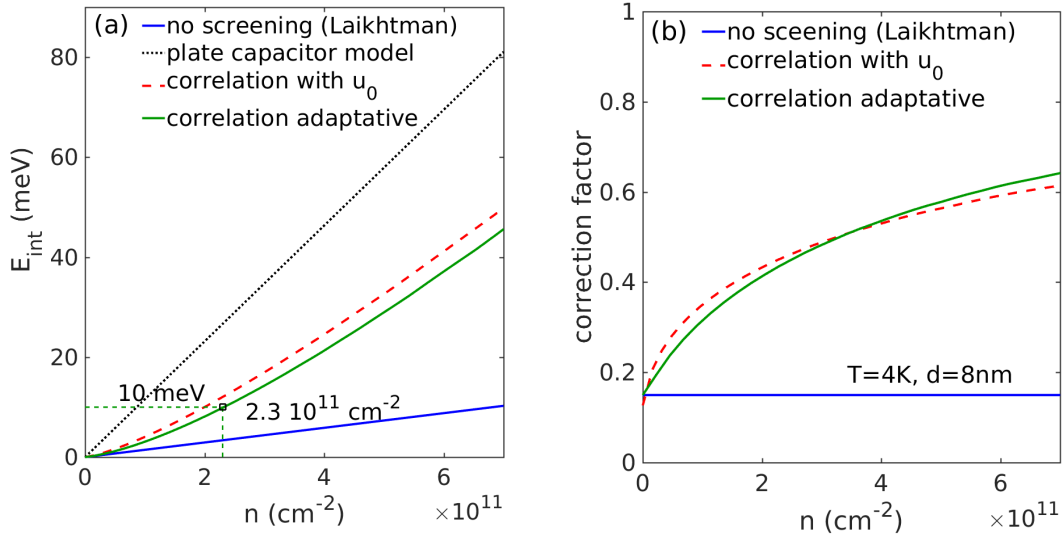


FIGURE 3.22 – (a) évolution de l'énergie d'interaction en fonction de la densité particulaire, pour $T = 4\text{K}$. (b) évolution du facteur de correction, $f(n, T)$, en fonction de la densité. La courbe en pointillés noirs correspond au modèle du condensateur plan, $E_{\text{int}}^{\text{capa}}$; la courbe en trait bleu au calcul avec rayon d'exclusion, sans écrantage, $E_{\text{int}}^{\text{ns}}$; la courbe en tirets rouges est obtenue en utilisant les corrélations, $E_{\text{int}}^{\text{corr}}$; la courbe en trait vert est obtenue par la méthode adaptative décrite dans ce paragraphe.

des charges $d \sim 8 \text{ nm}$:

- un *blueshift* de 10 meV correspond à une densité de l'ordre de $2,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$;
- l'utilisation du modèle du condensateur plan pour l'estimation de la densité particulaire à partir du *blueshift* conduit à **sous-estimer la densité** d'un facteur variant de 2 à 5 selon la gamme de *blueshift* considérée;
- l'erreur faite avec la méthode d'estimation de la densité basée sur le champ moyen est probablement inférieure à 50%, voire même à 20%.

3.5.7 Discussion et perspectives

Dans le paragraphe 3.5, nous avons montré que la prise en compte des corrélations entre particules était nécessaire pour relier correctement le décalage énergétique à la densité de paires photocréées. Toutefois, le modèle Poisson-Schrödinger décrit au paragraphe 3.2.3 s'appuie sur l'équation 3.13 : on a donc fait implicitement l'hypothèse que la modification des potentiels électrostatiques $V_e(z)$ et $V_h(z)$ découlait d'une simple action dans la direction z , la répartition des charges dans le plan (xy) y étant uniforme. La prise en compte des corrélations entre particules apporterait une estimation plus fine du décalage énergétique et de l'évolution de l'intensité de photoluminescence avec la densité de porteurs et l'énergie de la transition. Prendre en compte la *non-uniformité de la répartition des charges dans le plan* peut se faire à l'aide des fonctions de corrélation

de paires obtenues numériquement (cf équation 3.89). Pour établir de nouvelles fonctions $V_e(z)$ et $V_h(z)$ plus réalistes, il faudrait donc intégrer l'équation de Poisson dans le plan (xy) en tenant compte de l'invariance par symétrie cylindrique de révolution (ρ, z) qui apporte une évidente simplification.

Enfin, le caractère unidimensionnel de l'équation de Schrödinger peut également être discuté. Dans l'environnement électrostatique moyen créé par les autres charges, le potentiel électrostatique « vu par une paire électron-trou » en interaction possède évidemment la symétrie de révolution, $V(\rho, z)$. L'approximation qui consiste à négliger la dépendance radiale et à restreindre ce potentiel à une fonction $V(z)$ dépendant uniquement de la variable z est valide dans la limite où l'excursion, $\rho = \rho_e - \rho_h$, des charges dans le plan est faible devant le rayon d'exclusion $r_0(T, n)$ (cf fig. 3.21). En dehors de cette hypothèse, la résolution d'un hamiltonien bidimensionnel semble être une alternative incontournable.



3.6 Thermodynamique de la coexistence entre plasma et excitons

L'exciton est un boson composite formé de deux fermions. Ainsi, l'ionisation de l'exciton résulte de l'équilibre thermodynamique



entre, d'une part, la phase plasma dans laquelle les électrons (e) et les trous (h) sont ionisés et se comportent comme des particules *non liées* et, d'autre part, la phase excitonique dans laquelle les électrons et les trous s'apparient pour former des particules de type hydrogénoïde (X).

3.6.1 Équation de Saha

La proportion entre les paires non liées ($e - h$), de densité n_{eh} , et les paires liées (X), de densité n_X peut être décrite par une équation du « type Saha » [133, 134]

$$\frac{(n_{eh} + n_0)n_{eh}}{n_X} = \frac{\mu^\perp k_B T}{2\pi\hbar^2} \frac{1}{\exp(E_B/k_B T) - 1} \quad (3.92)$$

où n_0 est la concentration de porteurs libres excédentaires² (électrons apportés par le dopage résiduel du puits), E_B l'énergie de l'exciton et T la température de l'équilibre. L'équation 3.92 peut s'établir en comparant les taux d'occupation d'un état \vec{K} (vecteur d'onde du centre de masse du système {électron+trou}) correspondant à la fois à celui du système électron-trou non lié, et à celui d'un exciton (voir figure 3.23). L'état \vec{K} , lorsqu'il est occupé par la paire électron-trou non liée est beaucoup plus dégénéré que lorsqu'il est occupé par l'exciton. En raison de cette *dégénérescence géante*, même s'il est énergétiquement défavorable, $E_B > k_B T$, le taux d'occupation de l'état ionisé est beaucoup plus élevé que ce que le facteur Boltzmannien, $\exp(-E_B/k_B T)$, ne le laisserait supposer.

L'annexe D établit la relation 3.92 en s'appuyant sur les statistiques quantiques impliquant les potentiels chimiques μ_X , E_{Fe} et E_{Fh} pour l'exciton, l'électron et le trou respectivement. Cette démarche se base notamment sur l'égalité

$$\mu_X = E_{Fe} - E_{Fh} \quad (3.93)$$

qui traduit l'équilibre intime entre les bosons composites et les particules fermioniques

2. Pour préciser : $n_e = n_{eh} + n_0$ est la densité d'électrons libres et $n_h = n_{eh}$ est la densité de trous libres.



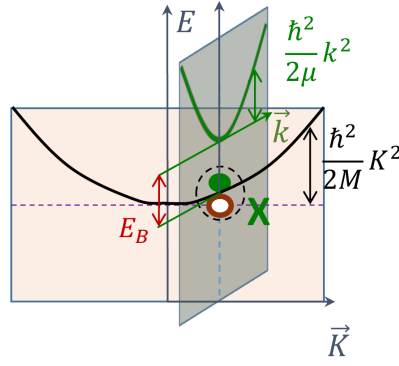


FIGURE 3.23 – Schéma des relations de dispersion de l'exciton et du système électron-trou non lié. Le vecteur \vec{K} est le vecteur d'onde du centre de masse, le vecteur \vec{k} celui du mouvement relatif dans le référentiel du centre de masse (cf annexe A). L'utilisation des coordonnées du centre de masse permet de visualiser sur une même représentation les relations de dispersion de l'exciton et du système électron-trou non lié. Les courbures des diagrammes $E(\vec{K})$ et $E(\vec{k})$ sont proportionnelles, respectivement, à $1/M_X = 1/(m_e + m_h)$ et $1/\mu_X = 1/m_e + 1/m_h$ pour l'exciton et le système électron-trou non lié dans le référentiel du centre de masse.

qui les composent (cf éq. D.8).

3.6.2 Taux d'ionisation et dissociation entropique

En supposant négligeable la quantité n_0 devant n_{eh} , on reformule l'équation 3.92 en introduisant le taux d'ionisation $r = n_{eh}/(n_{eh} + n_X)$ et la densité totale de paires $n = n_{eh} + n_X$, on obtient

$$\frac{r^2}{1-r} = f(T, E_B, n) \quad (3.94)$$

avec $f(T, E_B, n)$ une fonction qui, à T et E_B fixés, varie comme $1/n$. Comme la fonction $r \rightarrow r^2/(1-r)$ est croissante, une augmentation de la densité totale de porteurs engendre une diminution du taux d'ionisation. Réciproquement, la diminution de la densité totale de porteurs s'accompagne de l'ionisation, par effet entropique, des excitons. La figure 3.24 illustre qualitativement de ce phénomène : les états non liés sont entropiquement favorisés car l'espace des états $\{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h\}$ accessibles aux électrons-trous non liés est beaucoup plus vaste que celui des états excitoniques \mathbf{k}_X .

3.6.3 Dépendance de l'énergie de l'exciton avec la densité – transition de Mott

Dans la section 3.3, et sur la figure 3.14, nous avons étudié la dépendance de l'énergie de liaison excitonique avec la densité de particules, en ne tenant compte que



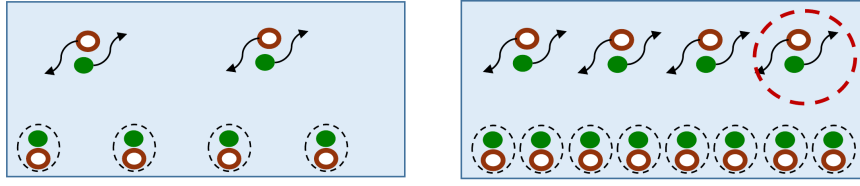


FIGURE 3.24 – Illustration de l'influence de la densité totale sur l'équilibre entre les phases plasma et excitonique. Les excitons sont schématisés par des paires entourées des pointillés noirs. La figure de droite représente une configuration avec une densité totale de paires exactement double de celle de gauche. Dans la configuration de gauche, le taux d'ionisation vaut $2/6 = 33\%$. Dans la configuration de droite, l'espace des états $\{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h\}$ est davantage occupé, ce qui favorise le passage d'une paire non liée (entourée en tirets rouges) vers un état lié. Le **taux d'ionisation décroît donc lorsqu'on augmente la densité totale** de paires – dans l'hypothèse où l'énergie de liaison de l'exciton, E_B , demeure inchangée.

de l'écrantage du champ électrique vertical. Ceci se traduit par une augmentation de l'énergie de liaison excitonique car l'électron et le trou sont de moins en moins plaqués sur les faces opposées du puits quantique à mesure que le champ électrique vertical diminue.

Dans cette section, nous nous intéressons à ce qui se passe dans le plan du puits quantique, avec un mécanisme compétitif dont l'effet est opposé : au fur et à mesure que les charges libres s'accumulent dans le puits quantique, l'interaction coulombienne dans le plan du puits est écrantée, ce qui se traduit par une diminution de l'énergie de liaison excitonique. Ainsi, à mesure que la densité de charges injectées augmente, il est légitime d'imaginer que les interactions :

- des excitons avec le plasma
- éventuellement, des excitons entre eux

puissent contribuer à altérer l'énergie de la liaison excitonique³, dont la valeur en l'absence de charges injectées sera notée E_B^0 .

Deux modèles d'écrantage coulombien La dépendance de l'énergie de l'exciton peut ainsi être modélisée

- comme résultant d'un potentiel de type Yukawa [136, 137, 138]

$$E_B(n) = \begin{cases} E_B^0 \left(1 - \frac{2}{1+(qa_B^0)^{-1/2}} \right) & \text{si } qa_B^0 < 1 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.95)$$

3. En 3D, l'écrantage de l'interaction coulombienne assurant la cohésion de l'édifice excitonique ne modifie que faiblement l'énergie E_B^{3D} de liaison excitonique tant que la densité n_X d'excitons est suffisamment faible : $n_X \leq k_B T / 8\pi (a_B^{3D})^3 E_B^{3D}$ [135], a_B^{3D} étant le rayon de Bohr.

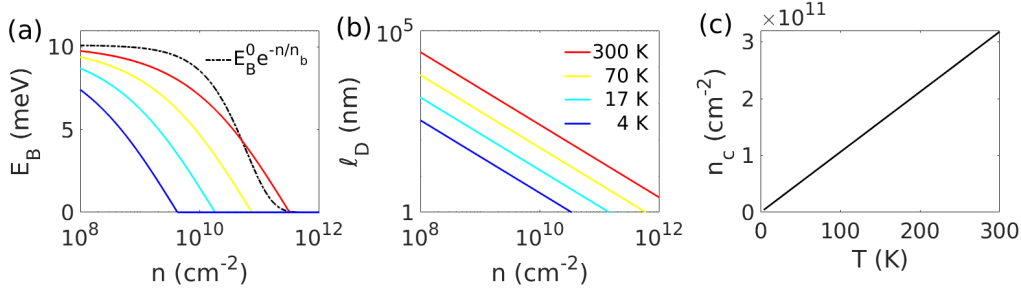


FIGURE 3.25 – Différentes modélisations pour l'énergie de liaison de l'exciton : (a) énergie de liaison E_B en fonction de la densité pour le modèle exponentiel avec $n_b = 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ et $E_B^0 = 10 \text{ meV}$ (tirets noirs) et pour le modèle de type Yukawa pour 4 températures dont le code couleur est celui de la figure b. (b) évolution de la longueur d'écrantage, ℓ_D en fonction de la densité pour les 4 températures (cf légende). (c) évolution de la densité critique, n_c , (modèle de « Yukawa », voir texte) en fonction de la température.

où le vecteur d'onde d'écrantage q est l'inverse de la longueur de Debye bidimensionnelle, ℓ_D :

$$q = 1/\ell_D = \frac{e^2 n}{2\epsilon k_B T} \quad (3.96)$$

et $a_B^0 = e^2/8\pi\epsilon E_B^0$ est le rayon de Bohr de l'exciton non écranté dans le puits quantique ($\sim 10 \text{ nm}$ dans le cas de l'échantillon D704),

- ou bien comme diminuant de manière « exponentielle » avec la densité [139] selon

$$E_B(n) = E_B^0 e^{-n/n_b} \quad (3.97)$$

où n_b est la densité typique d'écrantage de l'énergie de liaison, elle-même reliée à la densité de Mott, n_{Mott} .

Avant d'illustrer plus en détail les différences entre ces deux modèles, rappelons que la diminution de l'énergie de l'exciton avec la densité n'apparaît pas comme un résultat des simulations⁴ décrites dans le paragraphe 3.3.3.

La figure 3.25 met en évidence la différence quantitative entre, d'une part, le modèle de type « Yukawa » et, d'autre part, le modèle « exponentiel » : non seulement le modèle « Yukawa » introduit une dépendance avec la température, mais il suppose également, qu'à basse température, l'énergie de l'exciton est fortement écrantée dès les très basses densités (fig. 3.25a). En effet, d'après ce modèle l'énergie de liaison de l'exciton a chuté de plus de 30% lorsque $n = 10^8 \text{ cm}^{-2}$ à 4 K. Cela est dû au fait

4. Ces simulations ont pour limite le régime de bandes plates (*ie* cas où le champ interne est quasiment intégralement écranté) et ne tiennent pas compte de l'écrantage de l'interaction coulombienne *au sein même de l'exciton*. Il n'est donc pas contradictoire qu'elles ne prédisent pas la diminution de l'énergie de l'exciton avec la densité.



que la longueur d'écrantage, qui vaut $\ell_D \sim 330$ nm dans ces conditions (fig. 3.25b), engendre une diminution d'environ 30% de l'énergie de l'exciton d'après l'équation 3.95. La figure fig. 3.25c représente, en fonction de la température, l'évolution de la densité critique, n_c , telle que $qa_B^0 = 1$ et correspondant au cas de l'exciton totalement écranté selon le modèle « Yukawa » (fig. 3.25c). On constate ainsi que, même à 300 K, ce modèle limite la densité de la transition de Mott à une valeur inférieure à 3×10^{11} cm⁻².

Eu égard à ces résultats, nous délaisserons dans la suite le modèle « Yukawa » : d'une part, la valeur de densité qu'il prédit pour la transition de Mott à 4 K est peu réaliste et, d'autre part, l'écrantage de type « Debye-Hückel » sur lequel s'appuie le modèle accorde à l'énergie thermique un poids qui semble trop important.

Notons qu'à ce stade, il n'a pas encore été précisé quelle était la densité n intervenant dans le terme d'écrantage 3.97. Plutôt que la densité totale de paires, il est légitime d'impliquer les charges libres [137], davantage mobiles et susceptibles d'écranter efficacement le potentiel coulombien de la liaison excitonique.

Ainsi, dans ce qui suit, nous choisirons le modèle d'écrantage exponentiel, et l'énergie de l'exciton sera supposée dépendre de la densité de paires non liées, n_{eh} , selon la relation

$$E_B(n_{eh}) = E_B^0 e^{-n_{eh}/n_b} \quad (3.98)$$

où n_b est le paramètre d'écrantage.

3.6.4 Diagramme de phase : température, densité et hystérésis

Sur la base des hypothèses présentées dans le paragraphe précédent, nous pouvons mettre l'équation 3.94 sous la forme :

$$\frac{r^2}{1-r} - f(r, n, T) = 0 \quad (3.99)$$

où $r = n_{eh}/(n_{eh} + n_X)$ est le taux d'ionisation, n la densité totale de paires, $E_B(n_{eh}) = E_B(rn)$ est donnée par 3.98, et

$$f(n, r, T) = \frac{1}{n} \frac{\mu^\perp k_B T}{2\pi\hbar^2} \frac{1}{\exp(E_B(rn)/k_B T) - 1}. \quad (3.100)$$

Calculer numériquement le taux d'ionisation en fonction de la densité totale de paires, n , à température fixée, revient à rechercher les zéros d'une fonction numérique. Dans notre cas, ces zéros peuvent être multiples comme cela est illustré sur la figure 3.26. Le fait que plusieurs valeurs du taux d'ionisation satisfassent la condition d'équilibre ther-



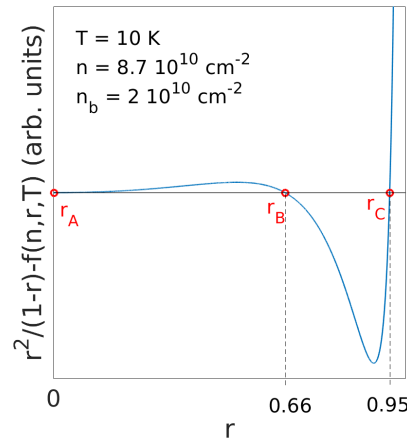


FIGURE 3.26 – Résolution numérique de l'équation de « type » Saha. Le taux d'ionisation, r est donné par les zéros de la fonction à annuler dont le graphe est tracé ci-dessus en fonction de r (lire description dans le texte). Pour une température de 10 K, et une densité totale de paires égale à $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, il existe trois zéros dont les valeurs sont $r_A \approx 0$, $r_B \approx 0,66$ et $r_C \approx 0,95$ (voir également la figure 3.28).

modynamique est à l'origine d'un *phénomène d'hystérésis* discuté ci-après et également prédit par d'autres approches théoriques [14, 140].

La figure 3.27 (encart supérieur) représente l'évolution du taux d'ionisation et de l'énergie de l'exciton (encart inférieur) en fonction de la densité totale de paires injectées pour un jeu de 5 températures. On constate que, pour des densités inférieures à 10^{10} cm^{-2} , le taux d'ionisation augmente lorsque la densité diminue, alors que l'énergie de l'exciton demeure quasiment inchangée : il s'agit du phénomène d'ionisation entropique décrit au paragraphe 3.6.2. A plus forte densité, il y a, au contraire, ionisation du mélange lorsque la densité augmente. Mentionnons que cet effet est pris en compte dans le modèle grâce à l'usage de la fonction de partition de « Planck-Larkin » (voir l'annexe D). La forte densité de charges non liées écrantent donc l'énergie de l'exciton : cela constitue un scénario possible pour la dissociation de Mott [138]. Dans les conditions de nos expériences – température suffisamment basse température ($T < 20 \text{ K}$), et gamme de densité intermédiaire, entre 10^{10} et 10^{11} cm^{-2} – on remarque que le taux d'ionisation est relativement uniforme et ne dépasse pas 10%. On déduit donc de ce modèle que **nos mesures sont réalisées dans un système majoritairement constitué d'excitons.**

Par ailleurs, la figure 3.27 met en évidence une température en dessous de laquelle apparaît le phénomène de « bi-stabilité » (ou *hystérésis*). L'interprétation qualitative de ce phénomène est la suivante. Pour une densité totale de paires donnée, le système peut exister dans deux états physiques distincts :

1. un état « faiblement ionisé » caractérisé par des excitons relativement robustes



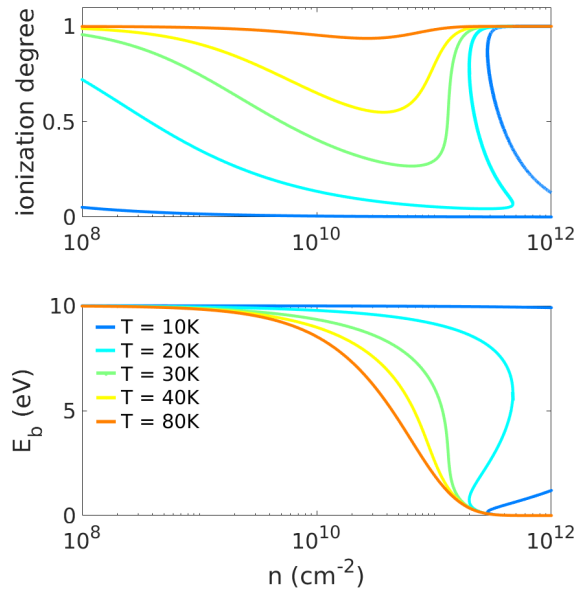


FIGURE 3.27 – Influence de la densité totale de paires sur, d’une part, le taux d’ionisation (encart supérieur) et, d’autre part, l’énergie de liaison de l’exciton dans le mélange à l’équilibre thermodynamique (encart inférieur). Ces résultats sont obtenus en choisissant $E_B^0 = 10$ meV et $n_b = 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

car faiblement écrantés en raison du faible nombre de charges non liées ;

2. un état « fortement ionisé » présentant très peu d’excitons très peu liés en raison du fort écrantage des nombreuses charges non liées.

Cette description qualitative met l’accent sur un point remarqué : **le phénomène d’hystérésis** résulte du fait que **l’écrantage de l’exciton est majoritairement assuré par les porteurs non liés**. Une étude numérique, non présentée, dans laquelle l’écrantage en $E_B(n_{eh})$ est remplacé en $E_B(n)$ corrobore cette affirmation. Parmi les trois valeurs possibles du taux d’ionisation r sur la figure 3.26, seules les valeurs r_A et r_C sont stables (voir également la figure 3.28). Notons que ce phénomène d’hystérésis, s’il est prédit par la théorie, n’est pas nécessairement observable en pratique⁵. L’injection des charges dans le système se faisant par pompe optique, il est légitime de penser que les porteurs diffusent des zones de haute densité vers les zones de faible densité. Le cycle d’hystérésis est donc très probablement, pour ces raisons expérimentales, toujours décrit dans le sens des densités décroissantes : il est ainsi délicat de parvenir à observer expérimentalement ce phénomène d’hystérésis. La figure 3.29 illustre les résultats similaires où seul le paramètre d’écrantage a été augmenté de $n_b = 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ à $n_b = 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Le rôle du paramètre n_b est évidemment de régler le seuil de la dissociation de Mott mais également de favoriser l’hystérésis : à $T = 30$ K, la bistabilité

5. Nous avons réalisé une tentative de mesure de cet hystérésis, non présentée dans ce manuscrit car infructueuse.

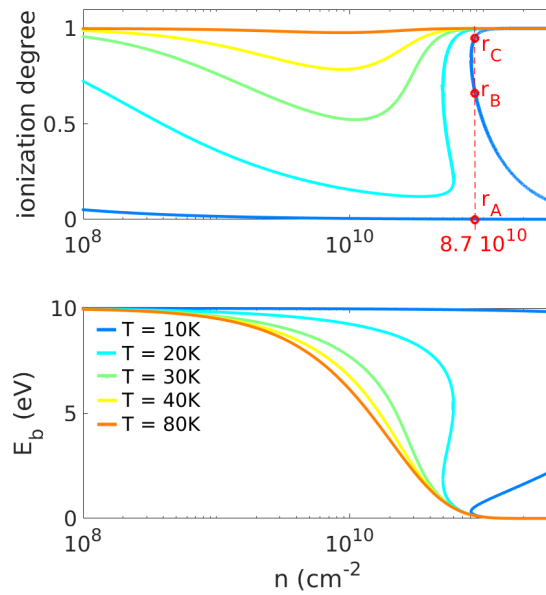


FIGURE 3.28 – Influence de la densité totale de paires sur le taux d’ionisation et l’énergie de liaison (voir figure 3.27). Ces résultats sont obtenus avec une densité n_b de 2×10^{10} cm $^{-2}$, toutes choses égales par ailleurs. L’intersection de la courbe du taux d’ionisation pour $T = 10K$ (encart supérieur) définit les trois valeurs r_A , r_B et r_C , la valeur intermédiaire, r_B , étant instable

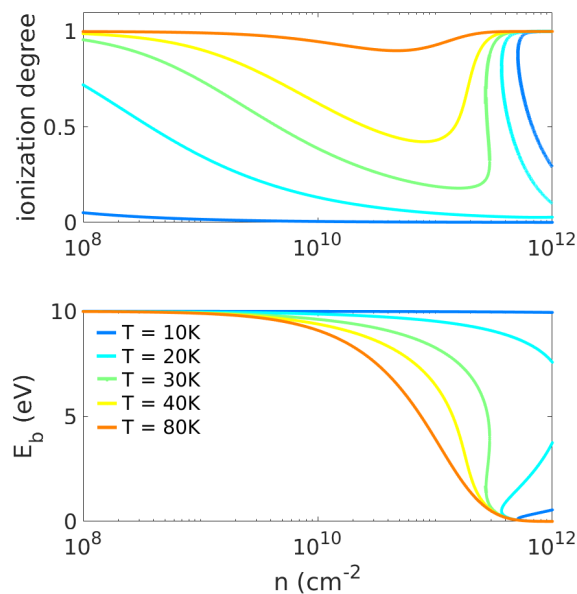


FIGURE 3.29 – Influence de la densité totale de paires sur le taux d’ionisation et l’énergie de liaison (voir figure 3.27). Ces résultats sont obtenus avec une densité n_b augmentée à 10^{11} cm $^{-2}$, toutes choses égales par ailleurs.

n'existe pas lorsque $n_b = 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ (voir fig. 3.27) mais apparaît pour $n_b = 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (fig. 3.29). La figure 3.28, obtenue pour $n_b = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ fait apparaître un exciton moins robuste qui aura davantage de facilité à s'ioniser aux fortes densités. Enfin, notons que la dissociation de Mott s'effectue à une valeur de densité supérieure à la valeur du paramètre n_b ⁶.

3.7 Modèle « drift - diffusion » du transport excitonique

Dans cette section, nous décrivons le modèle mis en œuvre par FEDICHKIN *et al.* [42, 41, 73] pour rendre compte de la propagation des excitons photocréés. L'intérêt de ce modèle est de prédire la répartition spatiale de la densité excitonique, $n_X(x, y)$, pour des conditions limites imposées par la géométrie de confinement et pour des conditions d'excitation données. Nous utiliserons cet outil prédictif pour interpréter les résultats des expériences qui sont présentées dans le chapitre suivant.

L'équation régissant le transport d'excitons indirects dipolaires dans le plan du puits quantique possède la forme suivante [141, 142] :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{J} + G(r) - Rn, \quad (3.101)$$

avec n la densité d'excitons, $G(r) = (N_p/\pi a_0^2) \exp(-r^2/a_0^2)$ le taux de génération spatial, N_p le nombre d'excitons générés par unité de temps et a_0 le rayon du faisceau laser supposé gaussien, R le taux de recombinaison, \mathbf{J} le vecteur densité de courant d'excitons. Le potentiel réalisant le piégeage bidimensionnel étant supposé infini, les conditions limites au niveau des bords du piège sont $\vec{J} \cdot \vec{u}_\perp = 0$, avec \vec{u}_\perp le vecteur unitaire perpendiculaire au bord de piège.

Le courant d'excitons résulte de deux mécanismes distincts, d'une part, la dérive des particules sous l'action de la force motrice (*drift*) et d'autre part, la diffusion des particules (*diffusion*) : $\mathbf{J} = \mathbf{J}_{\text{drift}} + \mathbf{J}_{\text{diff}}$. Le courant de diffusion \mathbf{J}_{diff} a pour expression

$$\mathbf{J}_{\text{diff}} = -D_X \nabla n \quad (3.102)$$

où D_X est le coefficient de diffusion des excitons. Le phénomène de diffusion des excitons – résultant du désordre ou de la présence des porteurs de charges – est décrit en suivant le modèle proposé par RAPAPORT *et al.* [142] et validé expérimentalement sur des échantillons GaN similaires à ceux étudiés dans cette thèse [42]. Ce modèle suppose

6. Voir figure 3.28 sur laquelle, à 10 K, la dissociation se produit pour $n \sim 8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ alors que $n_b = 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.



que le coefficient de diffusion est donné par $D = \ell v_{th}$, avec ℓ la longueur de diffusion, $v_{th} = \sqrt{2k_B T / M_X^\perp}$ la vitesse thermique, et $M_X^\perp = m_e^\perp + m_h^\perp$ la masse totale de l'exciton dans le plan du mouvement. Le terme dérive (*drift*) de l'équation 3.101 peut quant à lui s'écrire

$$\mathbf{J}_{\text{drift}} = -\tilde{\mu}_X n \nabla(\phi_0 n) \quad (3.103)$$

où la mobilité des excitons $\tilde{\mu}_X$ est reliée au coefficient de diffusion D par la relation d'Einstein⁷

$$\tilde{\mu}_X = \frac{D_X}{k_B T}. \quad (3.104)$$

Dans l'équation 3.103, la force de dérive résulte uniquement du caractère répulsif de l'interaction exciton-excitons $\Phi_0 n$. Le taux de recombinaison R s'exprime en fonction des temps de recombinaison radiatif et non-radiatif, τ_{rad} et τ_{nrad} , respectivement :

$$R = 1/\tau_{rad} + 1/\tau_{nrad}. \quad (3.105)$$

La dépendance du temps de recombinaison radiatif avec la densité d'excitons est décrite par la relation

$$\tau_{rad} = \tau_0 \exp(-n/\gamma) \quad (3.106)$$

où $\tau_0 = 10 \mu\text{s}$ est estimé à partir des travaux antérieurs sur des échantillons similaires [42] et γ est déterminé par le procédé de modélisation décrit au paragraphe 3.2.3. Tout comme en [42], nous supposons que $\tau_{nrad} \gg \tau_{rad}$.

Les solutions stationnaires $n(r)$ de l'équation (3.101) peuvent être comparées avec les données expérimentales :

- d'une part, les profils spatiaux de densité obtenus à partir de l'énergie de l'émission, E_X , en supposant $E_X = E_0 + \Phi_0 n$,
- d'autre part, à l'intensité de la photoluminescence $I = nR$.

De telles comparaisons seront présentées au paragraphe 4.4.2 du chapitre 4.

7. Dans cette relation d'Einstein, la charge élémentaire e n'apparaît pas car la mobilité de l'exciton est définie par une relation de proportionnalité entre vitesse et force alors que la mobilité μ_e d'un électron est usuellement définie par une relation de proportionnalité entre vitesse et champ électrique, ce qui conduit à $\mu_e = eD/k_B T$.



Chapitre 4

Piégeage des excitons dipolaires

Dans ce chapitre, le piégeage du fluide d'excitons sera étudié en l'absence de toute polarisation électrique, par des mesures de PL résolues spatialement (microPL). En comparant les résultats obtenus pour ces différentes géométries, nous mettons en évidence l'effet du piégeage des excitons. Nous montrons également que la géométrie « fil », correspondant à un piège linéaire, est, *a priori*, la plus performante pour la réalisation d'un liquide excitonique en équilibre thermodynamique. Ceci constitue le résultat majeur de ce chapitre, publié dans [143].

Sommaire

3.1	Environnement électrostatique du puits quantique dans la barrière métal/semi-conducteur	64
3.1.1	Hétérojonctions, polarisations spontanée et piézo	65
3.1.2	Interface semi-conducteur/vide	67
3.1.3	Interface semi-conducteur/métal	69
3.2	Transition interbande : densité de charges et champ électrique interne	70
3.2.1	Résolution de l'équation de Schrödinger 1D	71
3.2.2	Résolution de l'équation de Poisson 1D	72
3.2.3	Résolution Poisson-Schrödinger couplée	72
3.2.4	Effet de la densité sur la photoluminescence du puits quantique	74
3.2.5	Désordre de monocouche	76
3.3	Calcul autocohérent variationnel de l'énergie de l'exciton	77
3.3.1	Méthode du potentiel effectif	77
3.3.2	Calcul variationnel autocohérent	81
3.3.3	Application : cas du puits quantique polaire de GaN	83
3.4	Modélisation des spectres d'émission spontanée du puits quantique	89



3.4.1	Taux d'émission spontanée	90
3.5	Corrélations X-X répulsives et estimation du blueshift . . .	101
3.5.1	Modèle capacitif	101
3.5.2	Équilibre local du gaz d'excitons corrélés	102
3.5.3	Hypothèses	103
3.5.4	Densité d'états bidimensionnelle de bosons et potentiel chimique	104
3.5.5	Potentiel chimique et profil de densité locale	105
3.5.6	Dépendance de l'énergie d'interaction avec la densité à tem- pérature fixée	105
3.5.7	Discussion et perspectives	107
3.6	Thermodynamique de la coexistence entre plasma et ex- citons	109
3.6.1	Équation de Saha	109
3.6.2	Taux d'ionisation et dissociation entropique	110
3.6.3	Dépendance de l'énergie de l'exciton avec la densité – transi- tion de Mott	110
3.6.4	Diagramme de phase : température, densité et hystérésis . . .	113
3.7	Modèle « drift - diffusion » du transport excitonique . . .	117

4.1 Genèse des échantillons

Le début de la thèse a été consacré à la conception et à la fabrication de pièges basés sur des électrodes semi-transparentes de géométries variables.

- Sur la base d'une partie des modèles présentés au chapitre 3, quatre échantillons ont été proposés, qui diffèrent par l'épaisseur de puits et de barrière, la concentration d'Al dans la barrière et le substrat utilisé (cf annexe E). Ces échantillons ont été crus en MBE par B. Damilano (CRHEA). Nous présenterons ici principalement les résultats obtenus sur l'échantillon D704.
- Les géométries de nombreux types de pièges et d'autres structures ont été traduits en jeux de masques pour la lithographie optique et le dépôt des électrodes (annexe E). Le travail en salle blanche a été réalisé lors d'une mission au CRHEA, sous la tutelle de B. Damilano., Y. Cordier et S. Chenot.
- La qualité des contacts Schottky des électrodes a été validée au L2C en collaboration avec B. Jouault et C. Coillot, et sera abordée dans le chapitre 6 consacré au contrôle des pièges par la polarisation électrique.



4.2 Mise en évidence du piégeage

Afin de mettre en évidence l'effet du piégeage, nous comparons les émissions de photoluminescence obtenues sur deux types de zones spatiales :

- celles ne possédant pas d'électrodes, et n'ayant donc pas d'effet de piégeage de nature à limiter le transport planaire des excitons ;
- celles, au contraire, limitées par des électrodes métalliques créant, par effet de redressement de bandes (effet Schottky), une barrière de potentiel confinant les porteurs et jouant ainsi le rôle de piège électrostatique.

4.2.1 Transport excitonique en l'absence de piège

L'expérience la plus simple permettant de visualiser le transport excitonique consiste à exciter un échantillon de puits quantique (D704 ou D713 par exemple, cf § 2.5) à l'aide d'un spot laser focalisé – dont le diamètre est de l'ordre du micromètre – et à collecter la luminescence à distance de cette excitation. Ceci constitue l'expérience typique de microphotoluminescence décrite au paragraphe 2.6.1 ; on obtient ainsi une image de photoluminescence qui correspond à une série spatiale de spectres s'étalant sur $\sim 200 \mu\text{m}$ avec un échantillonnage de $0,4 \mu\text{m}$ par pixel et une résolution de $1 \mu\text{m}$.

Décroissance de la densité de porteurs au cours de la propagation Les figures 4.1a, b et c montrent de telles images obtenues pour trois puissances d'excitation. La position du spot laser d'excitation est repérée par une flèche blanche verticale. Les images PL des trois figures 4.1a, b et c sont réalisées avec des puissances d'excitation laser de $175 \mu\text{W}$, $250 \mu\text{W}$ et $P_0 = 5000 \mu\text{W}$ respectivement. On constate qu'à mesure que la distance au point d'excitation augmente, l'intensité et l'énergie de l'émission diminuent. Cela est dû à l'écrantage, par les porteurs photocréés, du champ électrique interne orienté dans la direction de croissance, . La plus haute densité de porteurs, juste sous le spot d'excitation, correspond au maximum d'écrantage (champ électrique le plus faible) et engendre en conséquence la plus grande intensité et énergie d'émission [41, 144, 42]. Les caractéristiques de la luminescence sont invariantes par rotation autour de l'axe du spot laser et sont la conséquence de la propagation des porteurs photocréés : d'une zone dense sous le spot, ces porteurs migrent radialement tout en se recombinant radiativement [42, 41, 73]. La recombinaison radiative étant d'autant plus efficace que la densité de porteurs est élevée, l'intensité décroît à mesure que les porteurs sont loin du point d'injection. La même décroissance s'observe sur l'énergie de leur émission car celle-ci est la signature de la densité locale de porteurs. Sur les figures 4.1a et b, on peut également observer une transition qui survient entre, d'une part un régime de forte émission, localisé dans un rayon d'environ $\sim 50 \mu\text{m}$ autour du

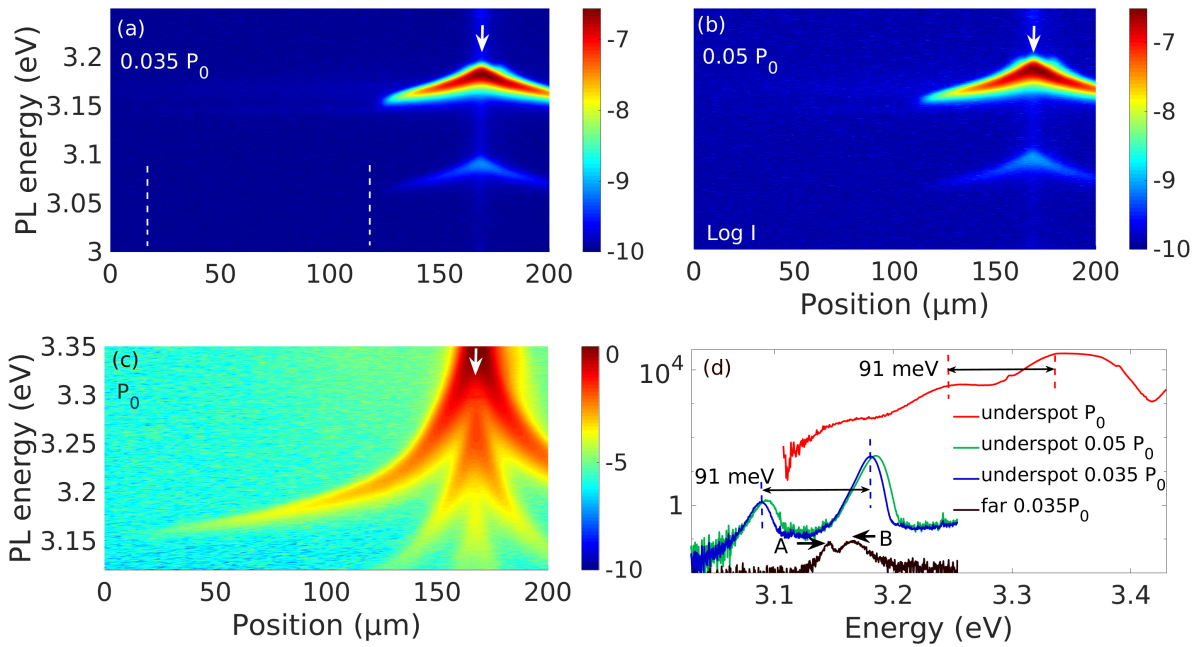


FIGURE 4.1 – (a,b,c) : images de PL pour 3 puissances d’excitation hors piège obtenues sur l’échantillon D704 à 9K avec l’excitation laser CW 266 nm (soit 4,66 eV). La puissance est $P_0 \sim 5000 \mu\text{W}$. Pour chaque image, l’intensité est encodée en échelle logarithmique, l’axe horizontal représente la position et l’axe vertical l’énergie de l’émission (en eV). (d) : spectres obtenus sous le spot d’excitation, repéré par les flèches blanches verticales, et correspondant aux puissances P_0 en rouge, $0,05 P_0$ en vert et $0,035 P_0$ en bleu. Le spectre en noir constitue la moyenne spatiale dans la zone « éloignée » délimitée par les tirets blancs verticaux sur la figure (a) et pour la puissance la plus faible.

spot et d’autre part, un régime de faible photoluminescence, dont l’intensité et l’énergie diminuent beaucoup plus faiblement avec la distance.

Caractéristiques spectrales de l’émission La figure 4.1d permet de visualiser l’allure spectrale de cette émission obtenue en moyennant l’image de PL sur la zone spatiale délimitée par les tirets verticaux blancs sur la figure 4.1a. Ce spectre est représenté en noir, il correspond à l’excitation dont la puissance est la plus faible ($0,035 P_0$). Il comporte deux raies (repérées par les lettres A et B sur la figure 4.1d) dont les énergies respectives sont de 3,146 eV et 3,171 eV. Par ailleurs, les spectres de l’émission collectés juste sous le spot laser et correspondant aux puissances 175 μW , 250 μW et 5000 μW sont tracés en bleu, vert et rouge sur ce même encart. La morphologie de l’émission sous le spot est très différente entre, d’une part le régime de très forte injection pour laquelle la raie de photoluminescence se situe au delà de 3,3 eV et dont le flanc haute énergie tend à « pousser » et d’autre part, le régime d’excitation intermédiaire dont l’énergie d’émission est en deçà de 3,3 eV et pour lequel la raie de luminescence possède une forme triangulaire. Les répliques phonons (X+1LO) et

(X+2LO) de ces raies sont visibles : le décalage énergétique de 91 meV est matérialisé par les doubles flèches noires.

Photons guidés et diffusion radiale des excitons Par rapport à l'objectif d'accéder à la luminescence d'excitons froids à l'équilibre thermodynamique, la configuration du transport sans piège présente plusieurs inconvénients :

- les répulsions entre excitons empêchent leur accumulation et ils évacuent rapidement la zone dense sous le spot : le profil spatial est très inhomogène, les porteurs y sont hors d'équilibre spatialement.
- le transport des porteurs se fait de manière radiale, ainsi leur densité décroît, au minimum, en $1/r$. Ainsi, tel qu'on peut l'observer sur la figure 4.1a, la raie de PL n'est intense que dans les 50 premiers micromètres de leur propagation.
- enfin, il existe une composante de **lumière diffusée** qui provient des photons produits sous le spot par la raie intense de photoluminescence. Cette lumière se propage sous la surface de l'échantillon de manière guidée tout en étant diffusée. La signature spectrale de tels *photons guidés* est caractérisée par une raie de luminescence dont l'énergie n'évolue pas avec la distance (comme nous le confirmerons sur la figure 4.9), cette raie est repérée par la lettre B sur la courbe noire de la figure 4.1d.

Retenons que ces phénomènes de *photons guidés* et de *diffusion radiale* limite notre capacité à mesurer la raie excitonique qui est susceptible de n'être pas suffisamment bien séparée de la raie de ces photons. Dans ce contexte, nous verrons que le recours à un piège de géométrie filiforme présente de nombreux avantages.

Relation Intensité - Énergie de la luminescence La figure 4.1c met en évidence la forte dépendance de l'intensité de photoluminescence avec son énergie. Pour chaque position spatiale, on extrait l'énergie du maximum d'émission et l'intensité de ce maximum afin de produire la courbe de la figure 4.2. Cette figure est analogue à celle produite sur la figure 3(d) de l'article de FEDICHKIN *et al.* [41]. On constate qu'avec l'échelle logarithmique pour les ordonnées, les points expérimentaux sont sensiblement alignés. L'interprétation de ce résultat est la suivante. En négligeant les recombinaisons non radiatives (peu présentes à basse température, ici 9 K), l'intensité de photoluminescence collectée I est une fonction croissante de la densité de porteurs n :

$$I \propto \frac{n}{\tau_{rad}(n)} \quad (4.1)$$



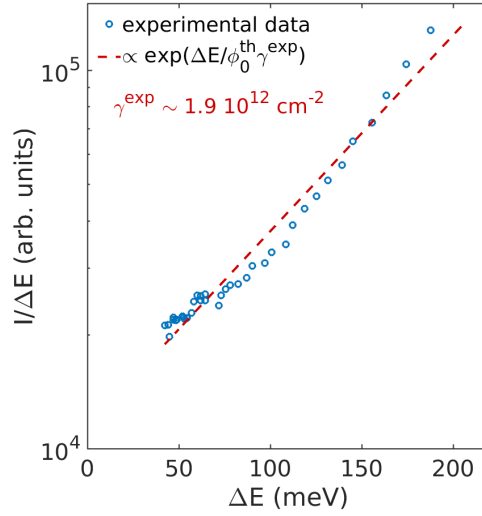


FIGURE 4.2 – Évolution de l'intensité de photoluminescence I divisée par l'écart énergétique ΔE du maximum d'intensité, en fonction de l'écart énergétique. Les données correspondent à celles des spectres extraits de la figure 4.1c. En tirets rouges, la régression exponentielle donnant le paramètre de fit $\Phi_0\gamma \sim 84$ meV, soit compte-tenu d'une valeur du paramètre Φ_0^{th} égale à $5 \cdot 10^{-14}$ eV.cm², une valeur expérimentale du coefficient γ (cf texte), $\gamma^{\text{exp}} = 1,9 \cdot 10^{12}$ cm⁻².

où la durée de vie des porteurs, τ_{rad} , est une fonction décroissante de leur densité, $\tau_{\text{rad}}(n) = \tau_{\text{rad}}^0 e^{-n/\gamma}$ (cf paragraphe 3.2.4, équation 3.17 et figure 3.7b). En supposant une variation linéaire du *blueshift* avec la densité, $\Delta E = \Phi_0 n$, on en déduit une dépendance exponentielle de la quantité $I/\Delta E$ avec ΔE , soit

$$I/\Delta E \propto e^{\Delta E/\gamma\Phi_0}. \quad (4.2)$$

La figure 4.2 montre le résultat de la régression exponentielle sur le logarithme de la quantité $I/\Delta E$ en fonction de ΔE qui fournit, moyennant la connaissance de la valeur de constante $\Phi_0 = \Phi_0^{\text{th}} = 4,4 \cdot 10^{-14}$ eV.cm² (voir paragraphe 3.6.3), l'estimation expérimentale de la constante γ , soit $\gamma^{\text{exp}} = 1,9 \cdot 10^{12}$ cm⁻². Si on compare cette valeur à celle qui a été obtenue lors des simulations du paragraphe 3.2.4, on constate que, par rapport à la valeur de $\gamma^{\text{th}} = 2,8 \cdot 10^{11}$ cm⁻², cette valeur est 7 fois supérieure. Toutefois, les simulations du paragraphe 3.2.4 utilisent un écrantage des charges du type « condensateur plan » qui surestime d'un facteur $\sim 3,5$ la valeur du paramètre γ (cf § 3.5.6) : la comparaison pertinente avec le modèle doit donc s'effectuer avec le même modèle, ce qui ramène l'écart d'un facteur 7 à un facteur 2. Bien que l'ordre de grandeur soit correct, on constate que la dépendance de l'intensité avec le *blueshift* n'est pas décrite de manière pleinement satisfaisante par cette simulation. En outre, on vérifie que la relation $I = f(\Delta E)$ que l'on obtient par les simulations est très



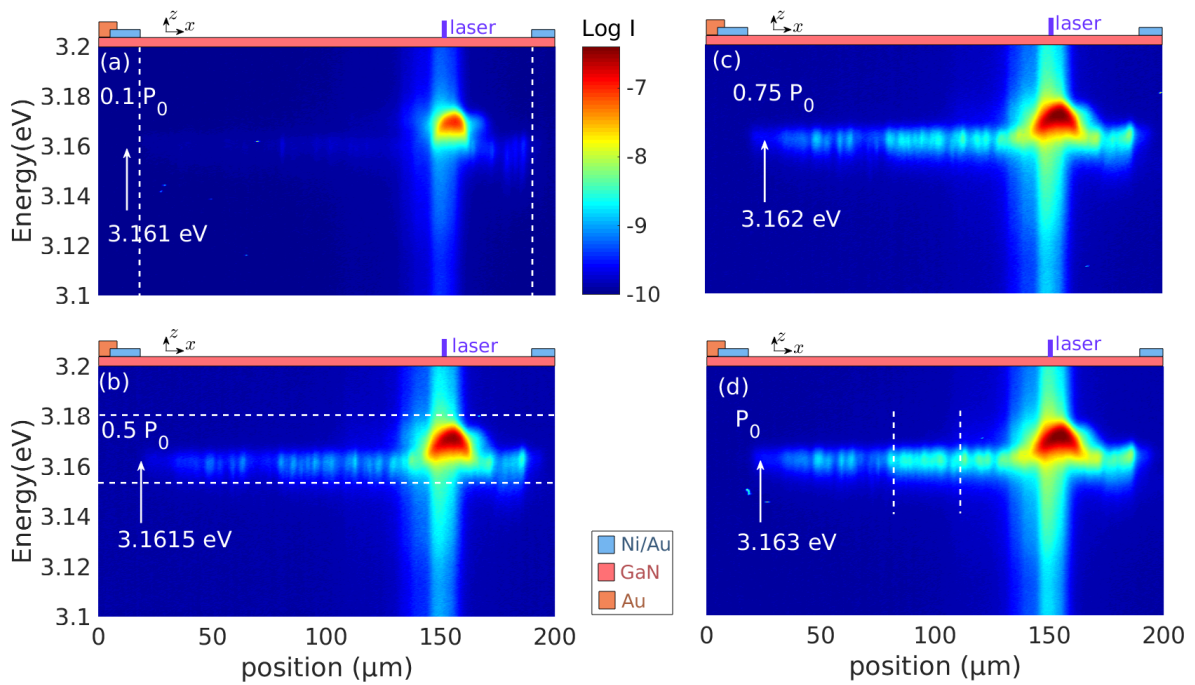


FIGURE 4.3 – Images de PL pour 4 puissances d’excitation dans le piège E10C1A réalisées à 6K avec l’excitation laser à 360 nm (soit 3,444 eV) avec un taux de répétition de 80 MHz (soit une période de 12,5 ns), avec la puissance nominale $P_0 \sim 250 \mu\text{W}$. Pour chaque image, l’intensité est encodée en échelle logarithmique, l’axe horizontal représente la position et l’axe vertical l’énergie de l’émission (en eV). La valeur de l’énergie du maximum d’intensité de PL, dans la zone spatiale délimitée par les tirets blancs verticaux, est indiquée par les flèches blanches. Les deux traits en tirets blancs horizontaux représentent les limites énergétiques utilisées pour calculer le profil spatial (voir fig. 4.6).

peu dépendante de la valeur du champ électrique interne, F_{IN} . Ceci sera confirmé au chapitre 6, fig. 6.23. Une éventuelle erreur dans l’estimation de ce paramètre n’est donc pas, *a priori*, responsable de l’écart entre les résultats expérimentaux et le modèle. La compréhension du décalage entre ces résultats expérimentaux et le modèle requiert encore davantage d’investigations.

4.2.2 Accumulation des excitons dans un piège linéaire

Nous nous intéressons à présent à la structure de piégeage appelée « fil », dans le régime de faible injection (le *blueshift* sous le spot ne dépasse pas 20 meV). Cette structure constitue une zone rectangulaire de piégeage de $160 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$. La figure 4.3 représente les images de photoluminescence réalisées pour 4 puissances d’excitation distinctes (10% 50% 75% et 100% de la puissance nominale, $P_0 = 250 \mu\text{W}$), l’échantillon étant maintenu à une température de 6 K. On constate que le maximum d’intensité de PL est atteint sous le spot dont la position est $X = 155 \mu\text{m}$. On constate aussi que le

spectre de photoluminescence se limite à une unique raie (hormis les répliques phonons) lorsqu'on s'éloigne du spot, à partir d'une distance d'environ 10 μm . L'énergie de cette raie dépend de la puissance et la valeur de son énergie à intensité maximale est repérée par les flèches blanches sur chacune des 4 images.

Caractéristiques spectrales de l'émission à distance du spot La figure 4.4 donne l'évolution, avec la puissance d'injection, des spectres obtenus en moyennant l'image de PL dans la zone spatiale délimitée par les positions 75 μm et 100 μm (cf tirets blancs verticaux sur la figure 4.3d qui définissent ce domaine spatial). La largeur à mi-hauteur de chacun de ces spectres est de l'ordre de 7 à 9 meV. Les spectres, dont l'intensité est représentée en échelle logarithmique, possèdent des **allures « triangulaires »**. Les pentes de chacun deux flancs triangulaires de chaque spectre peuvent être quantifiées à l'aide de la température effective, T_{slope} , définie par une régression exponentielle de l'intensité de l'émission en fonction de son énergie, $I(E)$, soit

$$I(E) \propto \exp(\pm E/k_B T_{\text{slope}}) \quad (4.3)$$

où le \pm permet de ramener la grandeur T_{slope} à une grandeur positive. Avec cet outil, la température effective du flanc basse énergie est ~ 45 K, celle du flanc haute énergie est ~ 18 K (cf fig. 4.4). Le flanc haute énergie est donc, de cette manière, 2,5 fois plus « raide » que le flanc basse énergie. Par ailleurs, le rapport entre le maximum du pic et sa base est de l'ordre de deux décades sur le flanc basse énergie¹. Sur l'encart de cette figure, le décalage ΔE de l'énergie du maximum d'émission de ces spectres est tracé en fonction de la puissance d'excitation. On constate une augmentation de l'ordre de 2 meV lorsque la puissance d'excitation varie d'un facteur 10. Compte-tenu de l'estimation du coefficient de *blueshift* Φ'_0 proposée au paragraphe 3.5.6, cette variation d'énergie de PL correspond à une variation de densité de $\sim 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Cette méthode nous fournit une estimation de la densité d'excitons dans le piège : augmenter la puissance de 25 μW à 250 μW revient à augmenter la densité de $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Caractéristiques spectrales de l'émission sous spot Il est également intéressant de comparer l'allure des spectres « à distance du spot » et juste sous le spot. Ces derniers sont tracés sur la figure 4.5 :

- L'intensité des spectres extraits dans la zone spatiale éloignée du spot (délimitée par les traits blancs verticaux définis la figure 4.3d) varie avec la puissance d'un facteur ~ 18 lorsque la puissance varie d'un facteur 10.

1. Pour la puissance 0.1 P_0 , le rapport signal à bruit est peut-être insuffisant pour conclure sur un rapport de deux décades entre le maximum du pic et son flanc basse énergie.



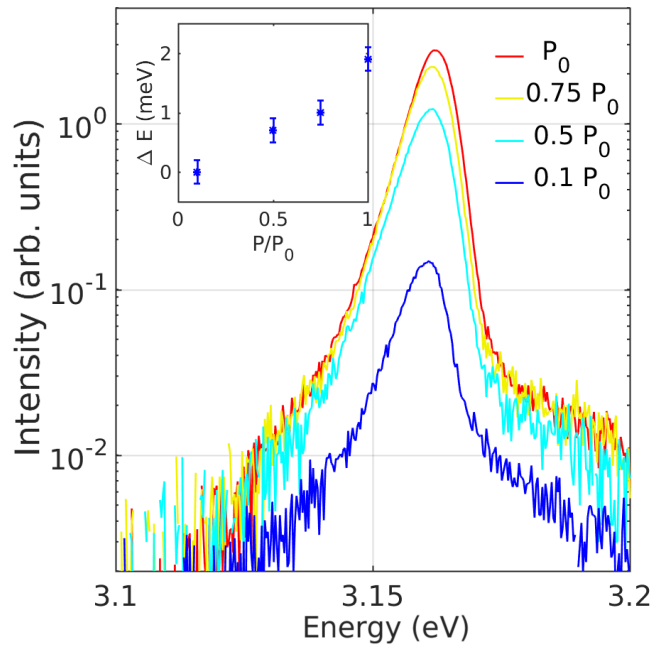


FIGURE 4.4 – Spectres de PL dans la zone spatiale délimitée par les traits verticaux de la figure 4.3 et obtenus dans les conditions expérimentales décrites sur cette même figure. L'évolution relative de la position en énergie, ΔE , des maxima d'intensité de photoluminescence avec la puissance d'excitation est représentée dans l'encart. Les énergies de ces maxima sont indiquées sur la figure 4.3.

- L'intensité des spectres extraits sous le spot varie avec la puissance d'un facteur 2,5 pour la même variation de puissance d'un facteur 10 (cf fig. 4.5).

Cette différence entre le comportement à distance du spot et juste sous le spot peut s'expliquer par le transport des particules depuis la zone sous le spot vers la périphérie : l'augmentation de puissance d'un facteur 10 augmente la densité d'excitons et rend ainsi leur transport plus efficace. Ce qui tend, d'une part, à limiter l'augmentation du nombre d'excitons sous le spot (facteur 2,5 pour l'intensité émise) et d'autre part, à favoriser l'augmentation de la densité d'excitons à distance du spot (facteur ~ 18 pour l'intensité).

Énergie de l'émission sous et « à distance » du spot Outre le profil d'intensité, il est également intéressant de comparer les valeurs énergétiques de l'émission : on constate (figures 4.5 et 4.4) que les énergies des maxima d'intensité sont également plus élevées sous le spot qu'à distance du spot, le décalage total entre ces énergies, ΔE (voir encart de la figure 4.5) étant toujours au maximum de 2 meV. Une observation fine de la position de ces maxima montre que, par rapport à la situation « à distance du spot », leur énergie sous le spot est de 8 – 9 meV supérieure, et ce manière uniforme pour les 4 puissances. Enfin, l'allure des flancs basse et haute énergie de ces spectres sont également triangulaires, les valeurs de leur pente fournissent des températures

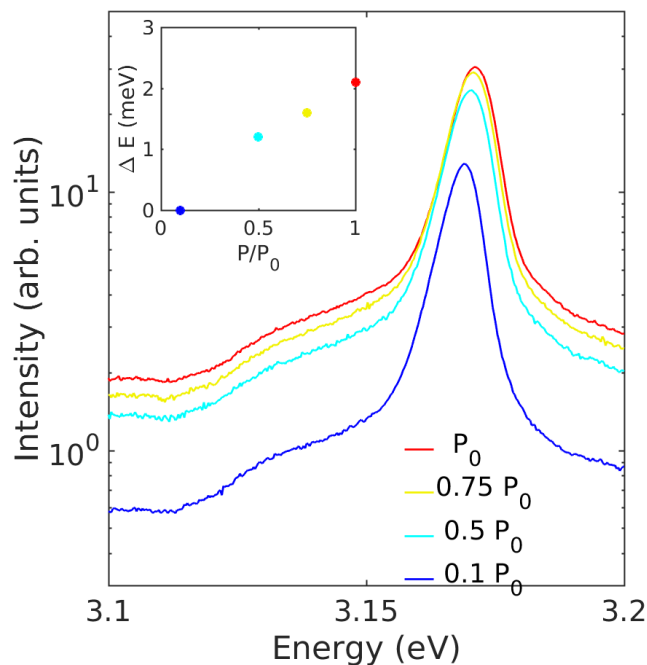


FIGURE 4.5 – Spectres de PL sous le spot correspondant aux images de PL de la figure 4.3. L'évolution relative de la position en énergie, ΔE , des maxima d'intensité de photoluminescence avec la puissance d'excitation est représentée dans l'encart.

effectives égales, respectivement, à ~ 60 K et ~ 35 K : les flancs sont donc notablement moins raides que dans la situation décrite précédemment. Les largeurs à mi-hauteur sont légèrement supérieures, de ~ 9 meV contre ~ 7 meV précédemment. **Les raies les plus étroites sont donc obtenues à distance de l'excitation.** L'étude quantitative de la largeur de raie sera effectuée au paragraphe 4.4.2, fig. 4.19 et 4.20.

Profils spatiaux de l'émission excitonique et effet de bord Enfin, la figure 4.6 représente le profil spatial d'intensité intégrée dans la zone spectrale définie par les tirets horizontaux matérialisés sur la figure 4.3c. L'intensité est maximale sous le spot et diminue lors que la distance au spot augmente. L'effet du bord droit du piège est nettement visible sur ce profil : alors que la partie gauche du profil suit une diminution régulière avec la distance, la partie droite du profil se stabilise puis augmente à nouveau au niveau de l'interface. La courbe d'intensité fait apparaître une « bosse » qui concentre le maximum d'émission sur une largeur à mi-hauteur d'environ ~ 20 μm , et ce pour les 4 puissances. L'intensité de l'émission sur le flanc immédiatement à gauche de cette bosse est, par rapport à l'intensité émise sous le spot,

- 10 fois plus faible, pour les trois puissances les plus fortes P_0 , $0,75 P_0$ et $0,5 P_0$,
- 50 fois plus faible pour la plus faible puissance, $0,1 P_0$.

L'écart entre ces facteurs d'atténuation (sous le spot *vs* flanc à gauche) peut encore



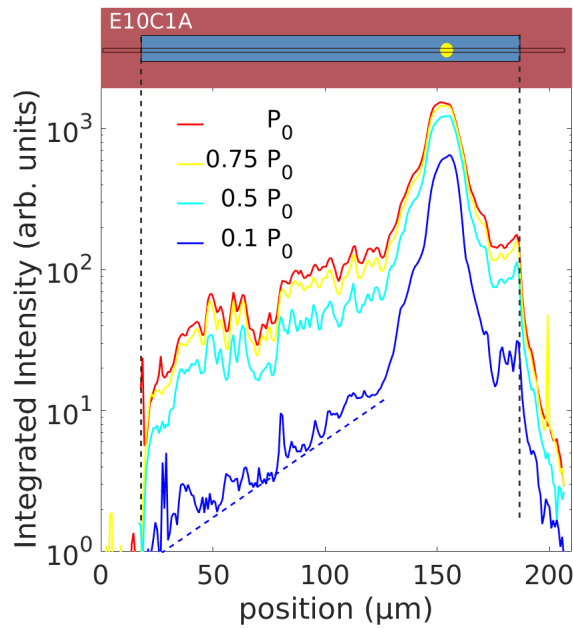


FIGURE 4.6 – Profil spatial d’intensité intégrée pour 4 puissances d’excitation dans le piège E10C1A réalisées avec l’excitation laser à 360 nm. L’échantillon, le spot laser et la zone de collecte de la PL sont schématisés sur la partie supérieure. Les données sources sont celles des images PL de la figure 4.3. La bande spectrale utilisée pour l’intégration est matérialisée sur cette dernière figure par des traits horizontaux (tirets blancs)

s’expliquer en invoquant l’efficacité limitée du transport pour la plus faible puissance, ce qui tend à contenir les excitons davantage sous le spot et à limiter leur présence dans la zone éloignée du spot. Les mécanismes de transport étant différents dans le régime de forte injection dans lequel les excitons sont suffisamment énergétiques pour *lisser* le désordre et le régime de faible injection (donc basse puissance) dans lequel les excitons sont formés de paires d’électrons et de trous qui *se localisent* sur les fluctuations de potentiel du puits.

Enfin la décroissance du profil spatial d’intensité suit, au delà des 20 premiers micromètres, pour les 4 puissances, une diminution exponentielle similaire : la puissance émise est divisée par 10 sur une distance caractéristique d’environ 100 μm . Au contraire, on constate qu’au voisinage immédiat du spot, la décroissance du profil spatial d’intensité est nettement plus marquée.

4.2.3 Effet du piégeage sous plus forte injection de porteurs

On s’intéresse à présent à un régime intermédiaire d’injection pour lequel le *blueshift* sous le spot est supérieur d’une vingtaine de meV par rapport à la situation décrite

au paragraphe précédent. Dans ce régime², l'effet du piégeage peut être visualisé en comparant la dépendance spatiale de l'émission entre, d'une part, une structure sans piège et, d'autre part, une structure comportant un piège, linéaire par exemple, comme dans le cas de la figure 4.7. On constate que les profils d'intensité de PL possèdent des comportements très différents à mesure que l'on s'éloigne du point d'injection. Dans le cas d'une propagation hors piège, l'énergie de la photoluminescence décroît typiquement de ~ 8 meV pour 10 μm sur les premiers micromètres de la propagation. Dans le cas du piège linéaire, au contraire, l'énergie de la photoluminescence décroît de moins de 5 meV sur une distance de 80 μm . Ainsi, bien que la densité de porteurs créés sous le spot soit comparable dans ces deux situations (l'énergie de PL sous le spot étant la même), ces situations se distinguent par le profil énergétique : **dans le cas du piège linéaire, le profil énergétique, donc le profil de densité excitonique tend à devenir quasi-uniforme.**

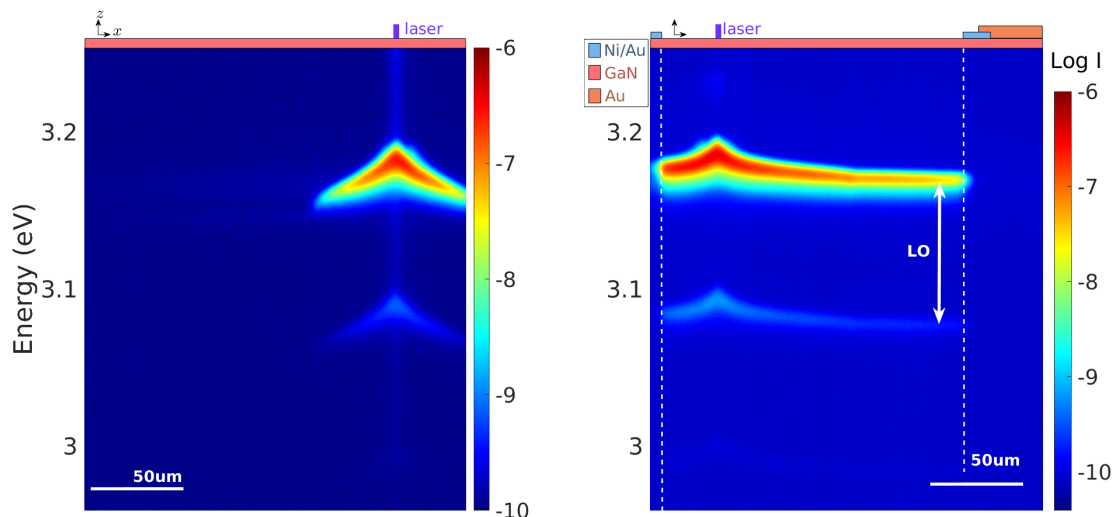


FIGURE 4.7 – (a) : images PL hors piège ; (b) : image PL dans le piège linéaire E10C1A dans les conditions où l'énergie de PL sous le spot est similaire. Horizontalement est représentée la position spatiale de collecte de la luminescence, et verticalement les énergies. L'intensité est encodée en échelle logarithmique selon le code figurant sur l'échelle de couleur.

La figure 4.8 corrobore cette interprétation : on constate en effet sur cette figure que les profils d'intensité intégrée subissent des évolutions bien distinctes. D'une part dans les 40 premiers micromètres de la propagation, la décroissance de l'intensité est plus marquée lorsque le piégeage est absent. D'autre part, au delà de 50 micromètres, **seule la présence du piège linéaire permet de maintenir une intensité de luminescence quasi-uniforme**, au contraire de la situation en l'absence de piège qui

2. Ce régime correspond à une densité sous le spot supérieure à $4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ d'après nos estimations (cf fig. 3.22).



traduit un noircissement brutal du profil spatial d'intensité intégrée. Ce phénomène constitue la preuve expérimentale du phénomène de piégeage réalisé par la présence des électrodes semi-transparentes déposées en surface de l'échantillon : les excitons demeurent **confinés dans les zones où le dépôt métallique est absent**, ces zones jouent le rôle de puits de potentiel et sont progressivement remplies d'excitons.

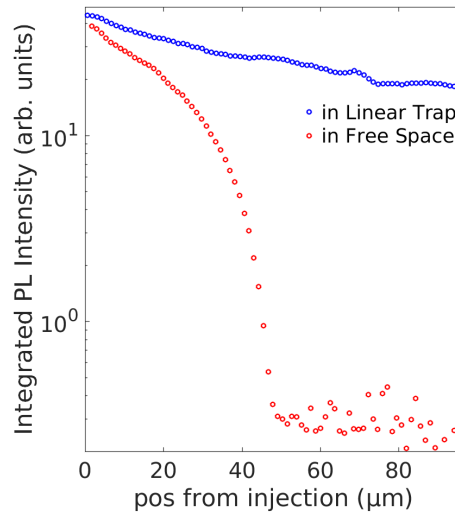


FIGURE 4.8 – Comparaison entre les profils d'intensité intégrée dans le cas du piège linéaire E10C1A (courbe bleue) et d'un échantillon sans piège (courbe rouge). Les données sources sont celles des images PL de la figure 4.7.

4.3 Influence de la géométrie du piège

A présent que l'effet du piégeage est clairement identifié, notre problématique est la suivante :

- Comment l'effet de piégeage est-il affecté si on varie les paramètres géométriques du piège ?
- Quelle géométrie est-elle la plus appropriée pour héberger un fluide excitonique susceptible de former un condensat quantique ?

Les réponses à ces questions sont données dans ce qui suit.

4.3.1 Images de PL pour différentes géométries de pièges

Commençons par comparer les images de photoluminescence réalisées dans quatre géométries différentes telles que rassemblées sur la figure 4.9 : sans piège, dans un piège linéaire, et dans 2 pièges circulaires de diamètres différents. Pour toutes les configurations, on observe, dans les premiers 40 μm de distance, une émission intense

possédant la *forme caractéristique de flèche*. Spectralement très large, l'émission est suivie d'une émission excitonique d'intensité plus faible. Chaque raie d'émission est accompagnée de sa réplique phonon à une énergie de 91 meV inférieure (X+1LO) [145]. Comme au paragraphe précédent on constate que l'énergie, l'intensité, mais aussi la largeur de raie de la photoluminescence excitonique décroît lorsqu'on s'éloigne du point d'injection optique.

Pièges circulaires Comparons l'émission provenant de la structure « nue » (*ie* sans piège) (fig. 4.9a) et l'émission issue des pièges circulaires de diamètre $D = 80 \mu\text{m}$ (fig. 4.9b) et $D = 40 \mu\text{m}$ (fig. 4.9d). Dans le cas de la structure « nue », l'émission intense en forme de flèche est accompagnée de deux émissions à plus de $\approx 50 \mu\text{m}$ du spot : d'une part, une faible émission d'énergie constante égale à 3,145 eV (cette émission est due à une faible fraction d'excitons qui se propagent par diffusion) et, d'autre part, d'une émission large dans la bande 3,16 – 3,18 eV (il s'agit de la lumière émise par les excitons sous le spot, guidée dans le plan de l'échantillon, puis rediffusée par les rugosités de surface, le phénomène étant décrit au paragraphe 4.2.1). De telles morphologies de l'émission ont déjà été observées sur des échantillons similaires [41]. Sur l'image PL de l'échantillon circulaire de diamètre 80 μm , on observe également une forme de flèche dont les dimensions sont comparables. Cela signifie que l'on remplit le piège avec des excitons sans que toutefois leur densité soit uniforme dans l'ensemble du piège. Au contraire, dans une zone de piégeage de dimensions inférieures, $D = 40 \mu\text{m}$, l'émission ne possède plus une forme de flèche mais plutôt un profil plat (fig. 4.9d) : dans ce cas, le piège est donc rempli de manière uniforme.

Des excitons s'échappent du piège Une observation attentive montre également que l'émission se produit en dehors du piège. Trois différentes zones peuvent être distinguées à l'extérieur du piège :

- la région (I) sans électrodes en surface,
- la région (II) surmontée d'une épaisse électrode d'or opaque,
- la région (III) surmontée d'une fine électrode semi-transparente.

Ces zones sont identifiées sur la figure 4.9b. L'émission dans la zone (I) est centrée à l'énergie E_0 du puits quantique vide. La lumière y est émise par les excitons qui se sont échappés du piège et se propagent par diffusion. Leur densité est suffisamment faible pour qu'ils ne produisent pas de *blueshift* significatif. Cette émission est comparable à celle d'un échantillon sans piégeage collectée à plus de 60 μm du spot, là où la densité des porteurs photocréés est faible et le champ électrique interne peu écranté. La faible différence entre les valeurs d'énergies émises par l'échantillon « nu » ($\approx 3,15$ eV sur la fig. 4.9a) et par la zone (I) « en dehors du piège » ($\approx 3,16$ eV sur la fig. 4.9d) est



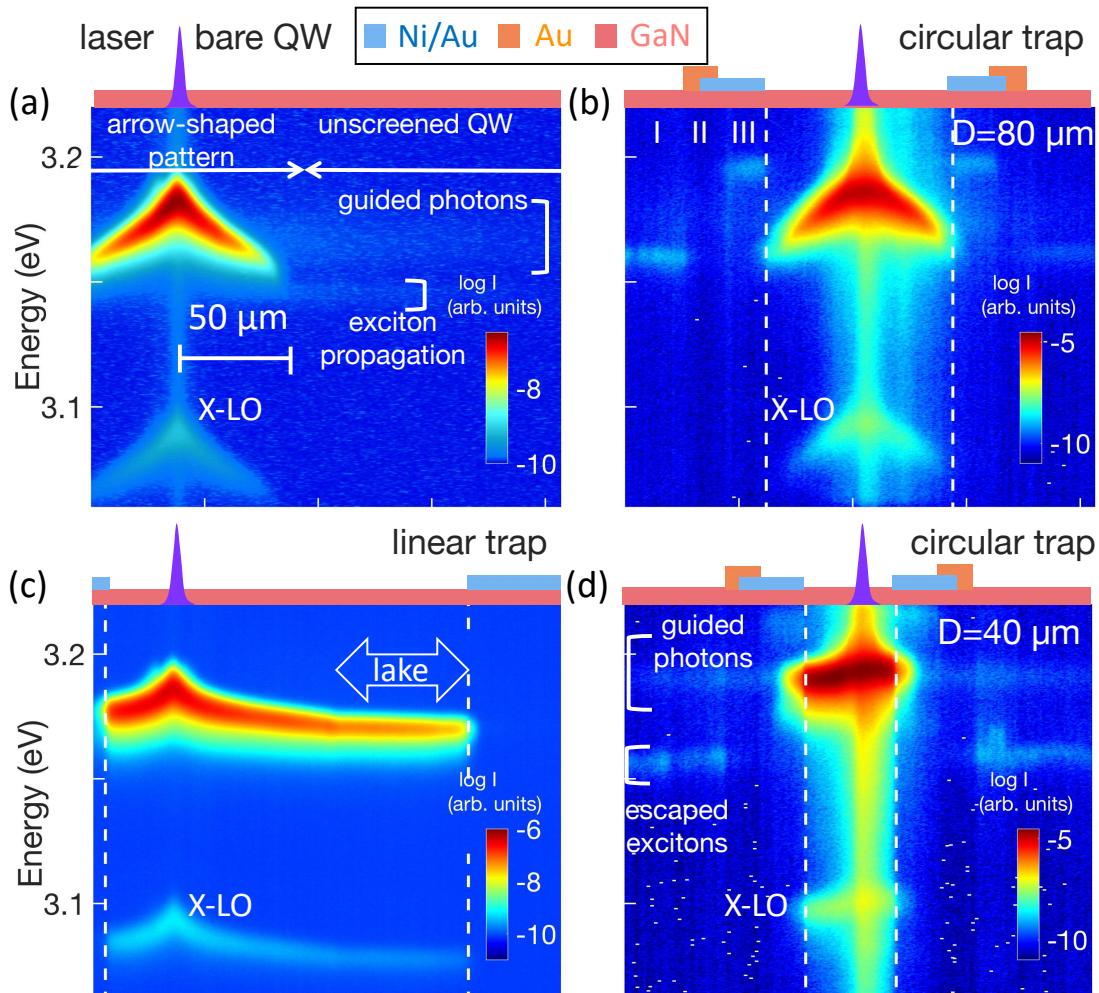


FIGURE 4.9 – Intensité de photoluminescence, en échelle logarithmique, encodée suivant un code couleur. Les mesures sont réalisées à 4 K avec une excitation focalisée dans une structure sans piège (a), réalisant un piège circulaire (b) et (d), et linéaire (c). La position des électrodes en surface ainsi que le spot d'excitation sont schématisés sur la partie supérieure de chaque image PL. Les puissances d'excitation sont : $P = 1 \text{ mW.cm}^{-2}$ (a), $P = 500 \text{ μW.cm}^{-2}$ (b) et (d), et $P = 850 \text{ μW.cm}^{-2}$. Pour chaque image, la direction X représente, la direction longitudinale pour le piège linéaire, ou la direction radiale pour les pièges circulaires. Dans ce dernier cas, le spot d'excitation est positionné sur le centre du piège. Figure tirée de [143].

probablement due aux effets électrostatiques induits à proximité des électrodes. Pour le plus petit piège circulaire, $D = 40 \mu\text{m}$, en plus de la lumière (repérée par la mention « escaped excitons » sur la fig. 4.9d) produite par les excitons qui se sont échappés du piège, il est également possible de distinguer une émission possédant une énergie comparable à celle de la plus forte luminescence au centre du piège ($\approx 3,18 \text{ eV}$). Cette émission est similaire à la lumière diffusée dans l'échantillon « nu » à une distance de $50 - 60 \mu\text{m}$ du spot : il s'agit de la lumière **émise par les excitons présents au centre** du piège qui a ensuite été **guidée dans le plan** de l'échantillon sur plusieurs dizaines de micromètres puis qui est **diffusée par les rugosités de surface** en dehors de l'échantillon. Enfin, l'émission dans la zone (III), la plus proche du piège, permet d'estimer la profondeur du potentiel de piégeage. Cela est bien visible pour le piège de diamètre $80 \mu\text{m}$: une faible proportion d'excitons s'échappe dans la région (III) recouverte par les électrodes semi-transparentes. L'énergie de l'émission est $E_G = 3,19 \text{ eV}$. L'écart énergétique avec l'énergie émise dans la zone « nue » (III) correspond à la barrière de potentiel induite par la présence des électrodes métalliques. On en déduit ainsi la **valeur expérimentale du potentiel de confinement**, $E_t = E_G - E_0 \sim 30 \text{ meV}$ [143]. Cette valeur est en accord avec la valeur obtenue par la résolution des équations de Poisson et de Schrödinger couplées (voir paragraphe 3.1.3).

Géométrie linéaire, diffusion radiale et « lac » d'excitons Du point de vue du piégeage, l'avantage de la géométrie linéaire par rapport à la géométrie circulaire, est le suivant : la géométrie linéaire nous permet d'**éliminer l'effet de dilution radiale** de la densité excitonique ($\propto 1/r$), ce qui maintient à une valeur relativement élevée la densité d'excitons à des distances significativement grandes du spot laser (typiquement > 100 à $130 \mu\text{m}$). De plus, dans les pièges circulaires tout comme en l'absence de piège, l'émission excitonique est en compétition avec la lumière guidée-diffusée (bien que ces deux types d'émission puissent être spectralement résolues). En revanche, dans le cas du piège linéaire, la lumière guidée-diffusée est sujette à la dilution radiale, contrairement aux excitons qui, pour cette géométrie de piège, sont **contraints à une propagation quasi unidimensionnelle** : c'est donc avec cette géométrie de piège que la contribution des excitons à l'émission sera la mieux résolue.

Enfin, l'encart de la figure 4.9c révèle une caractéristique remarquable du profil d'émission dans le piège linéaire (voir également le paragraphe précédent). Alors qu'à proximité du spot d'excitation, sur l'image de PL, on distingue l'*allure de flèche* caractéristique, à partir de $\approx 50 \mu\text{m}$ et davantage en aval, l'énergie et l'intensité de l'émission sont quasi-indépendantes de la position. Cela suggère que nous avons créé, dans ce piège, une zone spatiale uniformément remplie de porteurs ; cette zone sera dénommée le « **lac excitonique** ». Pour une puissance $P = 850 \mu\text{W.cm}^{-2}$, le



blueshift énergétique dans le lac n'excède pas 20 meV. Cette valeur est inférieure à la hauteur de barrière énergétique de confinement du piège, $E_t \sim 30$ meV, ce qui rend possible l'accumulation d'excitons au niveau d'une zone du piège relativement étendue, dans laquelle le fluide excitonique est à l'équilibre thermodynamique non seulement localement, mais aussi à plus grande échelle spatiale.

4.3.2 Etude par tomographies du transport 2D

L'enregistrement d'une image de photoluminescence permet de résoudre spatialement les caractéristiques spectrales de l'émission sur une bande de longueur $X = 200 \mu\text{m}$ et de largeur $Y = 1 \mu\text{m}$ avec un échantillonnage spatial de $\sim 0,4 \mu\text{m}$ dans la direction X . En imageant différentes zones spatiales décalées selon la direction Y , on réalise une « tomographie » qui constitue une carte bidimensionnelle de spectres de PL (cf fig. 4.10). A partir de ces données spectrales, on cartographie, d'une part, l'énergie de la raie excitonique correspondant au maximum d'intensité émise (fig. 4.11a) et d'autre part, l'intensité intégrée de cette raie (fig. 4.11b). Les données de ces figures 4.11a et b correspondent à l'émission dans le piège linéaire E10C1A pour une excitation focalisée à proximité d'une des extrémités du piège.

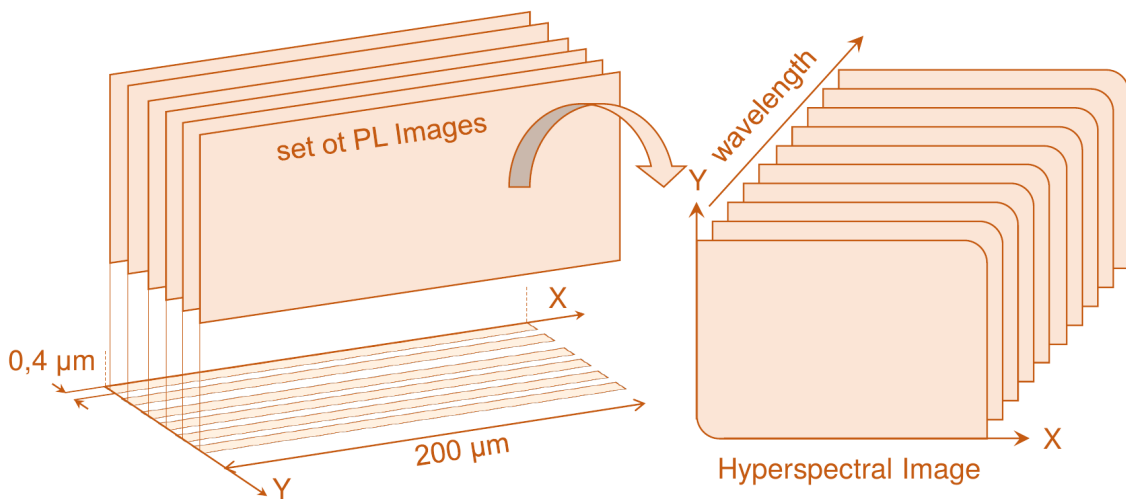


FIGURE 4.10 – Principe d'une tomographie de luminescence. Chaque pixel de cartographie réalisée est un spectre. On parle également d'*image hyperspectrale*.

Sur la figure 4.11a qui donne la répartition spatiale de l'énergie d'émission, on constate que cette énergie d'émission varie longitudinalement (selon la direction X) de manière décroissante avec la distance au point d'injection, conformément à la description faite au paragraphe 4.2.3. On observe également une dépendance dans la direction transverse (Y) qui traduit une haute énergie de l'émission en dehors de ce piège de

10 μm de largeur. L'hypothèse la plus probable pour expliquer cette émission est que le piégeage n'est pas parfaitement réalisé par les frontières latérales du piège, au niveau des abscisses X proches de l'injection. Comme nous l'avons vu au paragraphe 4.3.1, le potentiel de piège de $E_t \sim 30$ meV confinant les porteurs est effectivement insuffisant pour réaliser un piégeage complet dans ce régime où l'injection est « assez forte » (émission sous le spot à une énergie d'environ 3,18 eV).

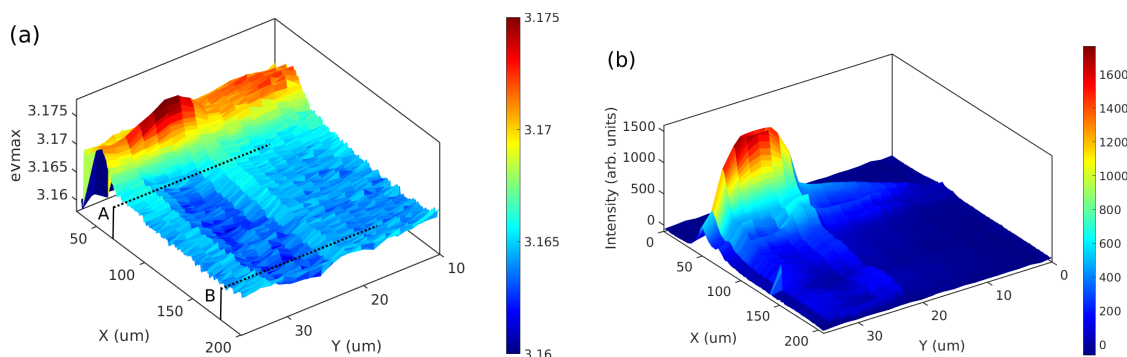


FIGURE 4.11 – Tomographie de photoluminescence du piège E10C1A : pour chaque point du plan X,Y on enregistre le spectre de PL. (a) : énergie au maximum d'émission. (b) : intensité intégrée de la raie de PL. Les repères A et B délimitent la zone spatiale $X \in [70 \mu\text{m} ; 180 \mu\text{m}]$ servant aux calculs des profils moyens de la figure 4.12.

Enfin, à distance de l'injection, on constate également une variation transverse (*ie* dans la direction Y) des caractéristiques de l'émission : l'intensité et l'énergie de l'émission possèdent des maxima situés précisément au niveau des extrémités latérales du piège. La figure 4.12 illustre les profils spatiaux transverses de l'énergie (a) et de l'intensité (b) obtenus en moyennant les données de tomographie dans la zone délimitée par les repères A et B représentés sur la figure 4.11a. On constate une augmentation d'environ 2 meV de l'énergie en bord de piège qui s'accompagne d'un accroissement de l'intensité d'un facteur 2 entre, d'une part, le fond de piège et d'autre part, les extrémités latérales (fig. 4.12b). Ces observations traduisent une **augmentation significative de la luminescence au niveau des frontières** du piège. Envisageons deux hypothèses pour expliquer ce phénomène :

- H1 Il existe un champ électrique latéral de forte intensité entre les zones *sans* et les zones *avec* électrodes en surface qui conduit à séparer les charges et à exacerber leur recombinaison radiative ;
- H2 Il existe une zone énergétiquement favorable entre les zones *sans* et *avec* électrodes en surface, se comportant comme une « jonction Schottky transverse ».

L'hypothèse de l'existence du champ électrique latéral (H1) rend bien compte de l'augmentation de l'intensité de PL, mais peine à expliquer que l'énergie de l'émission soit

également augmentée. On privilégie donc la seconde hypothèse (H2) qui demeure compatible avec l'accroissement local de la densité de porteurs (révélée par l'augmentation du *blueshift*) : nous supposons donc qu'il existe un **minimum de potentiel attractif localisé au niveau des bords de piège**³.

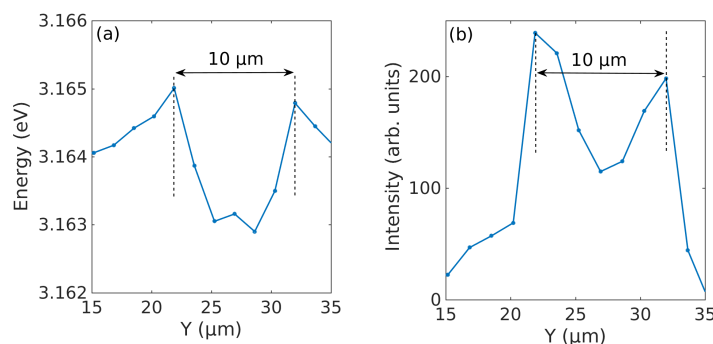


FIGURE 4.12 – Profils spatiaux construits à partir des données de tomographie de photoluminescence du piège E10C1A de la figure 4.11 : (a) évolution transverse (selon la coordonnée Y) de l'énergie au maximum d'émission ; (b) profil d'intensité de la raie de PL en fonction de la coordonnée Y. Les profils sont obtenus en effectuant la moyenne spatiale de la zone délimitée par les repères A et B définis sur la figure 4.11.

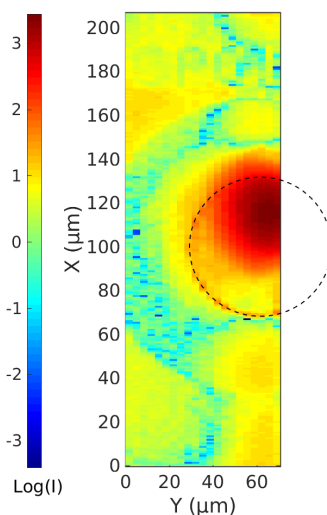


FIGURE 4.13 – Tomographie de photoluminescence du piège D60. L'intensité de l'émission, codée en échelle de couleur logarithmique, est tracée en fonction des coordonnées spatiales X et Y. Les tirets noirs matérialisent la frontière du piège circulaire sous-jacent. Le spot d'excitation est volontairement décentré.

3. Cette hypothèse est également étayée par les observations expérimentales dans d'autres travaux similaires [70] mais également au chapitre 6 et pour lesquelles nous donnons un schéma illustrant les effets de bord de piège (fig. 6.25, § 6.2.4).

Piège circulaire de diamètre 60 μm La tomographie *d'intensité de photoluminescence* du piège circulaire D60 est illustrée sur la figure 4.13. Le cercle en tirets noirs délimite la frontière du piège. On constate que l'émission la plus intense est concentrée dans une zone qui ne recouvre pas l'intégralité du piège de 60 μm de diamètre. De plus, on constate clairement que la zone de forte émission (apparaissant en rouge sur la figure 4.13) s'étend au delà des frontières du piège, notamment sur la partie supérieure (zone $X > 130 \mu\text{m}$). Comme pour le piège linéaire, cette émission en dehors du piège s'explique par la hauteur de la barrière du potentiel de confinement qui, dans ce régime de forte excitation optique, demeure insuffisante pour contenir convenablement les porteurs dans le piège.

Sur la partie inférieure du piège, à proximité du point de coordonnées ($X = 70 \mu\text{m}$; $Y = 60 \mu\text{m}$), on visualise nettement l'augmentation de l'intensité de l'émission sur le bord du piège comme discuté dans le cas du piège linéaire. Juste au dessus de ce point, on constate l'existence d'une zone dont le code couleur de l'émission est le jaune : il s'agit d'une zone de déplétion, située dans le piège, traduisant un mauvais remplissage, malgré la distance assez proche vis-à-vis du spot laser d'excitation ($\approx 30 \mu\text{m}$). **En comparaison avec le piège linéaire**, la tomographie du piège de géométrie circulaire montre donc un **remplissage incomplet et non uniforme**, ce qui confirme les conclusions du paragraphe précédent. La surface de ce piège circulaire est de 70% supérieure à celle du piège linéaire, ce qui explique que son niveau de remplissage soit moins élevé.

Piège en forme de « S » La figure 4.14 rassemble les données tomographiques du piège « S shape », de largeur 8 μm , et possédant deux courbures. La figure 4.14a donne l'intensité de la photoluminescence cartographiée en fonction des coordonnées X et Y. Cette figure met clairement en évidence le **rôle de guide à excitons** joué, vis-à-vis de leur propagation, par cette géométrie de piège courbée. Le caractère confinant du piège est particulièrement visible pour les abscisses $X > 50 \mu\text{m}$ pour lesquelles la zone de forte intensité reproduit exactement la géométrie du piège. La figure 4.14b représente les profils spatiaux issus des coupes transversales réalisées aux abscisses $X = 96 \mu\text{m}$ (en rouge), et $X = 150 \mu\text{m}$ (en noir). On constate que chacun de ces profils :

- est centré sur les positions des centres de pièges,
- présente des maxima d'intensités localisés au niveau des bords du piège.

Nous sommes donc en présence du même phénomène de concentration de porteurs sur les bords du piège, phénomène décrit dans le cas du piège E10CA (cf fig 4.11).

Enfin, le profil logarithmique d'intensité dans la direction X est donné sur la figure 4.14c. Outre un pic intense de largeur typique $\approx 60 \mu\text{m}$ centré sur l'abscisse du spot laser, $X = 35 \mu\text{m}$, ce profil révèle l'existence d'une zone d'intensité quasi-uniforme



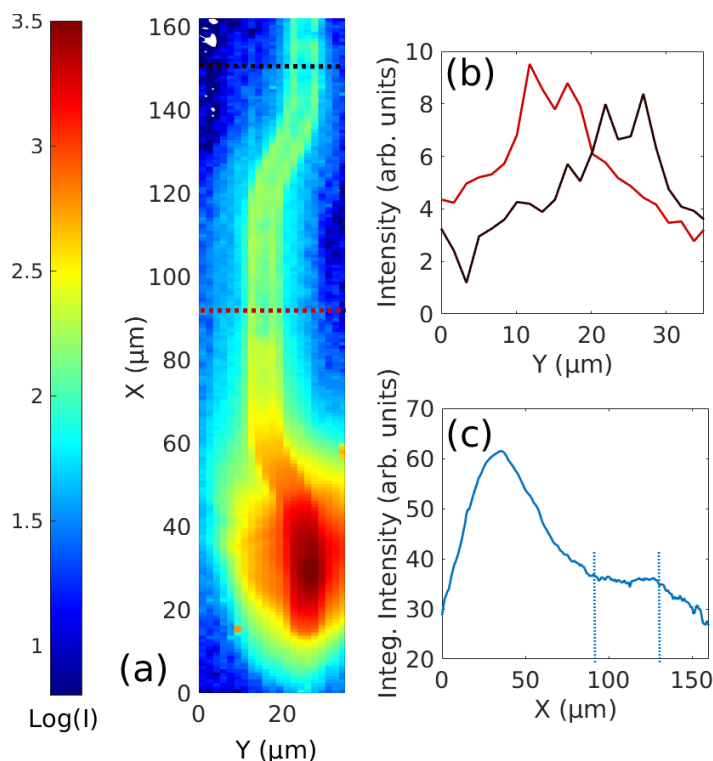


FIGURE 4.14 – Tomographie de photoluminescence du piège « S shape ». (a) l'intensité de l'émission, encodée en échelle de couleur logarithmique, est tracée en fonction des coordonnées spatiales X et Y. (b) profils transverses d'intensité, correspondant aux abscisses de côté $X = 96 \mu\text{m}$ et $X = 150 \mu\text{m}$ et repérées par les deux traits en pointillés rouges et noirs, respectivement. (c) profil d'intensité de PL intégrée le long de l'abscisse X du piège.

comprise entre les abscisses $X = 90 \mu\text{m}$ et $X = 130 \mu\text{m}$ (délimitée par les deux traits verticaux en pointillés) qui traduit un bon niveau de remplissage à relativement grande distance de l'injection (plus de $100 \mu\text{m}$), contrairement au cas de la géométrie circulaire. Tout comme pour le piège E10C1A, c'est le caractère **quasi-unidimensionnel de la propagation** dans ce piège filiforme qui explique son bon niveau de remplissage.

Synthèse des observations expérimentales L'exploitation des données expérimentales issues des images de photoluminescence avec piégeage et sans piégeage a permis d'établir que (§ 4.2 et 4.3) :

- les pièges permettent l'accumulation d'excitons ;
- le piège linéaire, sous excitation moyenne, permet de générer un fluide homogène sur une zone macroscopique ($> 40 \mu\text{m}$) ;
- la géométrie de piège linéaire supprime l'effet de dilution radiale de la densité et contraint les excitons à une propagation quasi-unidimensionnelle ;
- le remplissage homogène est possible dans un petit piège circulaire ($40 \mu\text{m}$) mais pas au-delà ;

- l'énergie du potentiel de confinement induit par les électrodes métalliques est de $E_t \sim 30$ meV ;
- le transport excitonique est guidé dans les pièges linéaires, droits comme courbés ;
- les bords latéraux des pièges jouent un rôle de piégeage par effet Schottky latéral et il existe un minimum de potentiel attractif localisant les excitons au niveau des bords latéraux du piège ;
- les raies excitoniques les plus étroites sont obtenues à distance de l'excitation ;
- seule la géométrie de piège linéaire permet de maintenir une intensité de luminescence quasi-uniforme dans une zone spatiale pouvant s'étendre sur plus de 100 microns.

4.4 Thermodynamique du gaz d'excitons à partir des spectres de PL

Compte-tenu des conclusions que l'on dégage de nos observations expérimentales, on s'attend à ce que ce soit **dans un piège linéaire et éloigné du spot**, dans cette zone appelée « lac excitonique », que les particules possèdent des **propriétés thermodynamiques les plus proches de l'équilibre**. C'est pourquoi la suite de ce chapitre est consacrée à l'étude des particules qui y résident.

4.4.1 Influence de la densité sur les spectres de PL

Séries d'images PL La figure 4.15 illustre deux séries de mesures réalisées à $T = 4$ K et $T = 8$ K en variant la puissance d'excitation afin de contrôler la densité des porteurs dans le piège. Les images PL de la colonne de gauche correspondent à la plus basse des deux températures ($T = 4$ K) : lorsque la puissance diminue, le profil spatial de luminescence tend à se morceler, formant des « grains » de forte intensité séparés par des zones peu radiatives. *A contrario*, pour $T = 8$ K (images PL de la colonne de droite, fig. 4.15), le profil spatial reste davantage uniforme, même aux basses puissances d'excitation. Dans les deux cas, l'énergie de la zone « lac excitonique » possède un profil uniforme, sauf pour les trop fortes puissances et pour les positions trop proches du point d'injection.

Séries de spectres Les spectres extraits de ces images PL dans la zone « lac excitonique » sont donnés sur la figure 4.16. Sur chaque spectre on visualise clairement la raie excitonique ainsi que sa première réplique phonon ($X + 1LO$)⁴. On constate une

4. On visualise également la seconde réplique phonon, $X + 2LO$.



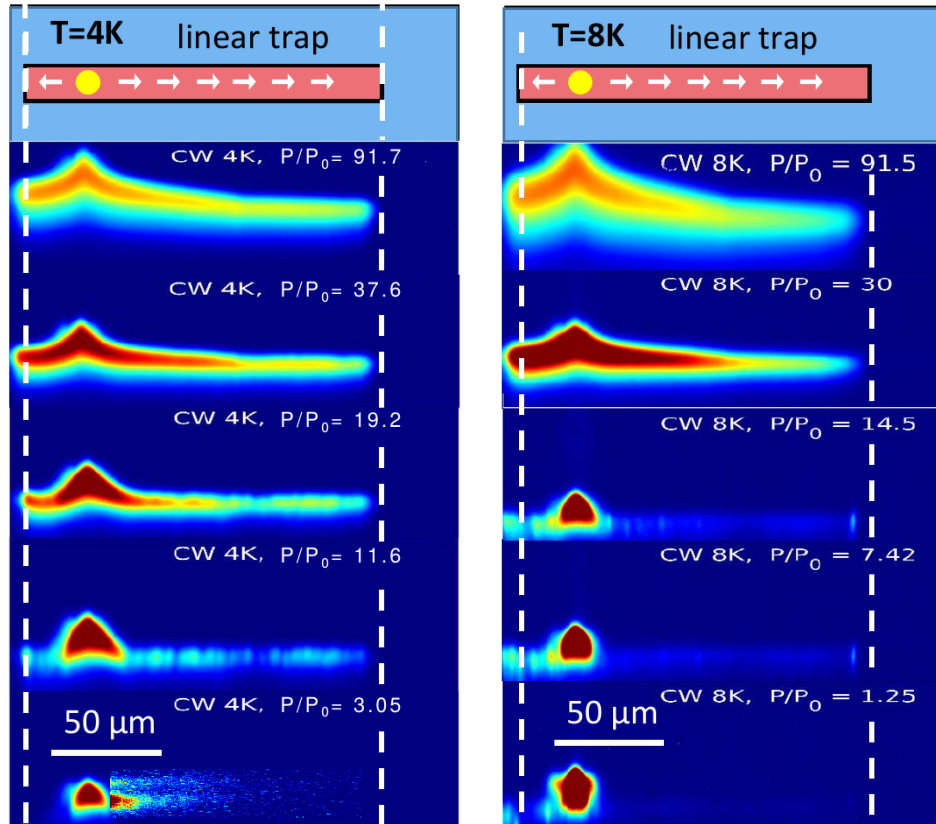


FIGURE 4.15 – Séries d’images PL réalisées en faisant varier la puissance d’excitation, pour deux températures différentes. Les images de la colonne de gauche montrent une partie des 16 acquisitions réalisées à $T = 4$ K pour des puissances variant de $3 P_0$ à $92 P_0$, avec $P_0 = 50 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$. La colonne de droite montre une partie des 21 acquisitions réalisées à $T = 8$ K pour des puissances variant de P_0 à $92 P_0$.

diminution conjointe de l’intensité et de l’énergie de la raie excitonique avec la puissance d’excitation. Pour les plus grandes valeurs de puissance, la raie excitonique conserve son « allure triangulaire » dissymétrique (l’intensité étant tracée en échelle logarithmique), le flanc haute énergie étant plus raide que le flanc basse énergie. A faible puissance, au contraire, la raie tend à adopter une allure plus symétrique, de type gaussienne. Pour $T = 4$ K (fig. 4.17a), on observe également qu’en deçà de $P/P_0 < 3$ environ, la diminution d’intensité s’accompagne d’un dédoublement de la raie excitonique. L’écart énergétique entre les deux raies issues du dédoublement vaut, pour la puissance la plus faible, 14 meV.

Intensité et Énergie en fonction de la puissance Pour chaque spectre, l’énergie du maxima d’intensité et la valeur d’intensité correspondante est extraite. Les valeurs sont reportées en fonction de la puissance d’excitation sur les courbes de la figure 4.17a,b. On retrouve l’évolution croissante de l’énergie et de l’intensité de la raie excitonique dans la zone « lac » lorsque la puissance d’excitation augmente (cf § 4.2.1). Cette évolution

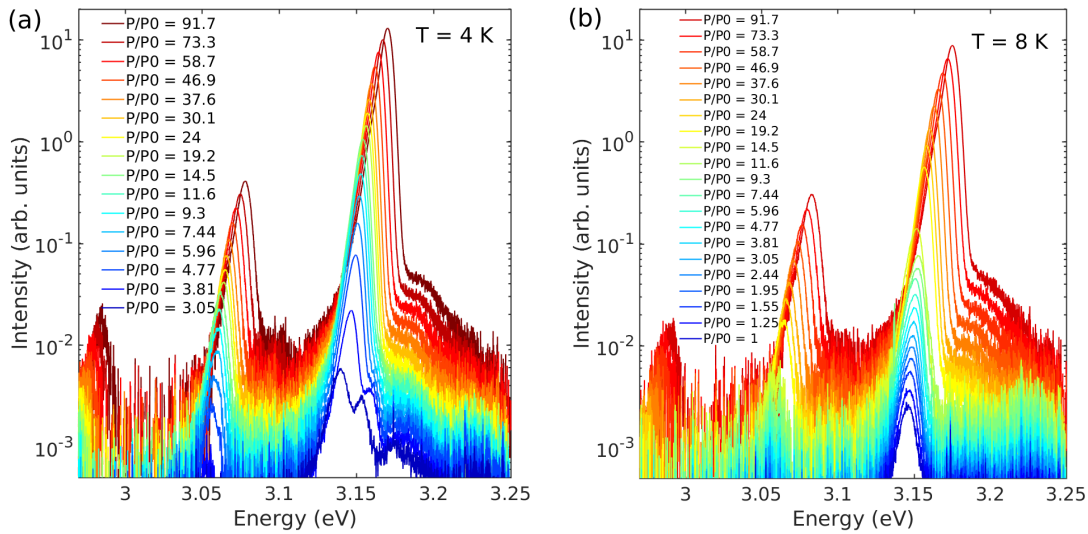


FIGURE 4.16 – Spectres extraits dans la zone « lac excitonique » à partir des images PL réalisées à $T = 4$ K (a) et $T = 8$ K (b) présentées sur la figure 4.15 : (a) allure des 16 spectres à $T = 4$ K pour les puissances d’excitation variant d’un facteur 30 ; (b) allure des 21 spectres à $T = 8$ K pour les puissances d’excitation variant d’un facteur 90. La puissance nominale P_0 vaut $50 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$.

confirme l’augmentation de la densité dans le piège lorsque la puissance d’excitation augmente. L’évolution de l’énergie avec la puissance montre une différence de régime entre les deux températures : à faible puissance, l’énergie de la raie excitonique diminue brusquement à 4 K (cf flèche bleue sur la figure 4.17a) tandis que sa variation demeure régulière à 8 K.

Sur la figure 4.17b, on constate que l’évolution de l’intensité avec la puissance fait apparaître un changement de pente pour les trois plus faibles puissances pour $T = 4$ K (matérialisé par les tirets bleus). A 8 K, il y a également un décrochement (matérialisé par les tirets rouges) de l’évolution de l’intensité avec la puissance : il se produit à une valeur de puissance plus élevée ($P/P_0 \sim 20$) qu’à 4 K⁵.

Relation Intensité vs Énergie dans le piège Enfin, la figure 4.17c donne l’évolution de l’intensité, I , spatialement intégrée dans la zone « lac » et spectralement intégrée dans l’intervalle (3,1 eV - 3,2 eV) en fonction de l’énergie, E_{PL} , du maximum d’émission. Pour le régime des hautes densités ($I > 10^{-1}$ sur la figure 4.17c) et des hautes énergies ($> 3,15$ eV) les évolutions $I(E_{PL})$ des mesures à 4 K et à 8 K, de l’intensité de la

5. Cette diminution de luminescence pourrait résulter de la localisation des excitons sur les fluctuations du potentiel désordonné : la localisation contribue à une baisse de l’intensité de l’émission, et son apparition est favorisée par les faibles puissances et des températures pas trop faibles pour permettre à l’exciton d’explorer convenablement le potentiel du désordre (cf discussion sur la forme en « S » des courbes de Varshni, § 2.3). Ainsi, à une température plus élevée, correspond un seuil de puissance plus important.

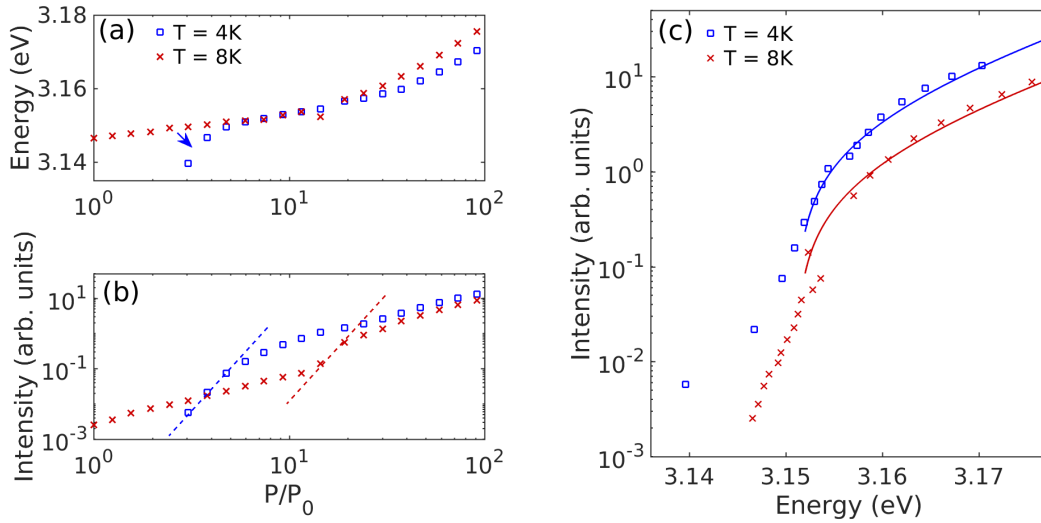


FIGURE 4.17 – Influence de la puissance d’excitation sur l’énergie et l’intensité de la raie excitonique. Les données sont celles des spectres de la figure 4.16 extraits dans la zone « lac excitonique ». Évolution de l’énergie (a), de l’intensité (b) de la raie excitonique en fonction de la puissance pour les deux températures 4 K, en bleu et 8 K en rouge. La figure (c) donne l’évolution de l’intensité en fonction de l’énergie de la raie excitonique à 4 K et à 8 K. Les courbes en traits continus sont les résultats de la modélisation (cf description dans le texte).

raie excitonique avec l’énergie, peuvent être modélisées de manière analogue à ce qui a été proposé au paragraphe 4.2.1 (cf équation 4.2). Pour tracer les courbes modèles (traits continus bleu et rouge, fig. 4.17c), nous avons choisi la même valeur pour le paramètre $\Phi_0\gamma = 176$ meV pour les deux températures 4 K et 8 K. Rappelons que cette grandeur $\Phi_0\gamma$ est un composite de deux phénomènes physiques distincts résultant de l’augmentation de la densité de porteurs : d’une part, la diminution de la durée de vie radiative (coefficient γ) et d’autre part, l’augmentation de l’énergie de la luminescence résultant de l’écrantage électrostatique du champ interne par les porteurs (coefficient Φ_0). La valeur de $\Phi_0\gamma$ obtenue par le fit dans cette situation est environ deux fois supérieure à celle qui a été obtenue par le fit des données hors piège (~ 84 meV, cf figure 4.2). Cette différence peut s’expliquer :

- d’une part, car le comportement dans le piège, associé à une propagation unidimensionnelle, possède vraisemblablement des caractéristiques d’émission différentes : la présence des bords du piège, favorisant la localisation des porteurs, affecte vraisemblablement la relation $I(E_{PL})$ dans le piège,
- d’autre part, car les mesures « hors piège » de la relation $I(E_{PL})$ s’appuient sur la zone spatiale en « forme de flèche », pour laquelle le transport latéral est fort et conduit les excitons dans un état plus loin de l’équilibre thermodynamique que ceux du « lac excitonique » étudié ici.

Enfin, nous notons que les données de la figure 4.17c correspondant aux faibles puissances d'injection ne sont pas convenablement modélisées par la relation $I(E_{PL})$ décrite précédemment. Notre hypothèse est qu'en deçà de $\sim 3,15$ eV, il y a une modification du régime d'émission qui pourrait être **due au désordre** : en effet, pour ces faibles puissances, les courbes $I(E_{PL})$ à 8 K et à 4 K sont sensiblement différentes et on peut penser qu'à 4 K, la **localisation jouant un rôle plus important**, l'énergie que le système excitonique est susceptible d'atteindre est nettement diminuée (on mesure une raie de PL dont le maximum d'émission est situé à 3,14 eV). Les temps d'intégration requis pour collecter la luminescence à faible puissance⁶ sont telles que nous n'avons pas développé de campagne expérimentale à des puissances encore plus basses pour explorer cette hypothèse.

4.4.2 Conditions optimales pour la réalisation d'un condensat excitonique

Propagation des excitons Dans le but de mieux comprendre la propagation et le piégeage des excitons, nous allons nous intéresser d'une part, aux cartographies de l'intensité spectralement intégrée obtenues avec un piège linéaire et un piège « S shape » et d'autre part, aux résultats de la modélisation du transport selon le modèle « drift-diffusion » dans ces mêmes pièges. Les figures 4.18a,c présentent les images en nuances de gris réalisées à l'aide d'une caméra CMOS placée après un filtre de bande spectrale (3,05–3,25 eV). D'abord, comme cela a été décrit précédemment, le profil est inhomogène dans la direction y : l'émission est plus forte au bord qu'au centre du piège (voir aussi les profils intégrés, fig. 4.18b,d), une explication de ce phénomène a déjà été proposée au paragraphe 4.3.2.

Uniformité du profil spatial : « lac excitonique » De plus, dans les conditions de forte puissance d'excitation qui sont celles de cette expérience (50 mW.cm^{-2}), les pièges fuient de façon importante. En effet, le spot laser (sa position est repérée par le point jaune) est entouré d'un halo circulaire qui suggère, qu'autour du spot, la densité de porteurs photocréés est suffisamment forte pour écranter le potentiel de piégeage $E_t \approx 30 \text{ meV}$. Comme ce halo est symétrique de révolution, il possède probablement une contribution due aux photons guidés-diffusés, comme sur la figure 4.9a. Cependant, le profil d'émission dans les régions éloignées du piège n'est évidemment plus à symétrie de révolution. Cela est particulièrement évident pour l'émission du piège « S shape ». Ainsi, ces expériences prouvent sans ambiguïté que l'émission aussi loin qu'à $100 \mu\text{m}$ du spot provient bien du transport excitonique et non pas de la diffusion de photons.

6. La série de mesures en puissance (cf fig. 4.16) s'étalait sur plusieurs heures et les acquisitions automatisées se terminaient de nuit.



Modélisation du transport 2D Pour aller plus loin dans l'étude du transport et afin de quantifier les paramètres pertinents de la propagation excitonique, nous appliquons le modèle proposé par RAPAPORT *et al.* [142, 41] (cf § 3.7) au cas du transport 2D avec un potentiel de piégeage. Afin de simplifier notre étude, nous faisons les hypothèses suivantes :

- les barrières sont parfaites (sans fuites),
- le potentiel de fond de piège est uniforme,
- le transport excitonique est limité par une distribution aléatoire de centres diffuseurs (modèle C de FEDICHKIN *et al.* [41]).

Le coefficient de diffusion des excitons est alors donné par $D_X = \ell \sqrt{2k_B T / M_X^\perp}$ où $M_X^\perp = 1,8 m_0$ représente la masse totale de l'exciton dans le plan et $\ell = 10$ nm est la longueur de diffusion de l'exciton. Ce dernier paramètre ainsi que la fraction de photons absorbés dans le puits quantique, $\alpha = 10^{-4}$, sont les seuls paramètres ajustables. Les résultats de la résolution numérique de l'équation de diffusion sont illustrés sur les figures 4.18,e-h : (e,g) pour le piège linéaire et (f,h) pour le piège « S shape ». Les simulations reproduisent la propagation et le remplissage des pièges, les profils d'intensité et d'énergie mais aussi la formation d'une région, située à ≈ 100 μm de distance du spot laser, où l'énergie d'émission et l'intensité sont quasi-uniformes : il s'agit du « lac excitonique ».

Effet des conditions d'excitation sur la largeur de raie Nous avons vérifié que les propriétés de l'émission excitonique dépendent de la position spatiale. Envisageons à présent le rôle de la configuration de l'excitation : comment la largeur de raie est-elle dépendante des conditions d'excitation, par exemple du diamètre du spot laser ? Pour cela, nous avons mis en œuvre trois protocoles d'excitation distincts :

- (i) une excitation ponctuelle, correspondant à une expérience de μPL , avec un spot de diamètre 1-2 μm , réalisée dans un piège linéaire, la détection (*ie* collection de lumière) se faisant dans le « lac excitonique » ;
- (ii) une excitation ponctuelle sur un échantillon sans piège, la détection se faisant à distance du spot ;
- (iii) une excitation sur une zone large d'un échantillon sans piège, avec un spot de diamètre ~ 130 μm , correspondant à une expérience de macro-photoluminescence, la détection se faisant sur la même zone spatiale.

Les figures 4.19 et 4.20 présentent les résultats obtenus selon ces différents protocoles, réalisés à 4 K. Afin de faciliter la comparaison, nous avons systématiquement ajusté la puissance afin que les différentes émissions s'effectuent à la même énergie. Deux jeux de puissances sont illustrés, ils correspondent aux puissances $P/P_0 = 91,7$ et $P/P_0 = 9,3$

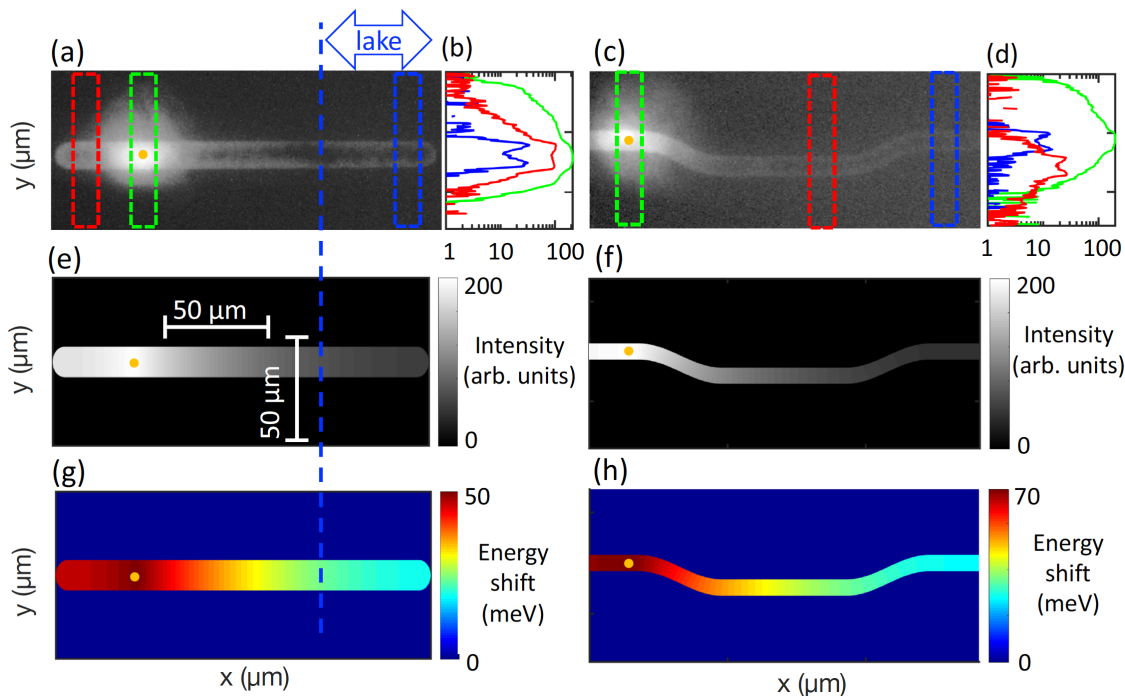


FIGURE 4.18 – Cartographie en nuance de gris de l'intensité intégrée dans la bande spectrale (3,05–3,25 eV) pour le piège linéaire (a), et le piège « S shape » (c) pour une puissance d'excitation $P = 50 \text{ mW.cm}^{-2}$. La position du spot laser est repérée par les points jaunes. Les profils d'intensités (b) et (d) correspondent à l'intégration selon la coordonnée x , des fenêtres spatiales délimitées par les zones rectangulaires en tirets de couleurs similaires. Les figures (e-h) sont les résultats du modèle de « drift-diffusion » qui sont les cartographies des intensités (e,f) et des décalages énergétiques ΔE (dus au *blueshift*) (g,h). La zone « lac excitonique » est délimitée par les tirets bleus : les variations d'intensité de PL et d'énergie, et par conséquent de la densité excitonique, y sont faibles.

de la figure 4.16a. D'après les *blueshifts*, la densité y est estimée à $\approx 4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et à $\approx 3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ respectivement.

On constate que, quelle que soit la puissance d'excitation, **la raie de PL excitonique collectée dans le « lac »** (protocole (i)) est **nettement plus fine** ($\sim 8\text{-}9 \text{ meV}$) qu'avec les protocoles (ii) et (iii). On remarque également que la raie obtenue à la plus haute puissance à $15 \mu\text{m}$ du spot (protocole (ii), courbe bleue de la figure 4.20) possède les mêmes caractéristiques spectrales que celle obtenue en macroPL (protocole (iii), en rouge de la même figure). Cela suggère que, **même à $15 \mu\text{m}$ de distance du spot d'excitation, les excitons ne sont pas suffisamment thermalisés**. Ainsi, dans ce régime de densité excitonique, l'unique manière d'accéder à un fluide excitonique dense et thermalisé est de créer le piège adapté.

Lorsque la puissance d'excitation est plus faible, la raie excitonique est toujours plus étroite dans le « lac » (protocole (i)), voir figure 4.19. Dans ce régime, l'utilisation de la microPL sans piège (protocole (ii), courbe bleue de la figure 4.19) fournit des



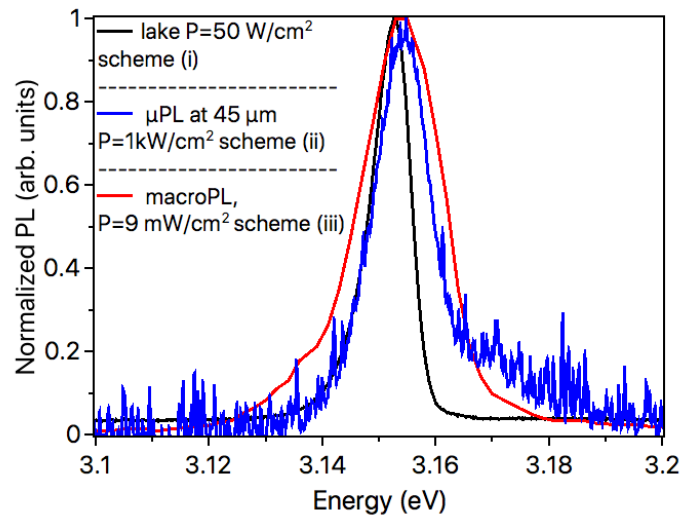


FIGURE 4.19 – Jeu de trois spectres obtenus selon trois techniques différentes d’excitation, notées (i), (ii) et (iii) (voir texte). Ce jeu correspond à une situation de « faible » densité de porteurs photocréés, l’énergie de la transition étant autour de 3,15 eV. La courbe noire est le résultat du protocole (i), μ PL dans le « lac ». La courbe bleue est le résultat du protocole (ii), μ PL hors piège. La courbe rouge résulte du protocole (iii), macroPL hors piège. Les mesures sont réalisées à 4 K.

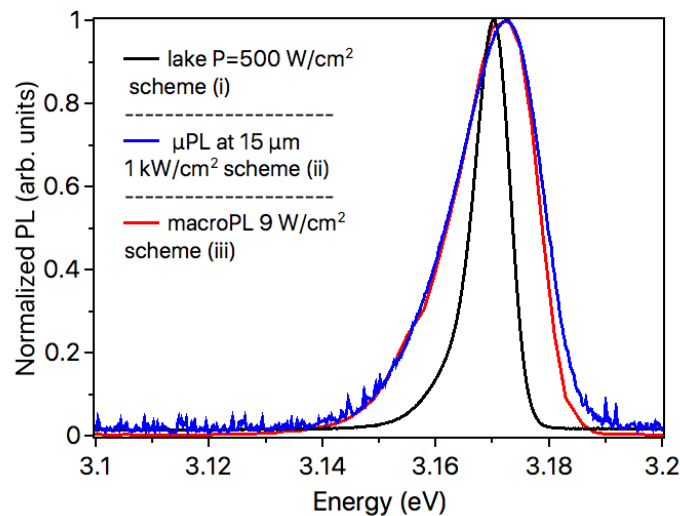


FIGURE 4.20 – Jeu de trois spectres obtenus selon trois techniques différentes d’excitation, notées (i), (ii) et (iii) (voir texte). Ce jeu correspond à une situation de « forte » densité de porteurs photocréés, l’énergie de la transition étant autour de 3,17 eV. La courbe noire est le résultat du protocole (i), μ PL dans le « lac ». La courbe bleue est le résultat du protocole (ii), μ PL hors piège. La courbe rouge est le résultat du protocole (iii), macroPL. Les mesures sont réalisées à 4 K.

raies plus fines que la macroPL (protocole (iii), courbe rouge et la même figure) du fait de la **meilleure sélectivité spatiale de la mesure en microPL** (la macroPL intégrant l'émission sur une large zone spatiale). Il faut noter que ce protocole a permis de mesurer les raies les plus fines en comparaison avec la littérature [109], pour des puits quantiques GaN/AlGaN d'épaisseur/énergie d'émission analogues (cf fig. 2.12).

Effet de la géométrie de piège sur la largeur de raie La figure 4.21 compare la raie spectrale détectée dans la région uniforme, « lac excitonique », d'un piège linéaire et celle obtenue sur le bord d'un piège circulaire de diamètre $D = 40 \mu\text{m}$ (aussi loin que possible du spot laser, ici à $23 \mu\text{m}$ du spot). Nous avons ajusté la puissance du laser de manière à garder la même énergie d'émission dans les deux cas. Dans ces conditions, la densité de porteurs estimée dans le « lac » est de $n \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, l'énergie de PL étant de l'ordre de $3,17 \text{ eV}$. On constate que le spectre est plus étroit ($\text{FWHM} \sim 8 \text{ meV}$) et davantage symétrique dans le cas de la zone « lac » du piège linéaire que dans le cas du bord de piège circulaire. Cela s'explique par le fait que, dans ce piège circulaire de petites dimensions et, dans ce régime de relativement forte injection, le potentiel de piégeage est quasiment annulé par l'effet des charges photocréées. Si bien que la raie d'émission excitonique ne parvient pas à se distinguer de l'émission large que constitue la lumière guidée-diffusée (cf § 4.2.1) :

- provenant des photons produits sous le spot,
- guidée dans le plan de l'échantillon,
- et diffusée par les rugosités de surface.

Cet inconvénient disparaît lorsqu'on collecte la lumière dans le « lac excitonique » : non seulement, la zone spatiale uniforme située à $100 \mu\text{m}$ de distance contient de nombreux porteurs grâce à sa géométrie quasi unidimensionnelle, mais la lumière guidée-diffusée, qui est sujette à la dilution radiale (*ie* diminuant en $1/r$), est nettement amoindrie.

4.4.3 Modélisation de la dépendance en densité

Dans le but d'explorer le diagramme de phase du fluide excitonique dans le plan (*température, densité*), nous varions les conditions expérimentales de température et de puissance du laser d'excitation. Pour déterminer les valeurs de la densité, nous nous basons sur la *modélisation des raies spectrales* qui a été présentée dans la section 3.4 du chapitre 3. Afin de rendre compte des données expérimentales, il nous a fallu adapter l'outil modélisant la forme des raies spectrales de luminescence en introduisant un terme empirique permettant d'ajuster l'allure de la raie à nos observations. C'est pourquoi, avant de présenter les résultats des « *fits* » des formes de raies de PL et de les discuter, nous décrivons la modification empirique que nous avons utilisée.



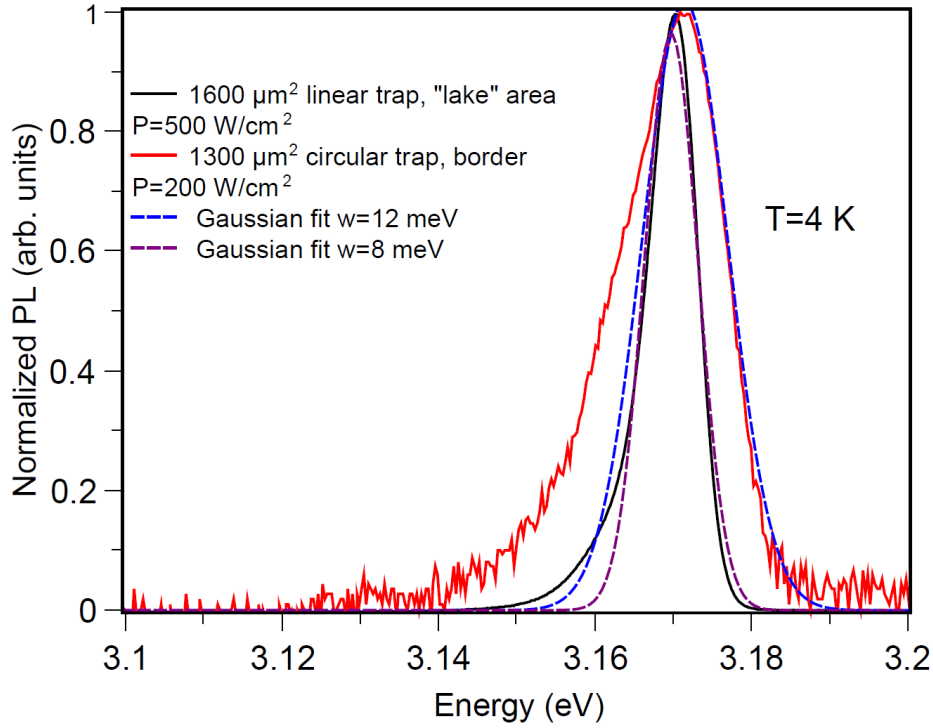


FIGURE 4.21 – Spectres mesurés dans le « lac excitonique » du piège linéaire (courbe noire) et au bord d'un piège circulaire de diamètre $D = 40 \mu\text{m}$ (courbe rouge).

4.4.3.1 Transition interbande

On constate expérimentalement que la raie de luminescence, $I_{PL}(E)$, possède une forme exponentielle tant sur le flanc haute que sur le flanc basse énergie⁷ :

$$I_{PL}(E) \propto \exp(\pm E/k_B T_{eff}) \quad (4.4)$$

T_{eff} étant le paramètre *contrôlant la pente* des flancs du spectre en représentation logarithmique. Pour décrire la forme de cette raie de photoluminescence, $I_{PL}(E)$, nous utilisons *le produit* d'une fonction exponentielle phénoménologique pour rendre compte du flanc basse énergie par le taux d'émission spontanée, $R_{sp}(\hbar\omega)$

$$I_{PL}(\hbar\omega) \propto \exp\left(\frac{\hbar\omega - E_g^{QW}(n)}{\eta}\right) \times R_{sp}(\hbar\omega) \quad (4.5)$$

où $E = \hbar\omega$ est l'énergie du photon émis, η est un paramètre de fit et

$$E_g^{QW}(n) = E_0 + \Phi_0 n \quad (4.6)$$

7. Notons que de telles formes spectrales sont également observées par STERN *et al.* [24]. Nous en avons cherché une explication sans parvenir toutefois à une hypothèse qui soit pleinement satisfaisante. C'est donc l'approche pragmatique du terme empirique que nous avons utilisée.

est la relation entre l'énergie de l'état de fondamental de la transition et la densité de porteurs.

Est-il légitime d'utiliser une approche fermionique pour décrire la luminescence d'une raie excitonique? Généralement, les études portant sur les CQWs GaAs s'intéressent à quelques paramètres de la raie de luminescence (son énergie, son intensité et sa largeur à mi-hauteur) mais ne modélisent pas le profil complet de la raie de PL, avec deux décades de rapport signal à bruit. Or, il est vraisemblable que l'allure d'une telle raie résulte des corrélations excitons-excitons (cf STERN *et al.* [24]). Nous pensons que les interactions répulsives inter-excitons associées à la coexistence du plasma électron-trou sont à l'origine du flanc basse énergie et qu'elles justifient l'utilisation d'une statistique fermionique, telle que nous l'avons mise en œuvre dans cette approche pragmatique.

Le taux d'émission spontanée (cf éq. 3.41)

$$R_{\text{sp}}(\hbar\omega) = \frac{1}{\tau_{\text{rad}}(n)} D_{\text{cv}}^{2D}(\hbar\omega) \times f_c(\hbar\omega) \times (1 - f_v(\hbar\omega)) \quad (4.7)$$

est le produit de trois termes :

1. Le taux de transition radiatif ($1/\tau_{\text{rad}}(n)$), qui augmente lorsque la densité de porteurs augmente.
2. La densité bidimensionnelle d'états conjoints D_{cv}^{2D}

$$D_{\text{cv}}^{2D}(\hbar\omega) = \frac{\mu_X^\perp}{\pi\hbar^2} \mathcal{H}(\hbar\omega - E_g^{\text{QW}}(n)) \quad (4.8)$$

où μ_X^\perp est la masse réduite de la paire électron-trou dans le plan, \mathcal{H} l'échelon unitaire d'Heaviside.

3. Les taux d'occupation (respectivement de déplétion), $f_c(\hbar\omega)$ ($1 - f_v(\hbar\omega)$) de la bande de conduction (de valence). Ces derniers sont donnés par la statistique de Fermi-Dirac :

$$f_c(\hbar\omega) = \left\{ \exp\left(\frac{E_\perp^e(\hbar\omega) - E_{F,e}}{k_B T_c}\right) + 1 \right\}^{-1} \quad (4.9)$$

$$f_v(\hbar\omega) = \left\{ \exp\left(-\frac{E_\perp^h(\hbar\omega) - E_{F,h}}{k_B T_c}\right) + 1 \right\}^{-1}. \quad (4.10)$$

Les quasi-niveaux de Fermi E_{F_e} (E_{F_h}) pour les électrons (pour les trous) sont reliés à la densité de paires n , et à la *température effective des porteurs* T_c selon :

$$E_{F_{e(h)}} = k_B T_c \ln \left[\exp\left(n \frac{\pi\hbar^2}{m_{e(h)}^\perp k_B T_c}\right) - 1 \right]. \quad (4.11)$$



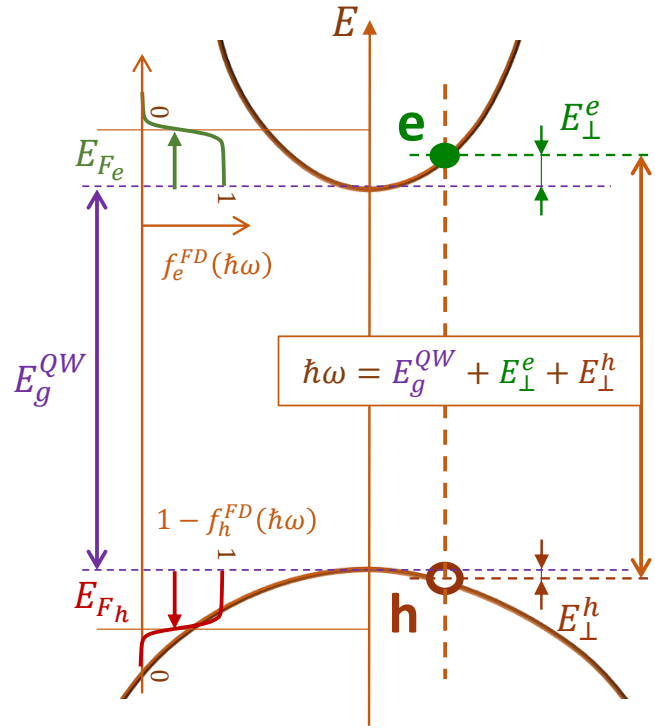


FIGURE 4.22 – Schéma énergétique de la transition interbande dans lequel l'équation $\hbar\omega = E_g^{QW} + E_{\perp}^e + E_{\perp}^h$ traduit la conservation énergétique : l'énergie cinétique de la paire e-h dans le plan contribue à l'élargissement de la raie spectrale.

L'énergie cinétique des électrons (des trous) E_{\perp}^e (E_{\perp}^h) s'obtient par une pondération de la différence $(\hbar\omega - E_g^{QW}(n))$ entre l'énergie du photon et le niveau d'énergie fondamental de la transition,

$$E_{\perp}^{e(h)}(\hbar\omega) = \frac{m_{h(e)}^{\perp}}{m_e^{\perp} + m_h^{\perp}}(\hbar\omega - E_g^{QW}(n)) \quad (4.12)$$

où le coefficient de pondération ne fait intervenir que les rapports des masses effectives dans le plan de l'électron m_e^{\perp} et du trou m_h^{\perp} . La figure 4.22 illustre les différentes contributions intervenant dans l'énergie d'un photon résultant de la recombinaison interbande d'une paire e-h, dont l'équation du bilan énergétique est

$$\hbar\omega = E_g^{QW} + E_{\perp}^e + E_{\perp}^h. \quad (4.13)$$

4.4.3.2 Résultats du fit de la forme de raie

Grâce à la procédure de modélisation de spectre décrite au paragraphe précédent, nous pouvons reproduire au mieux les résultats expérimentaux. Les résultats du fit sont représentés sur la figure 4.23. Durant la procédure de fit, le **seul paramètre libre de varier est la densité** de paires, n . Les paramètres E_g^{QW} , η et T_C sont ajustés pour

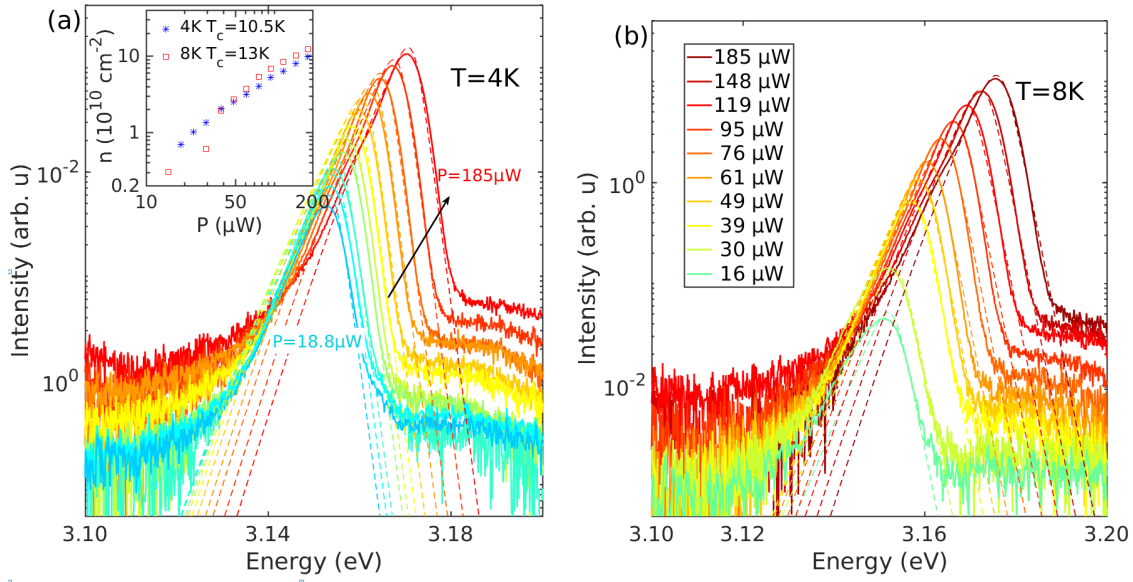


FIGURE 4.23 – Résultats de la procédure de fit appliquée aux deux séries en puissance obtenues dans les conditions expérimentales de température nominale $T=4\text{ K}$ et $T=8\text{ K}$. (a) spectres de photoluminescence obtenues pour une série de 11 puissances réalisées à 4 K . Les traits pointillés sont les spectres modèles (voir description dans le texte). (b) série de spectres réalisés à 8 K . L’encart de la figure a) illustre la dépendance en puissance des valeurs de densités issues de la modélisation pour chacune des deux séries 4 K et 8 K . La température des porteurs, T_C , a été fixée pour toutes les puissances d’une même série.

Série	η/k_B	E_g^{QW}	T_C
4K	32 K	3,1559 eV	10,5 K
8K	32 K	3,1569 eV	13,5 K

TABLE 4.1 – Paramètres utilisés pour la modélisation des séries de spectres en puissance.

fitter à la fois l’allure des spectres et leur variation en intensité. Les valeurs utilisées pour ces trois paramètres sont données dans la table 4.1.

On constate que le paramètre E_g^{QW} possède des valeurs proches 3,156 eV et 3,157 eV pour ces deux températures. En revanche, les températures de porteurs T_C sont significativement différentes dans les deux situations. Nous pensons que la différence entre la température des porteurs T_C et la température **nominale** du réseau T s’explique par la mauvaise thermalisation du cristal de l’échantillon dans le cryostat à doigt froid⁸. Ainsi, sa température réelle, T_R , est-elle supérieure à la valeur nominale T , si bien que l’on a $T_R \approx T_C$ pour les deux situations expérimentales dont les températures nominales sont

8. Par température nominale, on entend valeur indiquée sur l’écran d’affichage du régulateur thermique intégré au cryostat. Une étude thermique plus poussée (cf §I.3) a montré que la température réelle de l’échantillon était en général significativement supérieure.



4 K et 8 K.

4.4.3.3 Discussion

L'ambiguïté entre forme de raie « fermionique » et fluide d'excitons indirects est notée depuis longtemps dans les CQWs GaAs [24]. Mais SCHINNER *et al.* [59, 60] expliquent aussi que, dans un liquide dipolaire bosonique, la forte répulsion dipolaire dans le plan du puits remplace le rôle du principe d'exclusion de Pauli dans la distribution de Fermi-Dirac⁹.

Afin de dégager le sens physique des résultats obtenus, nous choisissons de représenter les deux grandeurs mesurées *intensité* et *énergie* de la raie de luminescence en fonction de la densité qui a été estimée par notre modèle. L'idée principale est que nous pouvons contrôler, dans la région « lac excitonique », la densité et la température du fluide d'excitons.

La détermination de la densité de porteurs dans la nanostructure à puits quantique est une question délicate car elle suppose la connaissance des interactions excitons-excitons. Dans l'hypothèse du modèle de condensateur plan [141, 146, 41] où le décalage énergétique est une fonction linéaire de la densité spécifiée par le paramètre Φ_0 ¹⁰ (voir description au chapitre 3.5), nous synthétisons les résultats sur la figure 4.24. L'énergie (cercles rouges, axe de droite) et l'intensité intégrée (cercles bleus, axe de gauche) de la raie d'émission excitonique sont tracées en fonction de la densité excitonique extraite depuis le modèle (traits continus). Cette représentation nous permet de distinguer le rôle des deux contributions distinctes dans le décalage énergétique de l'émission :

- l'écrantage du champ interne ($E_g^{QW} + \Phi_0 n$), en pointillés rouges,
- le remplissage d'espace des phases qui conduit à un décalage énergétique supplémentaire de l'émission et qui peut être décrit comme la variation du niveau de Fermi

$$E_F = E_{max} - E_g^{QW} - \Phi_0 n \quad (4.14)$$

où E_{max} est l'énergie du maximum d'émission de PL. Ce décalage énergétique apparaît sur la figure 4.24 comme la différence entre la courbe rouge en traits pleins, montrant le modèle complet, et la courbe rouge en pointillés, montrant le résultat que l'on aurait en ne prenant en compte que l'écrantage du champ interne (*ie* un *blueshift* énergétique).

9. Leur analyse du profil de raie est d'ailleurs très différente, à base de lois de puissance $I \propto (E - E_0)^a$ inspirées par des modélisations de spectres d'absorption de boîte quantique unique, dont la pertinence est sujette à discussion.

10. Nous aurions aussi pu nous appuyer sur les données de la figure 3.22.



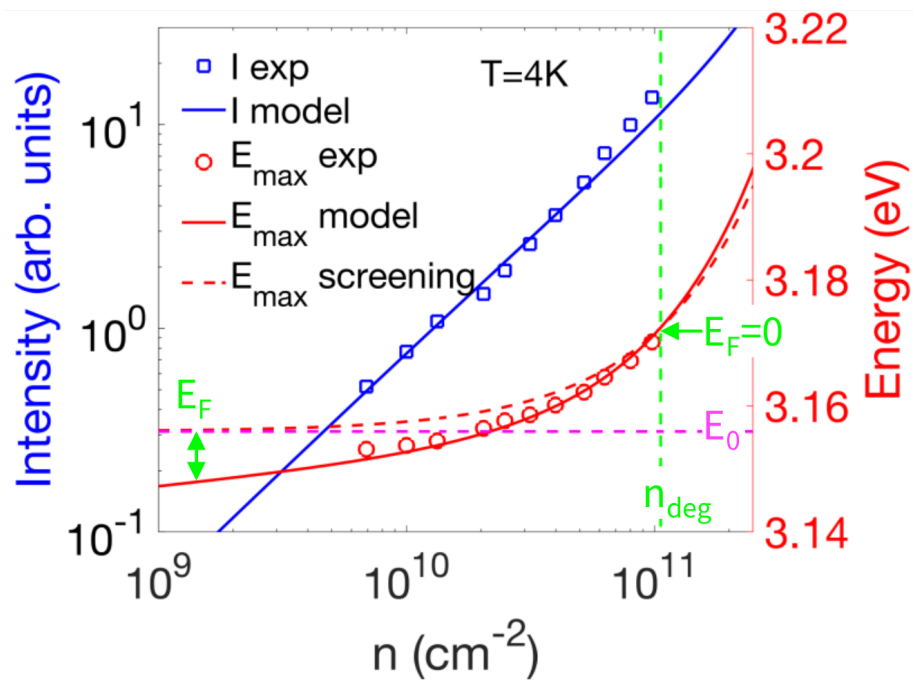


FIGURE 4.24 – Intensité intégrée (axe de gauche), et énergie du maximum de la raie spectrale (axe de droite) en fonction de la densité de porteurs extraite des données expérimentales (symboles) et de la modélisation (ligne continue) correspondant aux données à 4 K de la figure 4.23. Les courbes en pointillés montrent la densité correspondant aux conditions de dégénérescence (vert), l'énergie du puits vide, E_g^{QW} (magenta) et la variation calculée de l'énergie du puits quantique induite par l'écrantage du champ interne par les porteurs.

Un niveau de Fermi négatif est la situation dans laquelle l'énergie E_{max} du pic de photoluminescence est inférieure à l'énergie déterminée par l'effet d'écrantage $E_g^{QW} + \Phi_0 n$, si bien que le gaz d'électrons-trous créé par injection optique est non dégénéré ($n < n_{deg}$).

On constate que le décalage d'énergie de Fermi est non négligeable à faible densité, du moins dans le cadre des approximations effectuées. Enfin, même pour la valeur maximale de densité atteinte dans le « lac », les porteurs demeurent **dans la limite non-dégénérée**, $n < n_{deg} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, qui correspond à $E_F < 0$. La valeur de la densité limite n_{deg} est bien en deçà de la transition de Mott excitonique, dont on attend l'apparition progressive vers $n_{Mott} = 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, si bien que des excitons sont censés être encore présents au sein du liquide électron-trou, dans le cas d'une coexistence de ces deux phases.

Enfin, l'intensité spectralement intégrée de l'émission est convenablement décrite par le modèle et elle augmente pratiquement linéairement avec la densité excitonique, au moins jusqu'à $P = 5 \mu\text{W}$. Cela signifie que la densité de porteurs est, dans ces conditions d'excitation, suffisamment faible pour que l'intensification exponentielle du taux d'émission radiatif demeure négligeable, par opposition avec ce qui est habituellement observé dans les hétérostructures polaires à plus forte densité de porteurs [147, 42, 144, 139, 148].

4.5 Synthèse : effet du piégeage et capacité à explorer le diagramme de phase température-densité

Atouts du piège linéaire Au vu de ce qui précède, les conditions pour la réalisation et pour l'observation d'un fluide dense thermalisé d'excitons susceptible de former un condensat quantique sont optimales pour le piège linéaire car :

- la thermalisation du fluide est assurée par une distance suffisante entre le spot laser et le fluide excitonique. On a établi que la géométrie de piège linéaire permet de conserver les raies étroites même à forte densité ;
- l'uniformité de la densité spatiale (critère indispensable pour mettre en évidence expérimentalement la cohérence spatiale du condensat) existe dans la zone « lac » du piège linéaire ;
- le caractère quasi-unidimensionnel de la propagation dans le piège linéaire permet l'obtention de grandes densités d'excitons, même loin du spot ;
- la collecte de la luminescence n'est pas parasitée par la lumière guidée-diffusée comme c'est le cas sans piège ou avec d'autres géométries non filiformes.



Les conclusions que nous pouvons tirer de ce chapitre sont les suivantes.

- Nous avons pu mettre en évidence le bon fonctionnement des pièges électrostatiques réalisés à partir du dépôt d'électrodes métalliques. La valeur expérimentale du potentiel de confinement est $E_t \approx 30$ meV. Le mécanisme de piégeage tel qu'on l'a observé est conforme à ce que nous attendions : notamment, si la densité excitonique est telle que les interactions excitoniques répulsives engendrent un *blueshift* qui dépasse la hauteur de barrière, une partie des excitons s'échappent du piège.
- Grâce aux pièges électrostatiques, le contrôle de la température et de la densité peut être réalisé indépendamment. Un outil de modélisation spécifique, basé sur l'allure de la raie nous permet d'estimer la température et la densité du fluide d'excitons et ainsi de quantifier l'exploration du diagramme de phase.
- Dans les pièges, le régime des hautes densités (correspondant aux études réalisées antérieurement à ce travail de thèse [73]) n'a pas été exploré : on s'est effectivement limité à des *blueshift* énergétiques inférieurs à 30 meV. Cette limite étant également dictée par la hauteur de la barrière de potentiel de confinement.
- Les études par tomographie ont mis en évidence une intensification de la luminescence au niveau des bords de piège, aussi observée dans les pièges GaAs [70] : ces frontières constituent des zones où les recombinaisons radiatives sont exacerbées et où les excitons sont susceptibles de s'accumuler et se recombiner plus rapidement.
- Les phases « émergentes » pour lesquelles les propriétés purement quantiques sont attendues (gaz et/ou liquide quantique) ne sont probablement pas atteintes : les températures expérimentales ne sont vraisemblablement pas suffisamment basses pour que la transition vers un comportement quantique se manifeste.

Perspectives Voici deux problématiques pour lesquelles nous proposons une démarche expérimentale susceptible d'apporter des réponses.

1. Il nous faudrait trancher quant à la nature du système de charges photocréées en interaction : s'agit-il purement d'excitons, d'un plasma électron-trous (EHP), ou bien d'un mélange plasma + excitons. Pour cela, une étude **sous champ magnétique** doit nous permettre de discriminer les trois contributions énergétiques (cf § 2.4) : shift Landau (orbites cyclotroniques des charges e et h libres séparément), shift diamagnétique (exciton neutre, charges e et h liées), shift Zeeman (due à la structure de spin du système électron-trou). Cette étude est l'objet du chapitre 5.
2. L'application d'un potentiel électrostatique au niveau des électrodes nous permet de **varier la hauteur du potentiel de confinement**. Cette étude doit nous



permettre de sonder les conditions optimales, en termes électrostatiques, pour réaliser un condensat bosonique, elle est abordée au chapitre 6.





Chapitre 5

Mesures sous champ magnétique : mise en évidence de la coexistence entre les phases excitonique et plasma

Au chapitre précédent, nous avons montré qu'à l'aide de pièges électrostatiques, nous sommes capables de contrôler la densité et la température de fluides d'excitons dipolaires, ces grandeurs (densité et température) étant quantifiées à partir de l'analyse de la forme de la raie de PL. Toutefois, la nature du système de charges photocréées en interaction n'est pas connue avec certitude. Dans le paragraphe 3.6 du chapitre 3, nous avons donné les briques conceptuelles décrivant l'équilibre thermodynamique entre, d'une part, une phase homogène d'excitons et d'autre part, une phase d'électrons et de trous non liés à l'état de plasma. L'idée de l'étude sous champ magnétique est de savoir si la luminescence est véritablement celle d'excitons. Nous avons donc décidé d'adapter le montage de μ PL (fig. 2.15) pour mesurer la luminescence de l'échantillon en le plaçant au sein d'un cryostat magnéto-optique : l'application d'un champ magnétique perpendiculaire à la surface de l'échantillon (*ie* dans la configuration dite de « Faraday ») doit nous permet de distinguer

- un décalage énergétique de la raie PL dont l'évolution est **quadratique** avec le champ appliqué, caractéristique du diamagnétisme d'**excitons** (cf éq. 2.19),
- d'une évolution **linéaire** de l'énergie de cette raie, résultant de la quantification de Landau des orbites des charges non liées, caractéristique d'un **plasma** EHP (cf éq. 2.17).

Toutefois, la mise en œuvre de ce protocole s'est avérée délicate : ne disposant pas d'objectifs de microscopie compatibles avec les fenêtres de notre cryostat magné-



tique (fig. 2.17), nous avons dû nous contenter d'un système d'imagerie bien plus modeste (fig. 2.18) qui, non seulement ne permet pas la réalisation de spots laser aussi « ponctuels » que ceux utilisés dans les mesures précédentes (cf § 4.2.2 et fig. 4.7), mais également limite la résolution spatiale des profils de luminescence à environ une vingtaine de micromètres (contre environ 1 μm pour notre montage μPL).

De plus, les premières mesures ont mis en évidence une difficulté supplémentaire : l'échantillon étant placé à l'extrémité d'une canne d'environ 1,5 m de longueur, nous avons constaté une dérive mécanique de sa position pendant les rampes magnétiques. À l'aide d'un algorithme basé sur la corrélation d'images, nous avons tenté de remédier à cette dérive mais, d'une part, la reproductibilité de la dérive n'était pas bonne et, d'autre part, s'il était possible de corriger la dérive pour la collecte de luminescence, la résolution de la méthode n'était pas suffisante pour corriger *la variabilité de surface du piège qui est convenablement excitée par le spot laser*. En conséquence, nous nous sommes limités à une excitation optique en espace libre (*ie* en dehors des zones de pièges) : les excitons sont alors libres de se propager (cf fig. 4.1), ce qui soulève la question de discriminer

- le transport excitonique et surtout l'effet du champ magnétique sur les conditions de ce transport (cf § 2.4),
- du *shift* diamagnétique proprement dit, c'est-à-dire indépendamment du décalage énergétique (*blueshift*) résultant éventuellement de la modification locale de densité consécutive au changement des conditions de ce transport.

Nous avons donc optimisé le protocole afin de décorrélérer ces deux effets. Les résultats les plus significatifs sont ainsi obtenus avec une excitation laser volontairement élargie, le diamètre du spot étant de l'ordre de $\approx 300 \mu\text{m}$. Ce protocole, qui s'apparente à une **expérience de macroPL**, permet d'avoir une zone spatiale relativement uniforme en terme de densité de particules et pour laquelle nous avons accès au profil de luminescence : la résolution spatiale de ce profil, même limitée, demeure suffisante pour en tirer des conclusions, comme nous allons le voir dans cette section.

Sommaire

4.1	Genèse des échantillons	120
4.2	Mise en évidence du piégeage	121
4.2.1	Transport excitonique en l'absence de piège	121
4.2.2	Accumulation des excitons dans un piège linéaire	125
4.2.3	Effet du piégeage sous plus forte injection de porteurs	129
4.3	Influence de la géométrie du piège	131
4.3.1	Images de PL pour différentes géométries de pièges	131
4.3.2	Etude par tomographies du transport 2D	135



4.4	Thermodynamique du gaz d'excitons à partir des spectres de PL	140
4.4.1	Influence de la densité sur les spectres de PL	140
4.4.2	Conditions optimales pour la réalisation d'un condensat excitonique	144
4.4.3	Modélisation de la dépendance en densité	148
4.5	Synthèse : effet du piégeage et capacité à explorer le diagramme de phase température-densité	155

5.1 Motivations de l'étude sous champ magnétique

Limitations inhérentes à l'excitation ponctuelle et à la collecte de la luminescence dans le « lac excitonique » Le suivi attentif de l'évolution de la forme de raie avec la puissance d'excitation ne permet pas de rendre compte de l'émergence des corrélations excitons-excitons telles qu'elles devraient se produire lors de la formation d'une phase de liquide excitonique, qui est théoriquement prédite dans les conditions expérimentales de notre étude. En voici les nombreuses raisons :

- Tout d'abord, la transition de Mott ne s'accompagne d'aucun changement significatif de la forme de raie.
- Ensuite, les corrélations excitoniques ne sont pas considérées dans l'algorithme « Poisson-Schrödinger » utilisé pour estimer la densité (cf § 3.2.3) : la prise en compte de ces corrélations contribuerait à augmenter la valeur de densité que l'on estime à l'aide du modèle d'un décalage énergétique évoluant linéairement avec la densité (*ie* modèle « capacitif », cf § 3.5.6).
- De plus, l'énergie de liaison des excitons à la plus faible puissance d'injection et la valeur du *blueshift* typique pour les plus grandes densités sondées sont du même ordre de grandeur : 10 à 20 meV. Cela rend donc difficile de distinguer, d'une part, l'effet de la réduction de l'énergie de la liaison excitonique et d'autre part, l'effet de la réduction du champ électrique interne (cf fig. 3.5), ces effets résultant tous les deux de l'augmentation de la densité de porteurs.
- Dans la configuration expérimentale avec laquelle nous travaillons, une excitation ponctuelle dans un piège filiforme (cf § 4.2.2), la contribution de l'émission « bande à bande » (émission EHP) qui serait susceptible de donner accès à l'énergie de liaison des excitons [43, 149, 150], du moins pour les faibles puissances d'excitation, n'est ici d'aucun secours. En effet, lorsque la photoluminescence est collectée dans la région spatiale où l'excitation laser est appliquée, en se basant sur l'équation de Saha, loi d'action de masse qui décrit l'équilibre entre les concentrations du gaz



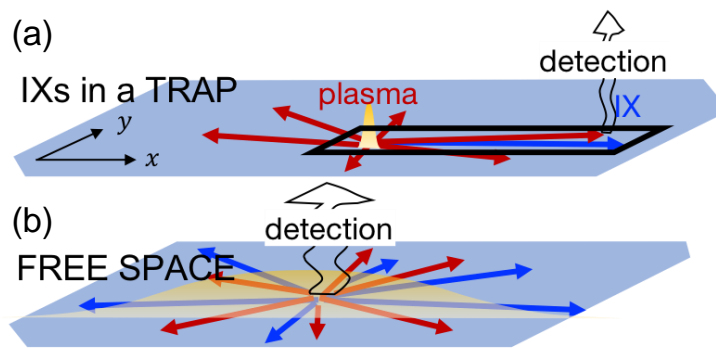


FIGURE 5.1 – Représentation artistique des deux méthodes expérimentales pour étudier l'émission des excitons indirects : (a) par excitation ponctuelle et une collecte de la luminescence émanant d'une zone spatiale éloignée située dans un piège électrostatique, (b) par une excitation large couplée à une détection au centre de cette excitation.

d'excitons (IX) et celles des porteurs libres ($e + h$) (cf § 3.6.1 et annexe D), il est possible de séparer les émissions des deux contributions de l'exciton et du plasma EHP [16]. Toutefois, cela n'est pas le cas pour une excitation ponctuelle, les excitons (IX) étant rapidement évacués de la zone d'excitation à cause de la forte répulsion dipôle-dipôle, **l'équilibre thermodynamique entre les IXs et le plasma EHP n'étant probablement jamais atteint** (cf fig. 5.1c). Ainsi, les spectres de luminescence des IX dans le « lac excitonique » ne contiendraient pas la contribution du plasma électron-trou provenant de l'excitation ponctuelle, et cela ne permettrait donc pas la détermination de l'énergie de liaison de l'exciton.

Spot d'excitation large et shift diamagnétique vs « shift cyclotron » Au vu de ces considérations, le protocole expérimental qui nous intéresse dans ce chapitre diffère donc légèrement de celui qui est utilisé pour l'étude des pièges électrostatiques (chap 4). Nous avons en effet mis en œuvre une démarche qui se base sur deux idées clés.

- Au lieu d'une excitation ponctuelle, nous optons pour une excitation *via* un spot laser large et homogène ($\approx 300 \mu\text{m}$). La collecte de la luminescence se fait au centre d'une telle excitation. Notre idée est de détecter simultanément la luminescence des IXs et aussi celle du plasma EHP et ainsi quantifier l'énergie et l'intensité de chacune de ces contributions spectrales lorsque l'on varie la puissance d'excitation et la température.
- En appliquant un champ magnétique dans la direction parallèle à la direction de croissance, nous cherchons à savoir si le décalage énergétique de la raie de PL évolue de manière quadratique ou de manière linéaire.

5.2 Luminescence sous champ magnétique

Le montage expérimental mis en œuvre pour l'étude sous champ magnétique est présenté sur la figure 2.18 et décrit au paragraphe 2.6.2 : notre dispositif permet d'appliquer un champ magnétique jusqu'à 9 T, en régulant la température de l'échantillon placé dans un environnement d'hélium gazeux. La luminescence résultant d'une excitation laser large est collectée, et un spectromètre imageur fournit des images PL, dont la résolution spatiale est toutefois moindre que celle permise par le montage de μ PL utilisé pour les expériences présentées au chapitre 4.

Les figures 5.2 et 5.3 illustrent l'effet du champ magnétique sur le transport à $T = 7$ K et à $T = 14$ K respectivement : chacune de ces figures représente les images PL obtenues dans des situations de puissances et de champs magnétiques différentes. Les figures (a) et (b) comparent, pour la plus forte puissance (90 mW.cm^{-2}), deux configurations de champ magnétique $B = 0$ T et $B = 9$ T ; les figures (c) et (d) permettent la même comparaison pour une puissance d'excitation plus faible ($2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$). Le profil d'intensité du spot d'excitation est tracé en tirets noirs. Les courbes en pointillés bleus facilitent la visualisation du profil spatial de l'énergie du pic de la raie IX, *i.e.* du profil de la densité d'excitons.

Profils d'énergie et densité d'excitons Considérons d'abord le cas $B = 0$ T (fig. 5.2a,c et 5.3a,c). Le profil énergétique montre que l'énergie de la raie IX diminue à mesure que l'on s'éloigne de la zone centrale d'excitation, de manière similaire à ce que l'on observe dans le cas d'une excitation ponctuelle hors piège (cf § 4.2.1). A partir de la décroissance de ces profils spatiaux de l'énergie et de l'intensité radiative, on peut remonter à la décroissance de la densité d'excitons avec la distance au spot laser : leur densité est maximale dans la zone centrale du spot. Le *blueshift* maximal atteint est de, $E_{\text{BS}} = 40$ meV pour la plus forte puissance d'excitation ayant pu être explorée (cf fig. 5.2a et 5.3a). Pour la plus faible puissance d'excitation, le *blueshift* maximal est $E_{\text{BS}} = 8$ meV (cf fig. 5.2c et 5.3c). A partir de ces valeurs de *blueshift*, on peut estimer la densité excitonique en utilisant la relation $n = E_{\text{BS}}/\Phi_0$, avec $\Phi_0 = 1,59 \times 10^{-13} \text{ eV.cm}^2$ (cf éq. 3.16, § 3.2.4). Notons que cette estimation pourrait être affinée en prenant en compte les corrélations entre excitons, qui deviennent importantes à basse température et aux hautes densités (cf fig. 3.22 et § 3.5.6).

Comme cela a été discuté (cf § 3.5 et fig. 3.21) et comme il le sera plus loin (cf fig. 5.8), les corrélations excitoniques sont susceptibles d'accroître notablement la densité d'excitons nécessaire à un *blueshift* donné [52, 151, 53].

Effet de la puissance d'excitation sur le transport des IXs A partir des profils d'émission mesurés à champ $B = 0$ T pour la plus grande des puissances,



$P = 90 \text{ mW.cm}^{-2}$, nous constatons que, malgré une excitation très élargie par rapport à la situation expérimentale du chapitre 4, le transport des IXs est encore clairement visible. En effet, le profil d'émission possède une largeur à mi-hauteur (FWHM) d'environ $800 \text{ }\mu\text{m}$ alors qu'elle est de $300 \text{ }\mu\text{m}$ pour le spot laser. Tandis qu'à la plus faible puissance, $P = 2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$, le transport excitonique n'est seulement visible qu'à 7 K (cf fig. 5.2c, où la FWHM de l'émission est la même qu'à forte puissance), à 14 K le profil d'émission coïncide quasiment avec celui de l'excitation (cf 5.3c). La réduction du transport des excitons indirects avec la diminution de puissance à $T = 14 \text{ K}$ est un phénomène déjà observé et bien compris [41, 42]. La modélisation du transport des excitons indirects par les équations de « drift-diffusion » (cf § 3.7) montre que cela est dû à la diminution des répulsions dipôle-dipôle, dont l'intensité dépend de la densité de particules. La localisation au niveau des interfaces du puits quantique est probablement plus efficace à faible densité : ce phénomène pourrait également gêner le transport. Au contraire, la persistance du transport à 7 K est plutôt surprenante, tout particulièrement parce que la localisation des porteurs est plutôt censée être facilitée par une réduction de la température. Cette observation suggère que les interactions entre les IXs sont affectées par le changement de température entre 14 K et 7 K .

Champ magnétique et transport L'effet du champ magnétique sur le transport, dans la limite de $B = 9 \text{ T}$, est visiblement très faible : à partir des images PL des figures 5.2 et 5.3, on constate que les largeurs à mi-hauteur des profils d'émission sont très peu changées lorsque le champ évolue de la situation à champ nul, $B = 0 \text{ T}$, vers la situation de champ maximum, $B = 9 \text{ T}$.

Comme nous l'avons indiqué au début de cette section, nous avons essayé plusieurs configurations de taille de spot pour mesurer les *shifts* magnétiques dans le cryostat magnétique. La décorrélation entre transport et champ magnétique obtenue par la configuration de « grand spot laser » présentée ici s'est avérée la plus pertinente pour bien interpréter nos résultats. En comparaison, la configuration « petit spot laser » (diamètre $\approx 15 \text{ }\mu\text{m}$, non présentée ici) permettait, *a priori*, l'intérêt de séparer spatialement la zone d'excitation et la zone de détection, mais ce ne fut pas le cas. Enfin, les dérives mécaniques pendant les rampes de champ magnétique n'ont pas permis d'étudier les fluides d'excitons dans les pièges de manière suffisamment reproductible. C'est donc la campagne expérimentale « sous grand spot laser et sans piège » qui s'est avérée la plus satisfaisante.

Excitons sous perturbation magnétique vs magnéto-excitons Le comportement des excitons indirects dans GaN semble significativement différent de celui que l'on observe pour les excitons indirects des puits quantiques couplés (CQWs) dans



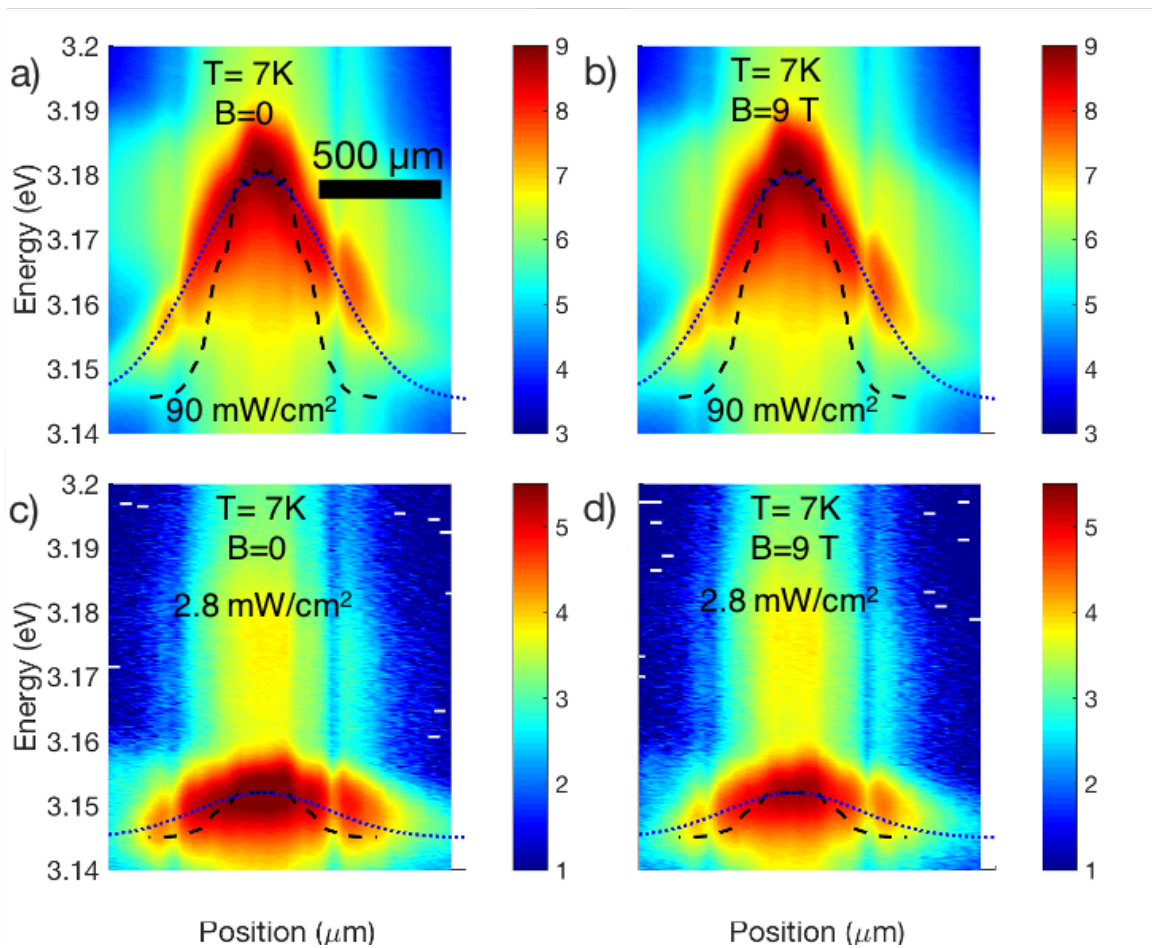


FIGURE 5.2 – Images PL (intensité encodée en échelle log.) mesuré à $T = 7$ K, pour deux puissances d'excitation : $P = 90 \text{ mW.cm}^{-2}$ (a, b), $P = 2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$ (c, d), et deux valeurs de champ magnétique : $B = 0$ T (a, c), $B = 9$ T (b, d). Le profil d'intensité du spot d'excitation est tracé en tirets noirs. Les courbes en pointillés sont tracées pour aider à comparer le profil spatial de l'énergie de la raie IX par rapport au profil de l'excitation.

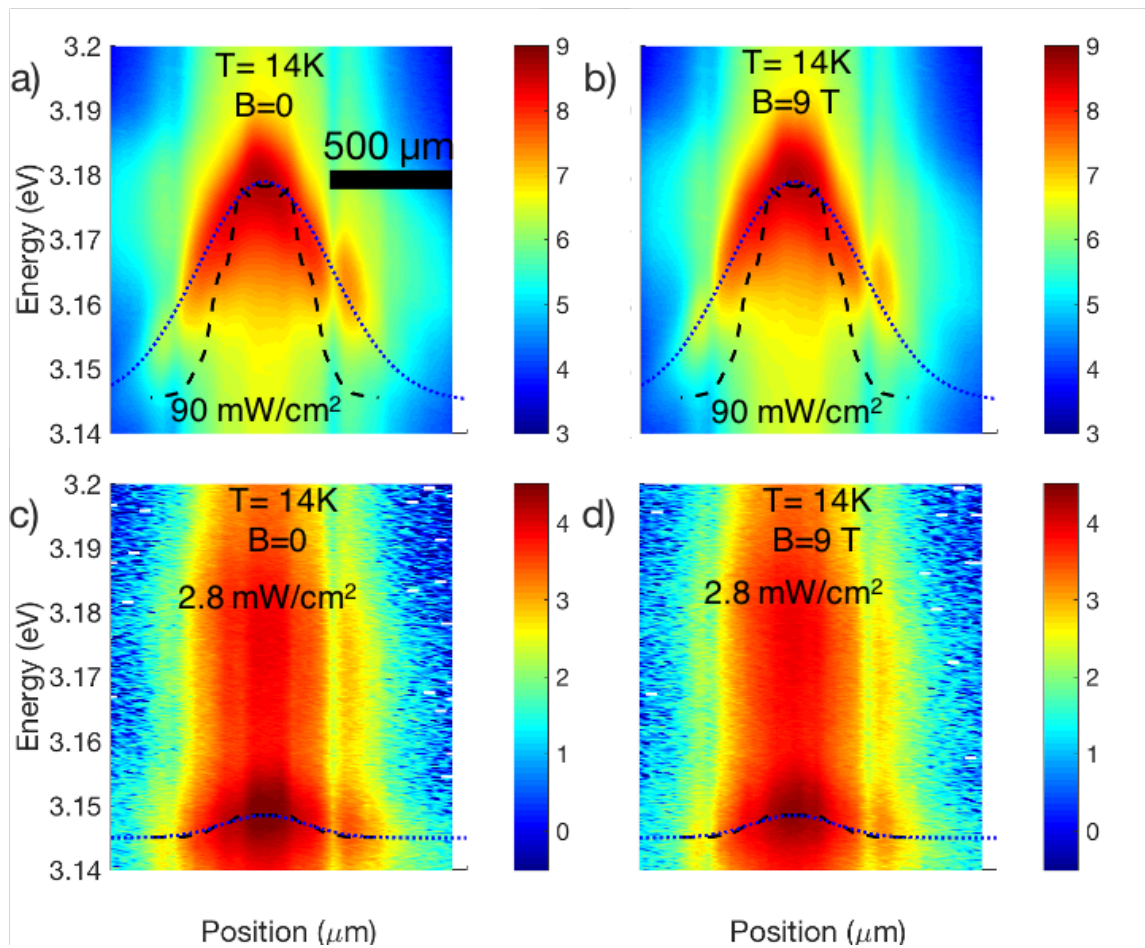


FIGURE 5.3 – Images PL (intensité encodée en échelle log.) mesuré à $T = 14\text{ K}$, pour deux puissances d’excitation : $P = 90\text{ mW/cm}^2$ (a, b), $P = 2,8\text{ mW/cm}^2$ (c, d), et deux valeurs de champ magnétique : $B = 0\text{ T}$ (a, c), $B = 9\text{ T}$ (b, d). Le profil d’intensité du spot d’excitation est tracé en tirets noirs. Les courbes en pointillés sont tracés pour aider à comparer le profil spatial de l’énergétique de la raie IX par rapport au profil de l’excitation.

AlGaAs/GaAs pour lesquels des champs magnétiques de cette intensité réduisent fortement le transport des IXs [118, 75]. La raison est que les IXs évoluant dans les puits quantiques couplés AlGaAs/GaAs sont des particules beaucoup plus « larges »¹ : ainsi, même pour $B = 1$ T, leur rayon de Bohr dans le plan est supérieur à la longueur magnétique $\ell_B = \sqrt{\hbar/(eB)}$: $a_B > \ell_B$. Dans ces conditions, l'interaction magnétique joue un rôle prépondérant par rapport à l'interaction coulombienne et le système électron-trou doit être décrit comme un « magnéto-exciton » : l'énergie magnétique n'est plus correctement décrite comme une perturbation de l'état excitonique [152, 153, 110]. On constate en conséquence une réduction du coefficient de diffusion (cf éq. 3.104, § 3.7),

$$D_X = \ell \sqrt{2k_B T / M_X^\perp} \quad (5.1)$$

et de la mobilité $\tilde{\mu}_X = D_X / K_B T$ [118, 75], où ℓ est le libre parcours moyen de l'exciton et M_X^\perp sa masse totale dans le plan du puits quantique.

Pour les structures AlGaN/GaN qui sont étudiées dans ce travail et jusqu'à 10 T, il semble que nous soyons dans le régime inverse

$$a_B < \ell_B \quad (5.2)$$

car ici $a_B \sim 6,5 \text{ nm}^2$ et $\ell_B \sim 8,6 \text{ nm}$ à 10 T. En modélisation numériquement le transport des excitons indirects (cf § 3.7), nous sommes capables d'estimer que l'accroissement de la masse de l'exciton avec le champ magnétique $M_X^\perp(B)/M_X^\perp(B=0)$ n'excède pas quelques pourcents, lorsque $B \leq 10$ T. Cela est en accord avec les estimations que l'on peut faire dans le régime $a_B < \ell_B$ selon l'équation suivante [117, 154]

$$\frac{M_X^\perp(B)}{M_X^\perp} = \left(1 - \frac{42\mu_X}{16^2 M_X^\perp} \times \left(\frac{a_B}{\ell_B} \right)^4 \right)^{-1}. \quad (5.3)$$

Dans cette dernière relation, μ_X est la masse réduite de l'exciton dans le plan et $M_X^\perp = M_X^\perp(B=0)$ la masse de l'exciton à champ nul. Ainsi, dans toute la suite, nous considérons que le décalage énergétique de la raie d'émission des IXs, mesurée dans la zone centrale du spot d'excitation, sous l'effet du champ magnétique est entièrement « locale », c'est-à-dire qu'il n'est pas relié à la modification du transport dans le plan.

5.3 Décalage énergétique sous champ magnétique

On peut s'attaquer maintenant à notre objectif : l'étude de la variation de l'énergie de la raie IX en fonction du champ magnétique. A chaque condition de puissance

1. Les rayons de Bohr sont plus grands car l'énergie de liaison est plus faible.

2. La valeur est issue de l'approximation 2D (cf éq. 5.7) avec $R_y = R_{y0}^* = 25 \text{ meV}$.



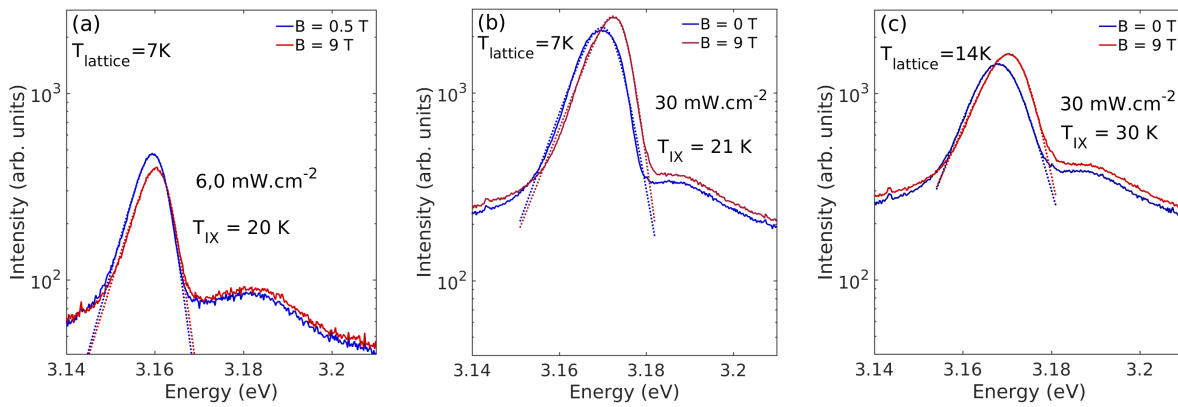


FIGURE 5.4 – Spectres à champ nul et maximal : (a) $T = 7$ K et $P = 6,0$ mW/cm², (b) $T = 7$ K et $P = 30$ mW/cm², (c) $T = 14$ K et $P = 30$ mW/cm². Les modèles du *fit triangulaire* sont tracés en pointillés. Les températures excitoniques T_{IX} sont déduites de cette procédure de *fit* (paramètre β_2 , cf annexe G).

correspond une densité locale d'excitons, n . On va alors étudier comment, lorsque le champ magnétique B appliqué augmente, l'énergie de la raie de PL correspondant à cette condition de densité, notée E_{nB} , augmente.

La figure 5.4 illustre l'influence du champ magnétique sur les spectres de luminescence. L'augmentation de l'énergie sous champ magnétique est évidente. Pour la quantifier, on *fitte* chaque raie de luminescence avec une allure triangulaire (cf annexe G) dont le flanc haute énergie permet d'estimer la température excitonique T_{IX} :

- à 7 K, $P = 6,0$ mW.cm⁻², le décalage entre la raie émise à 0 T (courbe bleue, fig. 5.4a) et la raie émise à 10 T (courbe rouge) est de 0,9 meV. La température excitonique est $T_{IX} = 20$ K.
- Pour une puissance supérieure $P = 30$ mW.cm⁻², le décalage énergétique est de 3,0 meV (cf fig. 5.4b) et la température excitonique est sensiblement similaire à 21 K.
- Enfin, à cette même puissance, mais à température plus élevée $T = 14$ K, le décalage énergétique est de 3,45 meV. La température excitonique augmente à $T_{IX} = 30$ K (cf fig. 5.4c).

Notons toutefois que la détermination de la température dans ces conditions n'est probablement pas très fiable³.

Le décalage de l'énergie du pic d'émission, par rapport à $B = 0$ T (l'allure spectrale du pic étant moyennée sur 1 pixel = 25 μ m), mesuré en fonction du champ magnétique, pour différentes puissances d'excitation est illustré sur les figures 5.5a ($T = 7$ K), 5.5b ($T = 10$ K) et 5.5c ($T = 14$ K). Les inserts de chacune de ces figures représentent

3. Notamment à cause de l'élargissement homogène inhérent à l'étendue de la zone spatiale, de 25 μ m, sur laquelle s'effectue la collecte de luminescence.



l'évolution de l'énergie de la raie IX, E_{n0} , mesurée à $B = 0$ T, en fonction de la puissance P d'excitation. La procédure utilisée pour extraire les paramètres de la raie de luminescence est décrite dans l'annexe G. On constate que, pour la valeur maximale du champ de 9 T, les valeurs du décalage énergétique s'étalent de 0,2 à 3 meV : les plus grands décalages sont obtenus pour les plus grandes puissances et les plus faibles températures.

« **Shift** » **diamagnétique** Pour toutes ces séries de mesure, à l'exception de la plus haute puissance pour $T = 7$ K, l'évolution du décalage énergétique $\Delta E = E_{nB} - E_{n0}$ avec le champ B se fait de manière quadratique. Cela peut être interprété comme un « shift » diamagnétique

$$\Delta E = \gamma_D B^2 \quad (5.4)$$

où le coefficient

$$\gamma_D = \frac{e^2 a_B^2}{8\mu_X} \quad (5.5)$$

est appelé coefficient diamagnétique (cf éq. 2.19). Ce dernier semble augmenter lorsque la puissance d'excitation augmente, ce qui suggère que le rayon de Bohr augmente également. Cela correspond à l'écrantage progressif de l'interaction coulombienne existant entre l'électron et le trou au sein de l'édifice excitonique et assurant la rigidité de sa liaison. La valeur de la masse réduite de l'exciton dans le plan étant bien connue, $\mu_X = 0,18 m_0$, le fit des données avec une dépendance quadratique (courbes en traits continus sur la figure 5.5) nous permet d'extraire les valeurs du rayon de Bohr pour les différentes valeurs de puissances et de températures utilisées dans notre expérience. Les valeurs des rayons de Bohr $a_{B,\text{dia}}$ qui en résultent apparaissent comme des croix bleues sur les figures 5.8d-f : pour chaque valeur de température, le rayon de Bohr $a_{B,\text{dia}}$ est tracé en fonction du blueshift $E_{\text{BS}} = E_{n0} - E_{00}$ ⁴, de la raie IX à champ nul E_{n0} , ce blueshift étant lié directement à la densité de particules dans le puits quantique.

« **Shift** » **linéaire avec le champ magnétique** Concentrons nous sur les mesures réalisées à $T = 7$ K qui correspondent à la plus forte des puissances d'excitation $P = 90 \text{ mW.cm}^{-2}$ (disques magentas, fig. 5.5a). On constate clairement que le décalage énergétique n'est pas quadratique avec le champ magnétique⁵. En effet, l'accroissement

4. Dans la relation $E_{\text{BS}} = E_{n0} - E_{00}$, E_{00} est l'énergie de la raie à champ nul et dans la limite des faibles densités (ie $E(B = 0, n = 0)$).

5. Pour cela, il suffit de considérer le fit quadratique réalisé sur la courbe en trait plein magenta, $\propto B^2$: il correspond à un rayon de Bohr de 22 nm, beaucoup plus grand que les ≈ 10 nm à puissance maximale pour les plus hautes températures (10 K et 14 K).



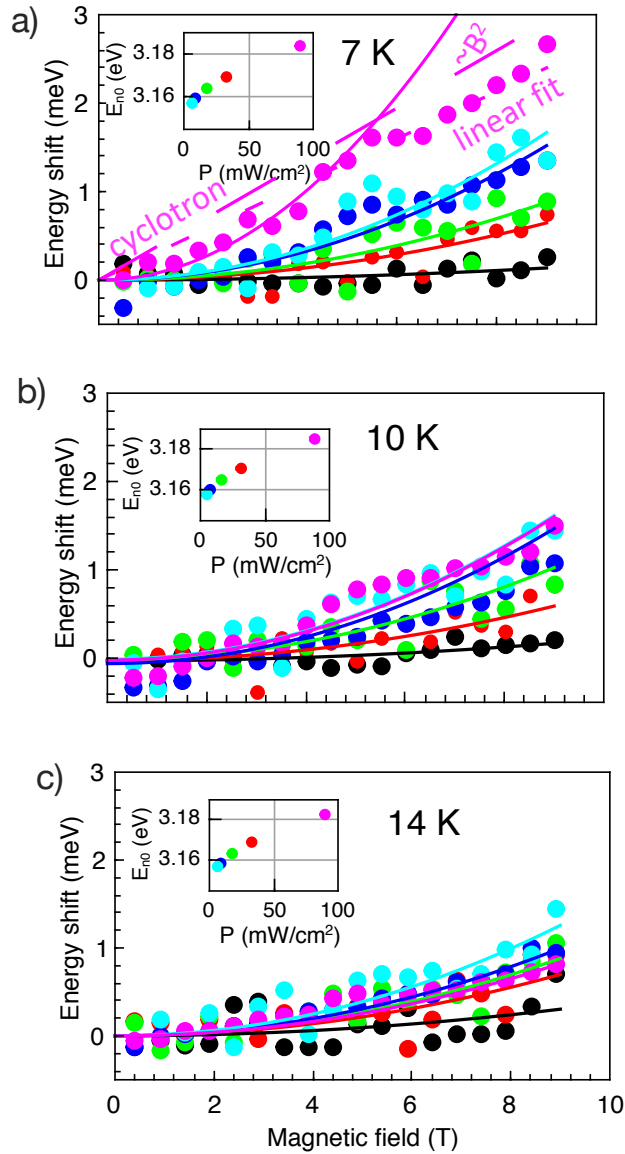


FIGURE 5.5 – Décalage de l'énergie de la raie IX (moyennée sur environ $25 \mu\text{m}$) par rapport à sa valeur à champ nul E_{n0} , en fonction du champ magnétique à $T = 7$ K (a), $T = 10$ K (b), $T = 14$ K (c) pour différentes puissances d'excitation, de $P = 2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$ (symboles noirs) jusqu'à $P = 90 \text{ mW.cm}^{-2}$ (symboles magentas). Les inserts montrent les valeurs correspondantes des énergies E_{n0} pour chaque puissance selon le même code couleur. Les courbes en traits continus sont les *fits* paraboliques réalisés selon le modèle diamagnétique. Le modèle ne *fitte* pas convenablement les données pour plus haute puissance, à 7 K : le *fit* linéaire est tracé en tirets-long. Le *shift* cyclotron correspondant aux électrons-trous non liés, et dont la croissance est linéaire avec B , est également tracé en tirets-courts magentas en utilisant la masse réduite de l'exciton $\mu_X = 0,18 m_0$.



est au contraire linéaire, $\Delta E = \gamma_L B$, de pente $\gamma_L = 0,27$ meV/T. Il est remarquable de constater que la pente obtenue par la régression linéaire est très proche de la valeur

$$\gamma_c = \frac{e\hbar}{2\mu_X} = 0,23 \text{ meV/T} \quad (5.6)$$

que l'on attend dans le cas de l'évolution de la séparation des niveaux de Landau de l'électron et du trou (cf éq. 2.17 § 2.4). Ces résultats suggèrent en effet que, la densité des paires électron-trou dans le plan du puits quantique est très élevée : ainsi l'interaction de Coulomb au sein de l'exciton est écrantée, ce qui réduit son énergie de liaison de manière suffisante pour conduire à la transition de Mott. La détermination de la densité critique, n_{Mott} , qui correspond à l'émergence de ce phénomène, est très délicate mais nous proposons une démarche décrite ci-après afin d'estimer sa valeur.

5.4 Coexistence entre excitons et plasma EHP

Analyse des formes de raies Afin d'accéder à une meilleure compréhension des effets physiques dans ce système et également pour exploiter pleinement nos résultats expérimentaux, il est particulièrement intéressant de se pencher sur l'allure des raies spectrales de la luminescence émanant du puits quantique. La figure 5.7 donne les spectres mesurés à $T = 7$ K et à $T = 14$ K pour la plus faible puissance ($P = 2,8$ mW.cm⁻², courbe en trait plein) et pour quatre autres valeurs de puissance jusqu'à $P = 90$ mW.cm⁻² (courbes en tirets). Pour la plus faible puissance d'excitation, nous identifions clairement deux raies spectrales (les deux raies sont également visibles sur la fig. 5.4), séparées énergétiquement de ≈ 25 meV, la raie de plus faible énergie est celle que nous identifions comme étant celle de l'émission des excitons indirects (raie IX). Elle possède une intensité plus élevée que celle de l'autre raie et sa position énergétique est affectée par le champ magnétique tandis que la seconde raie demeure indépendante du champ magnétique. Les énergies et les intensités relatives des deux raies en fonction de la puissance sont représentées sur la fig. 5.6. Lorsque la puissance d'excitation augmente, l'énergie de la raie IX se déplace fortement vers les hautes énergies (*ie* effet de *blueshift* des IXs) jusqu'à fusionner avec la raie dont l'énergie est plus élevée, cette dernière demeurant toujours quasiment inchangée sous l'effet de la puissance d'excitation. Notons également que l'intensité relative entre ces deux raies spectrales est jusqu'à 5 fois plus grande à $T = 7$ K qu'à $T = 14$ K.

Notre interprétation est la suivante : la raie dont l'énergie est la plus élevée résulte de l'émission du plasma électrons-trous (EHP), lequel coexiste avec les excitons indirects, même à la plus faible puissance d'excitation. Des comportements similaires sur les spectres de photoluminescence ont déjà été observés, non seulement sur des puits



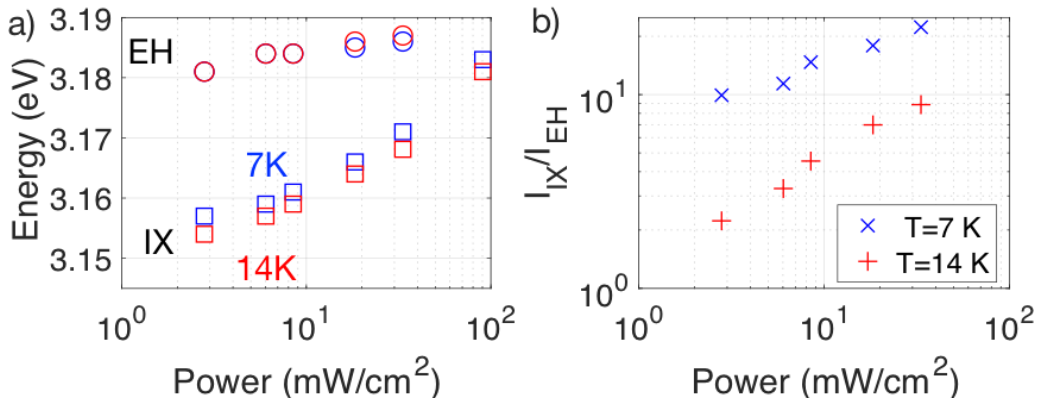


FIGURE 5.6 – (a) évolution de l'énergie des raies IX (carrés) et du plasma (EH, cercles) en fonction de la puissance pour deux températures, 7 K (bleu) et 14 K (rouge). (b) évolution du rapport entre l'intensité relative de la raie IX et celle de la raie EH en fonction de la puissance, à 7 K (x bleus) et à 14 K (+ rouges).

quantiques GaAs mais aussi sur des puits quantiques InGaAs [43, 149, 150] comme présenté dans la section 1.3.2 de l'état de l'art concernant la transition de Mott. De même, dans les hétérostructures à base de GaN, il a été montré, *via* des mesures de spectroscopie terahertz résolues en temps, que les excitons pouvaient se former efficacement au sein d'un plasma EHP dense [50]. L'évolution de l'énergie et de l'intensité de l'émission du plasma EHP avec celle de la raie, bien identifiée, attribuée aux IXs est compatible avec cette interprétation : la raie IX fusionne avec celle du plasma EHP à forte densité. De plus, le rapport entre l'intensité de l'émission des IXs et celle du plasma diminue à mesure que la température augmente. Notons également que la raie plasma est beaucoup plus large (même à faible puissance, sa FWHM est de 30 meV, contre 10 meV seulement pour celles des IXs) et moins intense (≈ 5 fois moins intense à la plus faible puissance) que la raie IX. Cela explique vraisemblablement pourquoi il n'a pas été possible de détecter de « shift » énergétique induit par le champ magnétique sur cette raie EHP.

Méthode alternative d'estimation du rayon de Bohr L'observation conjointe de la raie EHP et de la raie IX nous fournit une information importante. En effet, la séparation énergétique entre l'émission des IXs et celle du plasma caractérise l'énergie de liaison R_y^* de l'exciton, qui résulte des effets physiques à N corps et dépend de la densité de particules dans le puits quantique [16]. Pour la plus faible puissance, nous estimons cette énergie de liaison à $R_{y0}^* = 25$ meV, qui correspond à la limite à densité nulle. Cette valeur est deux fois plus importante que ce que prédit, pour notre structure, le résultat du modèle Poisson-Schrödinger incluant les effets excitoniques (cf § 3.3 et fig. 3.14) mais cela demeure dans les limites inhérentes à la précision de cette technique. Selon un modèle bidimensionnel, l'énergie de liaison de l'exciton peut être reliée à son



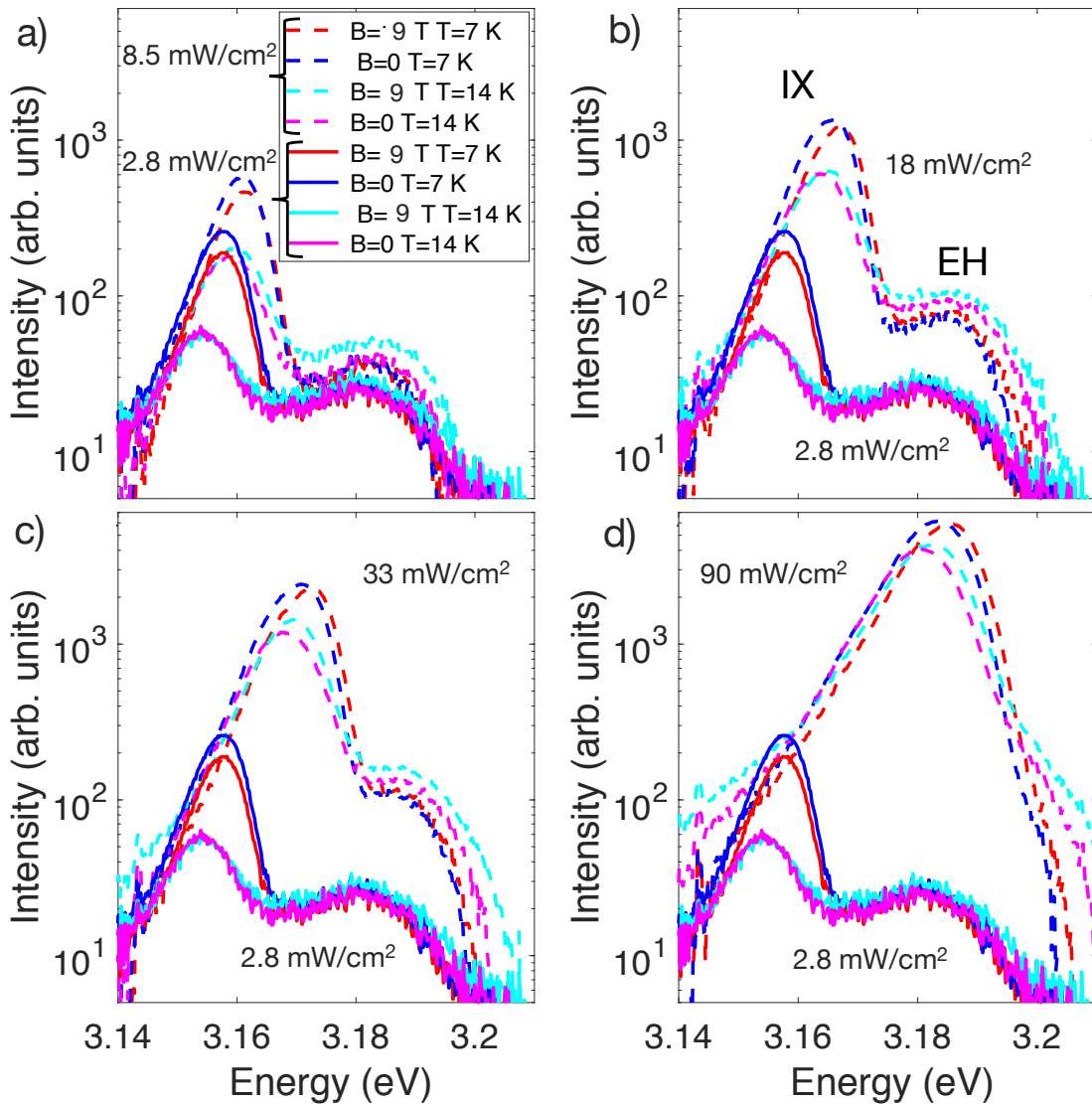


FIGURE 5.7 – Spectres de PL collectés sur une zone d'environ $25 \mu\text{m}$ de diamètre au centre du spot d'excitation pour différentes puissances d'excitation (courbes en tirets). Deux températures ($T = 7 \text{ K}$, $T = 14 \text{ K}$) et deux valeurs de champ magnétique ($B = 0$ et $B = 9 \text{ T}$) sont tracées pour chaque puissance. A titre de comparaison, le spectre d'émission à la plus faible puissance d'excitation est superposé avec le même code couleur. Les raies que nous interprétons comme étant celle de l'exciton (IX) et celle du plasma (EH) sont repérées sur la figure (b).

rayon de Bohr

$$R_y^* = \frac{e^2}{4\pi\epsilon a_B}, \quad (5.7)$$

et bien que cette équation constitue une simplification compte tenu du caractère non-exactement 2D de l'exciton, nous allons l'utiliser afin :

- d'analyser les rayons de Bohr, a_B^* , obtenus *via* cette relation, pour différentes puissances d'excitation et comparer ces valeurs avec les rayons de Bohr $a_{B,\text{dia}}$, résultant de la procédure de *shift* diamagnétique ;
- d'estimer l'évolution de la densité d'excitons en fonction de la puissance d'excitation et de la température ;
- de déterminer la densité de Mott, n_{Mott} .

L'estimation de la densité d'excitons et de la valeur critique à dissociation est une tâche très délicate, même dans le cas d'excitons sans moment dipolaire. En particulier, la prise en compte des interactions d'échange et des corrélations au sein d'une collection d'excitons est un problème complexe relevant de la physique à plusieurs corps (*many-body physics*, § 3.5). Pour les excitons indirects, l'évolution de l'écrantage du champ électrique interne avec la densité de particules est également un autre élément de complexité, notamment parce qu'il est difficile de distinguer cet effet de celui des interactions exciton-exciton.

5.5 Estimation des corrélations au sein de la phase excitonique

Nous décrivons ci-après la procédure que nous avons adoptée pour estimer, en fonction des différentes densités correspondant à des conditions de puissance d'excitation et de température données, les rayons de Bohr et l'énergie de l'émission des IX à partir de différents modèles disponibles. Notre analyse s'appuie sur trois grandeurs issues de données expérimentales (ou déduites de celles-ci) :

- la valeur de l'énergie de liaison de l'exciton dans la limite d'une densité nulle, $R_{y0}^* = 25$ meV, estimée par la séparation entre l'énergie de la raie IX et celle de la raie EHP à la plus faible puissance d'excitation ;
- la valeur du rayon de Bohr correspondant à cette limite à densité nulle,

$$a_B(n = 0) = 6 \text{ nm} ;$$



- l'énergie de la raie IX à densité nulle, $E_0 = 3,145$ meV, mesurée à ≈ 700 μm de distance du spot d'excitation (cf fig. 5.2c et 5.3c).

Ces valeurs sont identiques pour toutes les températures, dans la limite de la précision de ces grandeurs.

La première étape (I) consiste à calculer la densité de paires électron-trou correspondant à une certaine énergie de transition $E_{E_1H_1}$, à partir de la résolution des équations couplés de Schrödinger et de Poisson. Le résultat d'un tel calcul est très bien décrit par le modèle d'un condensateur plan, dans lequel le *blueshift* évolue linéairement avec la densité selon

$$E_{BS} = \Phi_0 n \quad (5.8)$$

où $\Phi_0 = 1,5 \times 10^{-13}$ eV.cm². Comme cela a déjà été mentionné, cette approche néglige complètement les corrélations excitoniques, lesquelles peuvent être importantes à suffisamment grande densité et basse température : ces corrélations sont susceptibles d'affecter l'estimation de la densité *via* un facteur multiplicatif pouvant aller jusqu'à 10. C'est pourquoi nous essayons de prendre en compte ces corrélations dans notre modèle et ainsi estimer le décalage énergétique E_{BS} à l'aide d'une méthode plus sophistiquée développée par SCHINDLER et ZIMMERMANN [151] et décrite en détail au paragraphe 3.5 (cf éq. 3.80). Nous avons ainsi deux méthodes pour calculer l'énergie de la transition

1. ou bien *en incluant* les corrélations (modèle noté, « C ») ;
2. ou bien *sans inclure* les corrélations (modèle noté, « NC »).

A la seconde étape (II) nous calculons l'énergie de la luminescence des IX pour une densité n donnée

$$E_{IX}(n) = E_{E_1H_1}(n) - R_y^*(n). \quad (5.9)$$

Afin de tenir compte de la réduction de l'énergie de l'exciton avec les interactions à plusieurs corps, nous adoptons l'expression suivante :

$$R_y^*(n) = R_{y0}^* \times \exp(-n/n_b) \quad (5.10)$$

qui traduit une simple diminution exponentielle de l'énergie de liaison avec la densité [139] et où le paramètre n_b représente la densité typique d'écrantage (reliée à la densité de Mott, n_{Mott} (cf éq. 3.97 § 3.6.3)). C'est parce que

- l'énergie de liaison de l'exciton R_{y0}^* ,



- et sa dépendance en densité ($R_y^*(n)$)

sont toutes les deux du même ordre de grandeur la valeur du décalage ΔE en énergie de la raie IX avec le champ magnétique, qu'il est important de prendre en compte la réduction de l'énergie de la raie IX qui résulte de la formation de l'exciton (éq. 5.10).

Troisième étape (III) : estimation du rayon de Bohr Enfin, le rayon de Bohr de l'exciton est calculé à partir de la donnée de $R_y^*(n)$, via la relation 5.7.

Ces trois étapes sont itérées selon une méthode de régression adaptative afin de faire correspondre au mieux la relation entre, d'une part, l'énergie de la raie IX (ou, de manière équivalente, la dépendance du *blueshift* $E_{BS}(n)$, pour E_0 donné) et, d'autre part, le rayon de Bohr $a_{B, \text{dia}}$ (croix bleues sur la figure 5.8d-f). La figure 5.8 présente les résultats de ce protocole. Les symboles sur les trois figures, (a) 7 K, (b) 10 K et (c) 14 K, sont les densités estimées, pour six puissances d'excitation différentes : les carrés cyans (cercles magentas) sont obtenus sans prendre en compte (en prenant en compte) les corrélations excitoniques. On constate que les estimations de densité résultant de ces deux modèles diffèrent jusqu'à un facteur 2 dans le cadre de la gamme de températures et de densités qui a été explorée. Notamment, les différences sont les plus significatives pour la plus faible température et pour la plus grande puissance d'excitation. La longueur des segments horizontaux représente l'énergie de liaison calculée pour chaque point, selon les deux modèles. L'énergie de liaison dans la limite d'une densité nulle, R_{y0}^* , est représentée par le segment de couleur noire, dont l'extrémité inférieure est positionnée à l'énergie E_0 . Le paramètre typique d'écrantage de l'énergie de liaison, E_b , est illustré sur ces figures (a-c) par des tirets noirs horizontaux (noté n_{Mott}). Enfin, les rayons de Bohr $a_B(n)$ correspondant à ces situations expérimentales (de températures et puissances données) sont tracés, sur les figures 5.8d-f, en fonction du *blueshift* E_{BS} de l'énergie de la raie IX par rapport à la raie d'émission à densité nulle. Trois séries de points sont représentées :

- les croix bleues sont les rayons de Bohr, $a_{B, \text{dia}}$ déduits du fit quadratique (cf éq. 5.5 § 5.3),
- les cercles magentas sont les rayons de Bohr, $a_{B,C}^*$ qui résultent de l'estimation à partir des équations 5.9 et 5.10 dans lesquelles les corrélations sont prises en compte dans l'estimation de l'énergie de la transition $E_{E_1H_1}(n)$,
- les cercles bleus sont les rayons de Bohr, $a_{B,NC}^*$ qui résultent du même protocole à la distinction que les corrélations ne sont pas prises en compte dans l'estimation de l'évolution de l'énergie de la transition $E_{E_1H_1}(n)$ avec la densité (le modèle décrivant la dépendance de $E_{E_1H_1}$ avec n est purement capacitif).



Synthèse des résultats Faisons le point sur ces résultats. Tout d’abord, le modèle le plus sophistiqué qui inclut les corrélations inter-excitons (modèle « C ») est supposé décrire le mieux l’ensemble des données. Néanmoins, il semble qu’au moins à $T = 10$ K et à $T = 14$ K, il surestime l’augmentation du rayon de Bohr induit par l’accroissement de la densité particulière (cf fig. 5.8e,f). Cela est particulièrement visible pour la plus haute valeur de densité (le plus haut *blueshift* atteint étant de $E_{BS} \approx 40$ meV), tandis qu’à $E_{BS} < 30$ meV les effets des corrélations sur le rayon de Bohr sont limités. De plus, la densité excitonique estimée dans le cadre du modèle « C » pour $E_{BS} = 40$ meV et $T \leq 10$ K est nettement au dessus de la densité critique de Mott, $n_{\text{Mott}} = 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ qui provient du *fit* des valeurs de rayons de Bohr. Cela va à l’encontre du comportement diamagnétique qui est observé dans ce cas. Dans le même temps, le modèle sans corrélation « NC » demeure pertinent au regard des caractéristiques à dominante excitonique de l’émission.

A $T = 7$ K, la situation est différente. Rappelons que la détermination du rayon de Bohr à la plus haute densité n’était pas possible car, dans ces conditions, nous observions un décalage linéaire de l’énergie de la raie IX avec le champ magnétique, en accord avec une dissociation de l’exciton et la formation d’un liquide électron-trou (cf fig. 5.5). La dépendance du rayon de Bohr avec le *blueshift*, dans la limite $E_{BS} < 30$ meV, ne permet pas d’évaluer le rôle des corrélations excitoniques avec certitude. Toutefois, l’estimation de la densité excitonique $n \approx 3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ qui provient du modèle « C » est davantage compatible avec la valeur $n_{\text{Mott}} = 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ obtenue dans le cadre de la procédure de *fit* de ce modèle que lorsque le modèle « NC » est utilisé : le modèle « NC » conduit en effet au résultat $n < n_{\text{Mott}}$, alors que nous observons bien la dissociation de l’exciton dans ce cas.

Il semble possible de conclure que, pour la plus faible des températures étudiées, $T = 7$ K, les corrélations excitoniques sont importantes et les IXs dans les puits quantiques polaires GaN/AlGaIn doivent être décrits comme un liquide dipolaire. Pour une température plus élevée, $T = 14$ K, ces corrélations ont vraisemblablement disparu. Pour la plus grande des valeurs de densité atteinte à $T = 7$ K, $n \approx 3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le fluide d’excitons semblent être le siège d’une transition de Mott pour les deux raisons suivantes :

1. à champ magnétique nul, le spectre énergétique de la raie de PL IX fusionne avec le spectre de la raie de luminescence du plasma EHP,
2. la dépendance du décalage énergétique de la raie IX avec le champ magnétique passe d’une évolution quadratique à une évolution linéaire.



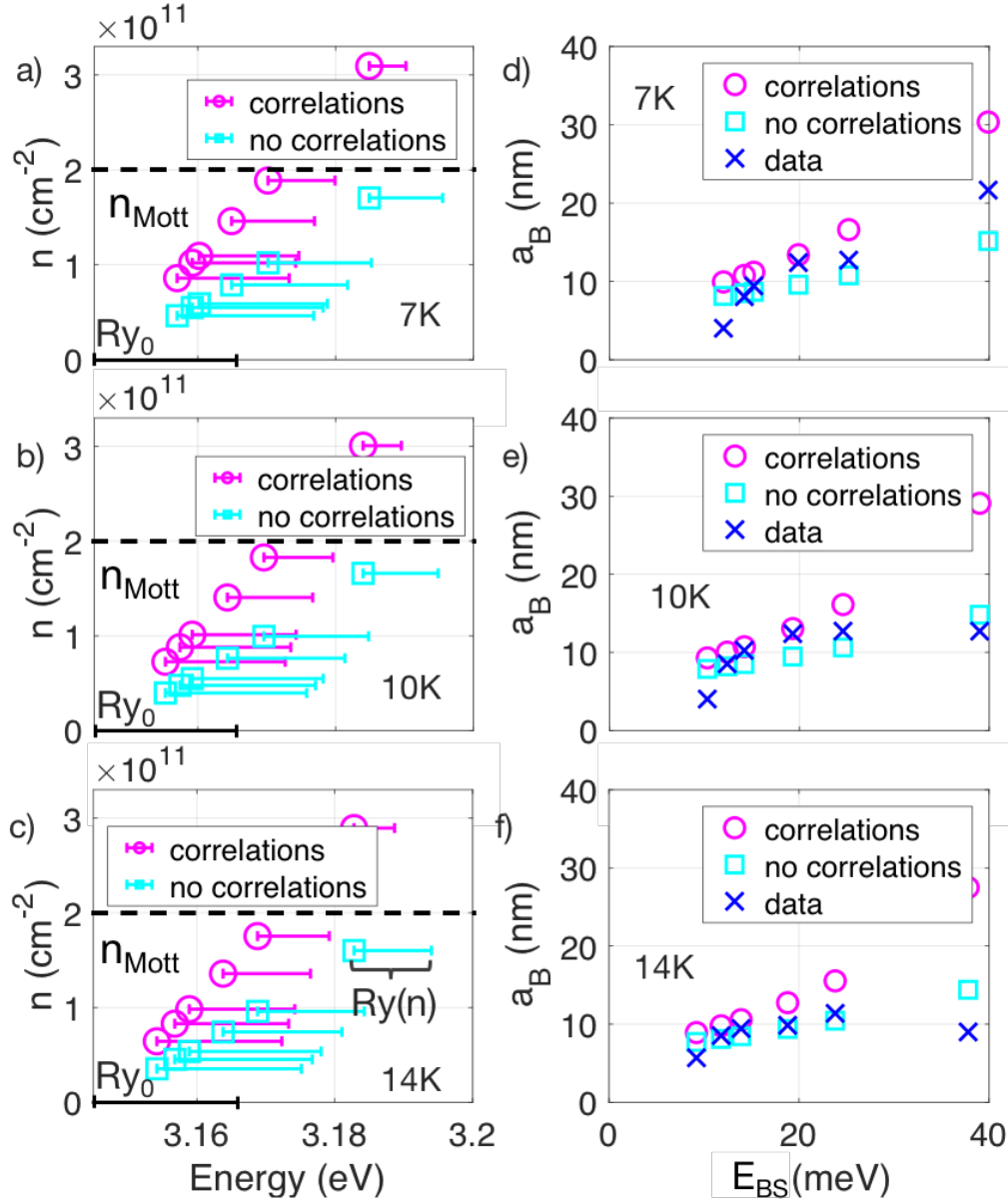


FIGURE 5.8 – (a-c) Estimation théorique de la densité d’excitons au centre du spot d’excitation pour différentes puissances en fonction des valeurs de l’énergie E_{IX} de l’émission mesurée à champ B nul, cf encarts fig. 5.5. Deux modèles sont comparés : incluant (cercles magentas) ou n’incluant pas (carrés cyans) les corrélations entre excitons. Chaque modèle fournit les estimations des énergies de liaison des IXs, $Ry_y^*(n)$, (illustrées par des segments horizontaux), qui diminuent avec la densité d’excitons. Les paramètres utilisés pour le modèle sont $E_0 = 3,145$ eV, $Ry_0 = 25$ meV, et $n_b = 2 \times 10^{11}$ cm^{-2} . (d-e) rayon de Bohr de l’exciton en fonction du décalage énergétique de l’énergie de la raie IX par rapport à son énergie E_0 (à $B = 0$ T) : les valeurs obtenues par le *fit* parabolique tracé sur la figure 5.5 (croix bleues) sont comparées aux valeurs déterminées à partir des énergies $Ry_y^*(n)$. Les cercles magentas (les carrés cyans) résultent du modèle incluant (n’incluant pas) les corrélations excitoniques.



5.6 Synthèse : coexistence entre plasma et excitons, transition de Mott et transport sous champ magnétique

La détermination de la densité excitonique et la densité critique de Mott (la transition de Mott n'étant atteinte qu'à 7 K) nous permet de préciser l'espace des paramètres qui a été exploré dans ce travail. Notons que nous n'avons aucune donnée expérimentale quand à l'éventuelle dépendance de la transition de Mott avec la température, c'est pourquoi nous traçons une frontière indépendante de la température pour définir cette transition. La synthèse des points du diagramme densité-température explorés dans cette étude est faite au chapitre 7.

Voici les principales conclusions que l'on peut dégager de ce chapitre :

- La configuration expérimentale dans laquelle la luminescence est collectée avec une zone d'une excitation laser « large » permet de visualiser la coexistence du plasma EHP et du gaz IXs.
- Le suivi du décalage énergétique de la raie IX en fonction du champ magnétique permet de confirmer que le comportement est quadratique et donc caractéristique de la nature excitonique de la raie de luminescence.
- Les valeurs du coefficient diamagnétique ainsi que son évolution avec la puissance d'excitation sont compatibles avec l'estimation de la valeur de rayon de Bohr telle qu'attendue lorsque l'on varie la densité de porteurs : les fortes puissances d'excitation engendrent de fortes densités de charges qui contribuent à écranter l'énergie de liaison et donc à augmenter le rayon de Bohr de l'exciton dans le plan.
- La transition de Mott est caractérisée par une évolution bien marquée du décalage énergétique de la raie IX qui, de quadratique avec le champ magnétique, devient linéaire lorsque la puissance d'excitation est suffisamment élevée, à 7 K. Le changement des conditions expérimentales de température permettent d'observer un changement de régime entre, d'une part, le comportement à 10 K et 14 K où l'exciton existe pour toute la gamme de puissances explorée, et d'autre part, le comportement à 7 K, pour lequel la transition de Mott est observée.
- La comparaison entre l'énergie de la raie IX et celle de la luminescence du plasma EHP, permet d'estimer l'énergie de liaison de l'exciton et donc son rayon de Bohr. Une procédure de *fit* basée sur l'énergie des raies excitoniques, tenant compte de la dépendance en densité de la transition $E_{E_1H_1}(n)$ et de l'énergie de liaison de l'exciton $R_y^*(n)$ permet de comparer la pertinence de modèles avec ou sans prise en compte des corrélations excitoniques dans l'estimation de la densité : il s'avère



que celles-ci doivent être prises en compte afin que la densité estimée réalise la condition $n > n_{\text{Mott}}$ qui est visiblement constatée expérimentalement.

- Par opposition avec ce qui se passe dans les systèmes AlGaAs/GaAs où le **transport des magnéto-excitons dipolaires est fortement réduit** à cause du fort accroissement de leur masse [118, 75], nous observons au contraire pour ce système AlGaN/GaN que les paramètres du diagramme de bande sont tels que les conditions de transport sont quasiment inchangées jusqu'à des valeurs de 10 T.

Toutes ces conclusions tendent à prouver que l'étude sous champ magnétique a été fructueuse : nature excitonique de la luminescence, valeurs du rayon de Bohr, valeurs des énergies de liaison et densité limite de Mott constituent, entre autres, des nouveaux éléments expérimentaux que cette étude a permis d'apporter quant à la connaissance de notre système.



Chapitre 6

Mesures optiques sous polarisation : contrôle du piégeage et du transport

Le contrôle du piégeage et du transport constituent les deux leviers sur lesquels nous agissons pour **manipuler les fluides d'excitons piégés**. Pour cela, les principaux enjeux sont de maîtriser la profondeur des pièges excitoniques, leur interaction avec leur environnement extérieur *via* le transport dans le plan, mais aussi *via* le transport de charges libres, électrons et trous, verticalement ; et enfin la neutralité du fluide d'excitons et de charges piégés. En conséquence, dans ce chapitre, nous nous intéressons à l'effet que peut avoir **l'application d'une tension de polarisation** entre, d'une part, l'électrode semi-transparente, située sur la surface supérieure de l'échantillon et d'autre part, la face arrière de l'échantillon constituée du substrat de GaN dopé type n : quel est l'effet d'une telle tension de polarisation sur

1. les propriétés de transport des excitons ?
2. le potentiel de piégeage vu par les excitons ?

Pour répondre à ces questions, nous réalisons des expériences *in situ* dans le cryostat optique sous excitation laser au cours desquelles les mesures électriques (caractéristiques I-V) sont réalisées de manière synchrone avec les mesures optiques (luminescence spectralement et spatialement résolues).

Sommaire

5.1	Motivations de l'étude sous champ magnétique	161
5.2	Luminescence sous champ magnétique	163
5.3	Décalage énergétique sous champ magnétique	167
5.4	Coexistence entre excitons et plasma EHP	171
5.5	Estimation des corrélations au sein de la phase excitonique	174



**5.6 Synthèse : coexistence entre plasma et excitons, transition
de Mott et transport sous champ magnétique 179**

6.1 Caractérisations électriques des jonctions Schottky

Le contrôle électrique des pièges en configuration de microscopie optique à basse température a nécessité dans un premier temps une profonde adaptation du cryostat de microPL, décrite dans l'annexe I.

6.1.1 Principes et protocoles des caractérisations I-V et C-V

Pour caractériser électriquement (et en l'absence d'éclairement) les jonctions métal/semi-conducteur (aussi appelées jonctions « Schottky », voir §3.1.2 et fig. 3.4) des échantillons avec lesquels nous avons travaillé, nous avons mis en œuvre deux méthodes. En voici les principes :

- la *caractérisation I-V* qui consiste à appliquer une polarisation statique à la jonction et à relever l'intensité du courant continu qui la parcourt lorsque l'on varie cette polarisation de manière quasi-statique. L'exploitation de cette mesure donne accès (1) à la hauteur Φ_b de la barrière Schottky, (2) au coefficient η d'idéalité de la jonction et (3) au courant I_s de saturation. La définition de ces grandeurs est rappelée ci-après.
- la *caractérisation C-V* qui consiste à appliquer un petit signal de polarisation sinusoïdal autour d'un point de fonctionnement en inverse de la jonction métal semi-conducteur. Un traitement adapté du courant électrique résultant de cette excitation sinusoïdale (amplitude et déphasage) permet de remonter aux paramètres équivalent d'un modèle capacitif (RpCp [155]) de la jonction, ce modèle étant le mieux adapté à la description d'une jonction Schottky (voir ci après §6.1.1.3). L'extraction de ces paramètres est réalisée de manière automatisée à l'aide d'un appareil dédié. Une mesure C-V fournit ainsi les paramètres d'un modèle (RpCp) pour une gamme de polarisation V_{app} inverse appliquée. L'exploitation de cette mesure donne accès (1) à la concentration en dopants, (2) à l'épaisseur des zones actives et (3) au profil de dopage.

6.1.1.1 I-V : Emission thermoïonique, modèle de Schottky et facteur d'idéalité

Dans le cadre de la théorie de l'émission thermoïonique, on établit la relation entre la tension de polarisation appliquée V_{app} à la jonction et l'intensité I du courant électrique



qui la traverse [156]

$$I = I_s \exp\left(\frac{q(V_{app} - R_s I)}{\eta k_B T}\right) \left[1 - \exp\left(\frac{-q(V_{app} - R_s I)}{\eta k_B T}\right)\right] \quad (6.1)$$

avec

$$I_s = a A^* T^2 \exp\left[\frac{-q\Phi_b}{k_B T}\right] \quad (6.2)$$

où I_s est le **courant de saturation**, a est l'aire du contact, A^* est la constante effective de Richardson $A^* = 4\pi m^* k_B^2 e / h^3$ (m^* étant la masse effective des électrons de conduction), $k_B T$ est l'énergie thermique, R_s est la résistance série englobant les effets de contact et l'effet de volume (*bulk*). La **hauteur de barrière** Φ_b est la barrière énergétique que doit franchir un électron pour passer du métal vers le semi-conducteur : c'est l'écart énergétique entre le niveau de Fermi dans le métal et le bas de la bande de valence du semi-conducteur juste au niveau du contact. Cette hauteur de barrière s'estime, dans le modèle simple de Schottky [157, 158], comme la différence entre le travail de sortie du métal Φ_M et l'affinité électronique du semi-conducteur χ_s

$$\Phi_b = \Phi_M - \chi_s. \quad (6.3)$$

Une modélisation plus réaliste de l'interface métal-semi-conducteur doit prendre en compte l'existence d'états électroniques d'interface (états de surface, voir également fig. 3.4, § 3.1.2) susceptibles d'affecter la valeur de cette barrière de potentiel. Les études expérimentales de la hauteur de barrière en fonction de la nature du métal conduisent à adopter une relation de la forme

$$q\Phi_b = \gamma(\Phi_M - \chi_s) + (1 - \gamma)(E_g - \Phi_0) \quad (6.4)$$

dans laquelle le coefficient de pondération γ traduit empiriquement la prédominance du modèle de Schottky ($\gamma = 1$) ou du modèle, dit de Bardeen [159], pour lequel la hauteur de barrière est indépendante de la nature du métal et est **fixée par des états d'interface** dont l'énergie se situe à une distance Φ_0 au dessus de la bande de valence. Ce dernier cas limite, correspondant à $\gamma = 0$, est la situation où le niveau de Fermi dans le semi conducteur est ancré à une profondeur $\Phi_0 - E_g$ sous la bande de conduction en surface [160]. KURTIN *et al* [161] ont établi une relation expérimentale entre, d'une part, le caractère ionique ou covalent du semi-conducteur et d'autre part, la variation de hauteur de barrière Φ_b avec le travail de sortie du métal Φ_M . Il ressort que, la variation $s = d\Phi_b/d\Phi_M$ est d'autant plus proche d'un modèle Schottky ($\gamma \approx 1$) que l'ionicté $\Delta\chi$ du semi-conducteur est marquée (cf fig.6.1). En particulier, pour AlN et GaN, le



modèle de Schottky est bien adapté.

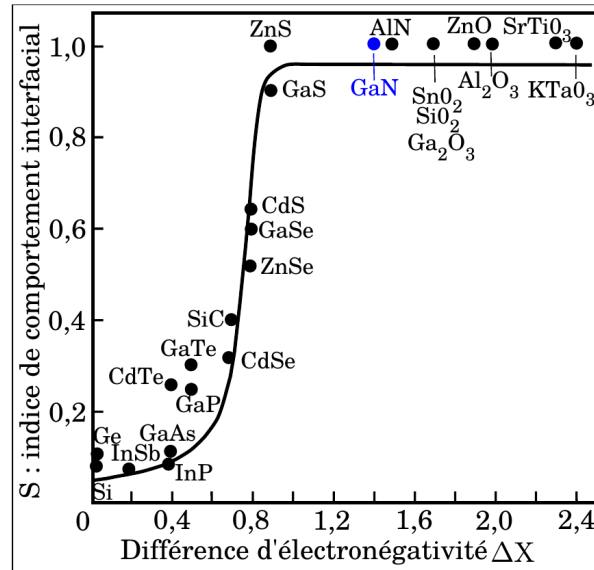


FIGURE 6.1 – Indice de comportement interfacial en fonction de la différence d'électronégativité du semi-conducteur. Tiré de [123] et d'après RANADE *et al* [162].

Pour les forts niveaux de dopage, l'émission thermoïonique n'est plus le processus dominant et le transfert de charges se fait également par effet tunnel – effet de champ [163]. Le **facteur d'idéalité** est un coefficient sans dimension qui quantifie l'écart avec le modèle d'émission thermoïonique, son expression est de la forme [163]

$$\eta = \frac{qE_{00}}{k_B T} \coth \frac{eE_{00}}{k_B T} \quad (6.5)$$

où E_{00} est l'énergie caractéristique de l'émission tunnel qui croît avec la densité de dopant N_d comme $N_d^{1/2}$ [163]. Tant que le dopage est suffisamment faible, le courant direct est essentiellement de nature thermoïonique et ainsi $\eta \approx 1$.

6.1.1.2 Protocole I-V

Les mesures sont réalisées sous pointes à $T = 300$ K avec un équipement de test qui permet simultanément la production et la mesure de signaux électriques (*Source Measure Unit* - SMU, Keithley 2602B), configuré en « mesure quatre points ». On s'affranchit ainsi des résistances des fils de mesure et des résistances de contacts au niveau des pointes. Deux des quatre pointes sont placées sur un contact du porte échantillon, relié par un fil au pad carré de $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$; les deux autres pointes sont posées sur un autre contact, connecté à la face arrière métallisée du substrat et constituant la masse du dispositif. Les fils de microsoudure – or, diamètre $50 \mu\text{m}$ – possèdent une résistance linéique de l'ordre de $0,1 \Omega \cdot \text{cm}^{-1}$. On impose un balayage de la tension de -5 V à $+2$ V



par pas de 100 mV dans la limite d'un courant de 10 μ A. On collecte simultanément les mesures de tension et de courant.

Le courant mesuré est ramené à la densité surfacique de courant $j = I/S$, où S est la surface totale de l'interface métal/semi-conducteur qui inclut non seulement le pad épais mais aussi l'électrode semi-transparente. La détermination des paramètres η et Φ_b se fait par régression numérique. Pour modéliser de manière plus fine la courbe $I - V$ expérimentale, on tient compte des résistances séries (résistance du semi-conducteur, des contacts et des fils d'or). Ainsi, au lieu de la relation directe $I(V)$ (ou $j(V)$), il est plus commode d'utiliser sa réciproque $V(j)$:

$$V(j) = \frac{\eta k_B T}{e} \log\left(\frac{j}{A^* T^2}\right) + \Phi_b \times \eta + r_s \times j \quad (6.6)$$

r_s^{-1} étant la conductance surfacique ($\Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$).

6.1.1.3 C-V : capacité surfacique, profil de dopage

Nous détaillons ici le principe des mesures « capacité-tension » (méthode $C - V$) réalisées sur les échantillons possédant des électrodes métalliques.

Pour chaque polarisation V , la capacité surfacique est reliée à la largeur $W(V)$ de la zone de charge d'espace (ZCE) [164, 165]

$$C_S(V) = \varepsilon/W(V). \quad (6.7)$$

Or, en notant $N_d(W)$ la densité de donneurs ionisés à la profondeur W , une augmentation de V de dV , augmente la charge surfacique stockée de $dQ_S = qN_d(W)dW = C_S dV$. Avec $dW = -\varepsilon C_S^{-2} dC_S$, on obtient la relation

$$N_d(W) = (2/q\varepsilon) \left(dC_S^{-2}/dV\right)^{-1} \quad (6.8)$$

qui permet le calcul de $N_d(W)$. La capacité statique de la ZCE fournit aussi la barrière du semi-conducteur vers le métal :

$$V_b = \varepsilon N_d / 2C_{S,0}^2 \quad (6.9)$$

où $C_{S,0}$ est la capacité surfacique de la jonction à polarisation nulle. La présence d'une zone active (puits quantique GaN de 7-8 nm dans AlGaIn) encapsulée dans le semi-conducteur contribue à modifier la caractéristique C-V de la jonction. Ces effets ont été étudiés et modélisés [166, 167, 168, 169, 170]. La figure 6.2 illustrant l'évolution du diagramme de bande en présence de polarisation montre comment une analyse fine des courbes C-V doit nous permettre de localiser la position du niveau de Fermi afin de



vérifier, qu'en l'absence d'injection optique, **le puits quantique est effectivement vide de charges libres**. On note également que, plus le puits quantique est « situé profondément » sous la surface (en d'autres termes, plus la *cap* layer est grande et plus la *bottom* layer est étroite), plus le niveau de Fermi se rapproche du niveau fondamental E_1 du puits et plus le puits risque donc d'être peuplé en l'absence d'injection optique.

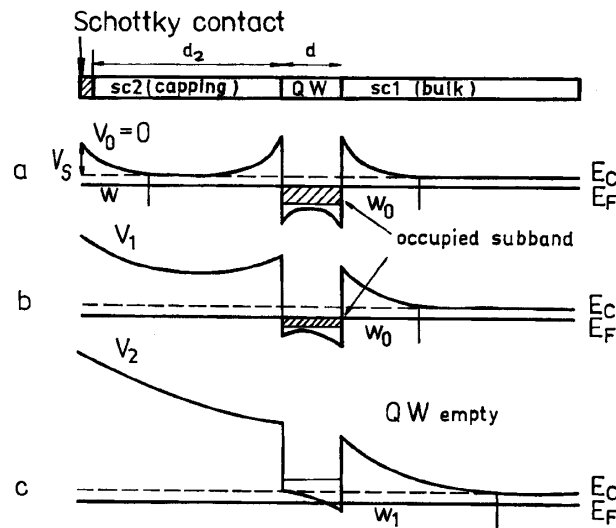


FIGURE 6.2 – Evolution du profil énergétique de la bande de conduction dans une hétérostructure à puits quantique pour une polarisation inverse (a) nulle, (b) modérée et (c) forte. De gauche à droite sont représentés : le vide, le métal et le contact métal/semi-conducteur, la zone supérieure de semi-conducteur (*capping layer*), le puits quantique (*QW*) puis la partie inférieure massive dopée qui constitue une zone conductrice et isopotentielle (*bulk*). D'après K. KREH [169].

6.1.1.4 Protocole C-V

Les courbes C-V ont été obtenues à l'aide d'un impédancemètre Agilent E4980A et le schéma expérimental donné sur la figure 6.3 : un oscillateur local injecte une onde sinusoïdale de faible amplitude. L'appareil permet de remonter automatiquement aux paramètres impédance (R_p, C_p) de l'impédance complexe $\underline{Z}(\omega)$ définis par :

$$1/\underline{Z}(\omega) = 1/R_p + jC_p\omega. \quad (6.10)$$

La fréquence d'excitation choisie est de 100 kHz, l'amplitude de 20 mV. Les paramètres R_p, C_p sont mesurés au cours d'un balayage linéaire de 201 valeurs de la tension de polarisation réparties uniformément entre -8 V et $+2$ V.



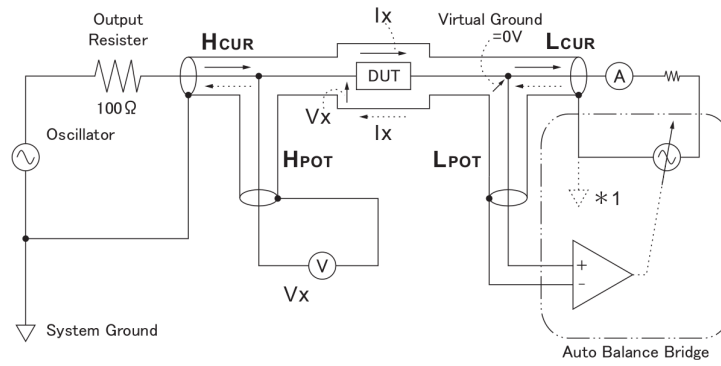


FIGURE 6.3 – Mesure à quatre fils avec masse virtuelle : un asservissement annule la tension en L_{CUR} et maintenant un courant dans le circuit de mesure (d’après Keithley).

6.1.2 Mesures I-V – discussion

La figure 6.4 donne les résultats des mesures I-V qui ont été menées sur les structures Schottky à température ambiante. On peut vérifier sur cette figure que les densités de courant sous polarisation inverse (pour $V_{app} = -2$ V) demeurent en deçà des 10^{-4} A.cm⁻², ce qui est en accord avec l’état de l’art du contact Nickel sur GaN [123]. Les quatre structures testées (pour leur nomenclature se référer au paragraphe E en annexe) sont des pièges combinant deux géométries et deux dimensions différentes, les surfaces des échantillons étant données dans la table 6.1.

Paramètres	D20T1A	D40T1A	E10C1A	E20C1A	Moyenne
S ($10^4 \mu\text{m}^2$)	1,72	1,95	3,10	2,93	2,43
η	1,21	1,17	1,17	1,26	1,20
Φ_b^{IV} (eV)	1,20	1,20	1,22	1,29	1,23
r_s^{-1} ($\Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$)	6,8	6,0	4,5	5,0	5,58

TABLE 6.1 – Paramètres utilisés pour la modélisation des courbes I-V de la jonction en polarisation directe. La notation Φ_b^{IV} précise que la hauteur de barrière Schottky Φ_b est obtenue par ces mesures I-V. S est la surface nominale de l’interface métal/semi-conducteur de l’échantillon.

Les valeurs $\eta \approx 1,2$ et $\Phi_b^{IV} \approx 1,2$ eV sont également en accord avec les valeurs usuelles du contact Nickel sur GaN [123]. Nous pouvons donc conclure, non seulement de la **bonne réalisation de ces contacts Schottky**, mais également que le **protocole de mesure I – V est pleinement opérationnel**, ce qui est une étape importante avant de coupler mesures électriques et mesures optiques comme ce sera le cas dans la suite de ce chapitre.

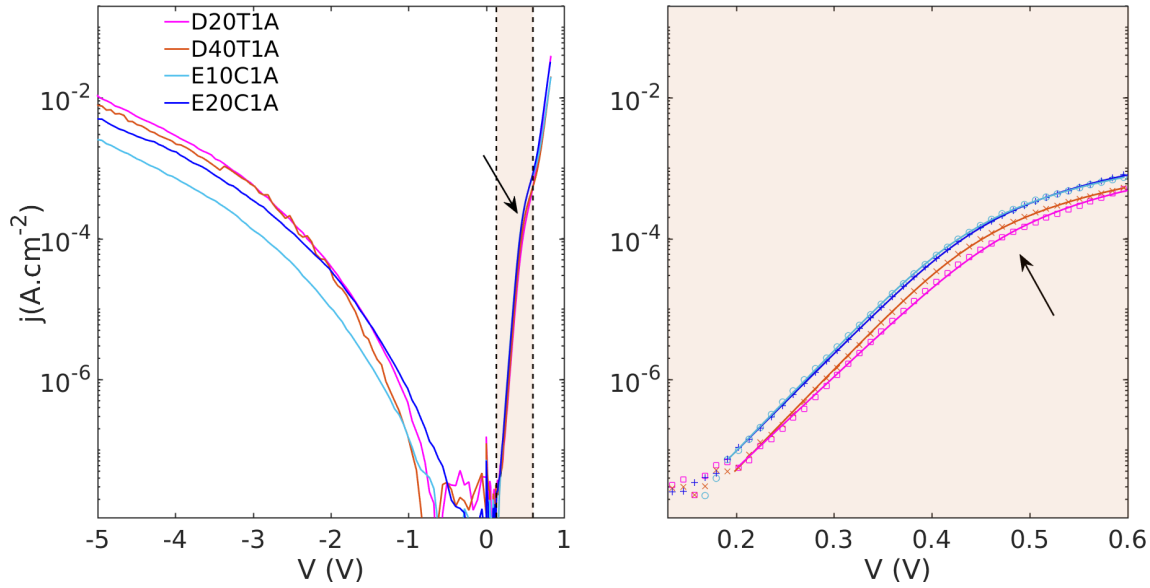


FIGURE 6.4 – Courbes I-V obtenues pour 4 pièges différents de l'échantillon D713. La figure de gauche présente les résultats bruts. La figure de droite donne les résultats de la régression numérique basée sur l'équation 6.6 et effectuée dans la plage de tension appliquée délimitée par les traits pointillés : dans cette plage de tension, la jonction est polarisée en direct et la courbe I-V possède une allure exponentielle dont le « coude », repéré par la flèche noire, peut être attribué aux effets résistifs.

6.1.3 Mesures C-V – discussion

Les résultats des mesures C-V sont présentés sur la figure 6.5. On constate que, plus la polarisation de la jonction est négative, plus les pertes ohmiques augmentent (c'est-à-dire que R_p diminue), la capacité de jonction ayant tendance à augmenter faiblement. Pour une polarisation positive croissante, le caractère passant de la jonction se manifeste par une diminution de la résistance parallèle qui s'accompagne d'une rapide augmentation de la capacité de la jonction due à la diminution de la zone de charge d'espace (ZCE). L'évolution de $1/C_s^2$ (C_s étant la capacité surfacique de jonction) en fonction de la tension de polarisation permet une détermination complémentaire de la hauteur de barrière $\Phi_b^{CV} \approx 0,7$ eV (cf fig. 6.5b) qui se base sur l'extrapolation des données à $C_s \rightarrow \infty$ (c'est-à-dire la limite d'une ZCE d'épaisseur nulle). La comparaison avec la valeur obtenue par la méthode I-V, $\Phi_b^{IV} \approx 1,2$ eV, n'est pas pleinement satisfaisante. Notre interprétation est que la présence de l'hétérojonction à puits quantique rend la situation plus complexe et devrait nous inciter à adopter un modèle plus élaboré (cf par exemple [166, 167, 168, 169, 170]).

Les relations 6.7 et 6.8 donnent accès respectivement à la largeur $W(V)$ de la zone de charge d'espace et à la densité de dopant $N_d(V)$. L'exploitation numérique de ces relations permet la reconstruction du profil de dopage (cf fig. 6.6). La figure 6.6a permet

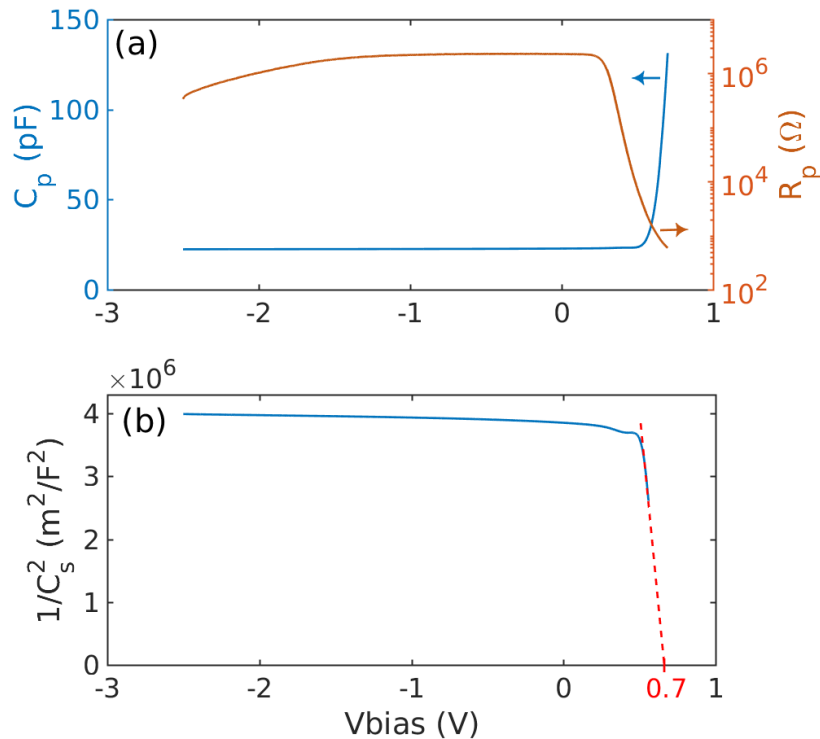


FIGURE 6.5 – Mesures C-V réalisées sur une structure L50R2C. Les conditions de mesures sont $f = 100 \text{ kHz}$, $V_{pp} = 10 \text{ mV}$. Le graphe (a) présente l'évolution des valeurs du modèle (R_p, C_p) avec la tension de polarisation, V_{bias} . Le graphe (b) représente l'inverse du carré de la capacité surfacique en fonction de la tension de polarisation. En extrapolant l'intersection de cette courbe avec l'axe horizontal, on obtient une estimation du potentiel de barrière $\Phi_b^{\text{CV}} \approx 0,7 \text{ eV}$.

de visualiser la densité volumique locale de donneurs, N_d , impliqués dans les cycles sinusoidaux de charge et décharge de la capacité de jonction autour d'une polarisation statique inverse V . La figure 6.6b montre la dépendance quasi-monotone de la zone de charge d'espace W avec la tension de polarisation.

Enfin les figures 6.6c et 6.6d présentent le profil de dopage que l'on peut déduire à partir des courbes des figures 6.6a et 6.6b. Les informations pertinentes que l'on tire de ce profil sont les suivantes :

- la concentration intrinsèque de la « cap layer » est de l'ordre de 10^{16} cm^{-3} , en accord avec ce qu'on attend pour l'alliage AlGaIn non intentionnellement dopé [120] ;
- le profil de dopage n'est pas discontinu au voisinage de l'interface métal/semi-conducteur : la concentration en donneurs décroît à mesure que l'on pénètre sous la surface de l'échantillon ;
- Au voisinage de $W = 152 \text{ nm}$, on constate une variation brusque de la concen-

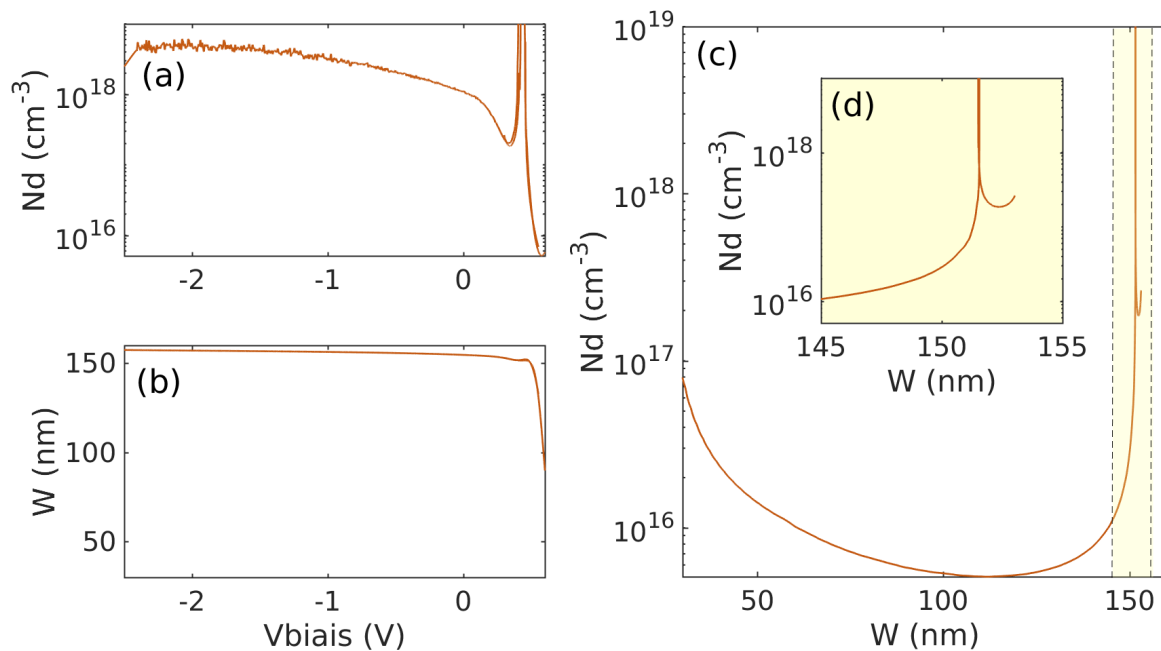


FIGURE 6.6 – Exploitation des mesures C-V réalisées sur la structure L50R2C (voir données brutes fig. 6.5). La figure (a) présente l'évolution de la densité de donneurs en fonction de la tension de polarisation. La figure (b) présente l'évolution de la zone de déplétion calculée à partir de la capacité surfacique, C_s . Le profil de dopage est donné sur la figure (c). La figure (d) permet de visualiser plus finement la zone entre 145 et 155 nm pour laquelle se trouve une « anomalie » que l'on attribue à la présence de la zone active (voir texte).

tration de dopant. Nous attribuons cette « anomalie » à la présence de la zone active (*ie* le puits quantique GaN). Toutefois, la valeur de W attendue sur cet échantillon (D713, Bottom : 100nm / QW : 7,8nm / Top : 100nm) serait plutôt $W = 100$ nm. Nous n'avons, pour l'heure, pas d'explication claire quant à cette discordance.

6.2 Mesures optiques sous polarisation

Les mesures optiques sous polarisation sont effectuées dans deux configurations expérimentales : dans le piège (avec deux expériences à faible/moyenne puissance d'excitation) et hors du piège. Dans la première configuration, l'excitation optique, et donc la création d'excitons, ont lieu **dans le piège lui-même**. Ensuite, en maintenant fixe la position du spot laser sur l'échantillon, nous recommençons avec une **puissance d'excitation plus basse**. Enfin, la seconde configuration nous permet de montrer que le transport peut être contrôlé si, au lieu d'une injection optique dans le piège, nous positionnons le spot laser **sur l'électrode semi-transparente** et nous collectons la

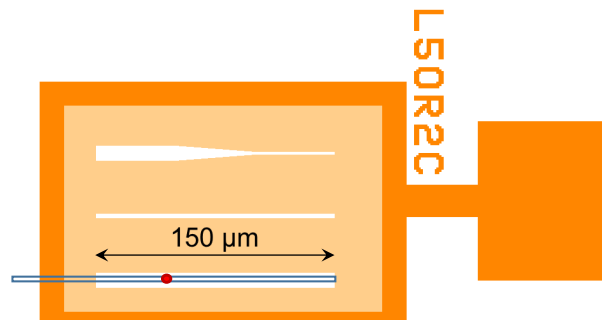


FIGURE 6.7 – Schéma de l'expérience de photoluminescence : le piège linéaire de $150\ \mu\text{m}$ x $10\ \mu\text{m}$ sur la structure L50R2C de l'échantillon D713 est optiquement pompé par un laser continu à $355\ \text{nm}$ (spot rouge). Le rectangle illustre la zone optiquement conjuguée avec la fente d'entrée du spectromètre. La polarisation électrique est variée, de $-2,8\ \text{V}$ à $+0,8\ \text{V}$ par pas de $0,1\ \text{V}$. Le spot laser est focalisé sur la surface du piège, son diamètre est de 1 à $2\ \mu\text{m}$.

luminescence provenant du piège.

6.2.1 Excitation dans le piège

L'expérience à laquelle nous nous intéressons dans ce paragraphe consiste à exciter, à l'aide d'un laser continu de longueur d'onde $355\ \text{nm}$ focalisé au niveau de sa surface, un piège linéaire de $150\ \mu\text{m}$ de long et $10\ \mu\text{m}$ de large (LR50R2C, cf §E) sur l'échantillon D713 (figure 6.7). Nous collectons la luminescence dans la direction longitudinale de ce piège (il s'agit de la zone rectangulaire délimitée sur la figure 6.7). Avec une SMU, nous varions la polarisation entre la surface supérieure et la face arrière de l'échantillon : de manière identique aux mesures I-V décrites au paragraphe 6.1.1.2, nous mesurons également le courant électrique total, somme du courant noir et du photo-courant induit par l'excitation optique. Dans cette série de mesures, l'échantillon est refroidi à $10\ \text{K}$, la puissance du laser est fixée à $2,4\ \text{mW}$ (excitation dite de « **moyenne puissance** »), la polarisation appliquée V_{bias} varie de $-2,8\ \text{V}$ à $+0,6\ \text{V}$ par pas de $0,1\ \text{V}$. L'intensité du courant parcourant la jonction métal/semi-conducteur est limitée à $10\ \mu\text{A}$ afin de la protéger d'une trop grande densité de courant.

Contrôle du remplissage du piège grâce à la polarisation appliquée Nous allons montrer que la morphologie de la luminescence évolue très clairement en fonction du potentiel électrique appliqué entre les électrodes semi-transparentes constituant les bords de piège et la face arrière de l'échantillon. Cela constitue la démonstration expérimentale que le remplissage du piège peut être contrôlé électriquement. Nous analysons l'évolution de la luminescence en fonction de la polarisation appliquée, d'une part, en nous appuyant sur les données I-V présentées sur la figure 6.9 et d'autre part,

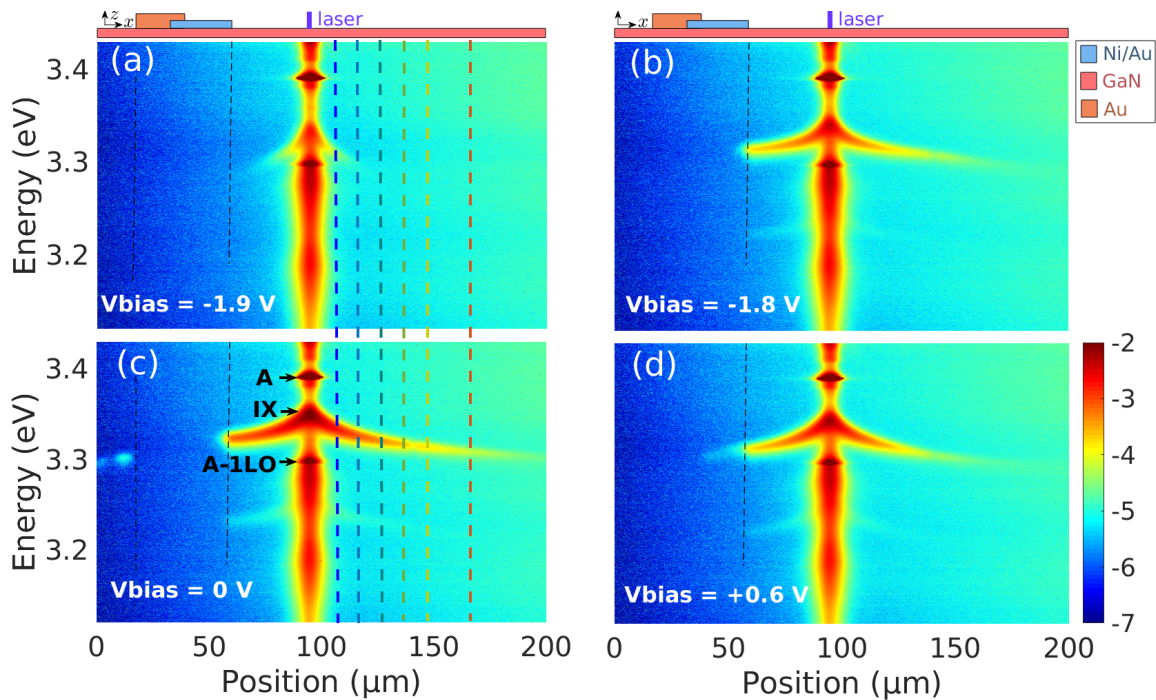


FIGURE 6.8 – Images de PL correspondant à l’expérience d’excitation dans le piège à moyenne puissance décrite sur la figure 6.7. La puissance d’excitation vaut 2,4 mW. Le logarithme de l’intensité lumineuse est encodé selon l’échelle de couleur donnée à droite. L’influence de la polarisation V_{bias} est illustrée par quatre configurations particulières : (a) pour $V_{\text{bias}} < -1,9$ V, le transport est absent, (b) pour $-1,8$ V $< V_{\text{bias}}$ le transport apparaît, (c) $V_{\text{bias}} = 0$ V la structure est en court-circuit (*ie* sous polarisation nulle), (d) $V_{\text{bias}} = +0,6$ V le potentiel de piégeage est amoindri. Les six lignes en pointillés repèrent les positions situées à diverses distances du spot laser (10, 20, 30, 40, 50 et 75 μm) qui sont exploitées sur la figure 6.11.

à l’aide des quatre images de photoluminescence (images PL) de la figure 6.8 :

- (a) Pour une polarisation négative, $V_{\text{bias}} < -1,9$ V, on constate que **le transport excitonique est absent** (fig. 6.8a) ;
- (b) Lorsque V_{bias} augmente, il existe un effet de seuil : **pour de $V_{\text{bias}} > -1,8$ V, le transport apparaît brutalement** (fig. 6.8b). On peut suivre conjointement l’évolution du photocourant et du transport dans le piège : la figure 6.9 met en évidence une chute marquée du photocourant (symboles « x » bleus) correspondant à cette même valeur seuil $V_{\text{bias}} = -1,8$ V ;
- (c) En augmentant encore la polarisation, on constate une évolution du profil de transport. Le point $V_{\text{bias}} = 0$ V correspond à un court-circuit dans la structure : la tension appliquée est nulle, et le photocourant est très faible ($\sim 2 \times 10^{-3}$ μA), mais non nul (figures 6.8c et 6.9) ;
- (d) Enfin, lorsque la polarisation est positive, le profil spatial de luminescence devient, par rapport à la situation précédente, davantage symétrique (fig. 6.8d) : on retrouve



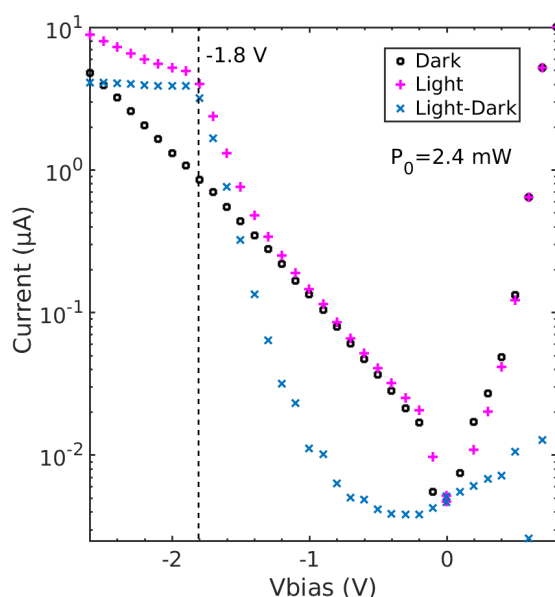


FIGURE 6.9 – Mesures I-V sous éclairage du piège linéaire L50R2C de l'échantillon D713 (voir figure 6.7 pour le protocole). Les courants d'obscurité, sous éclairage et leur différence (*ie* le photocourant) sont représentés, respectivement, par les symboles noirs (o), magentas (+) et bleus (x). L'excitation optique est assurée par un laser continu à 355 nm focalisé sur le piège et de puissance **2,4 mW**.

le profil de densité d'excitons en fonction de la distance **similaire à celui de l'espace libre**, c'est-à-dire en l'absence de piège.

Identification des raies sous le spot et à distance du spot d'excitation Sous le spot, trois raies sont identifiables (cf fig. 6.8c) : (1) la raie « A », d'énergie 3,393 eV que l'on attribue à la luminescence d'un état donneur dans la zone *bulk* du GaN¹, c'est-à-dire en dehors de la couche active (puits et barrières), (2) la raie « IX », caractéristique de l'émission excitonique sous le spot, et (3) la réplique phonon « A-1LO » de la raie A dont l'énergie de situe 91 meV sous cette dernière.

La figure 6.10 donne trois spectres prélevés à trois positions spatiales distinctes :

- à 50 μm du spot laser, c'est le spectre de la figure 6.10a,
- à 30 μm du spot laser, c'est le spectre de la figure 6.10b,
- sous le spot laser, c'est le spectre de la figure 6.10c.

Commençons par analyser la figure 6.10c qui représente les spectres de la lumière collectée **sous le spot d'excitation laser** pour différentes tensions de polarisation. On constate l'existence « d'un fond invariant » constitué essentiellement de l'émission intense à 3,39 eV (raie « A », avec saturation du détecteur), de sa réplique phonon

1. Cette raie n'est donc pas caractéristique du puits quantique.

(A-1 LO, à 3,30 eV) et d'une large zone spectrale comprise entre 3,13 eV et 3,28 eV environ. Ce « fond invariant » correspond à des recombinaisons qui ne donnent pas lieu à du transport. Ce fond invariant résulte probablement de la luminescence du plasma électrons-trous (EHP, cf § 5.4) dont la durée de vie radiative faible empêche que l'on puisse observer sa luminescence à distance du spot laser. Ce fond invariant ne sera donc pas discuté dans la suite de ce chapitre. **La raie de luminescence excitonique IX** sous le spot a son énergie qui varie avec la polarisation, typiquement entre 3,33 eV et 3,35 eV.

A distance du spot d'excitation (fig. 6.10a et 6.10b), on constate que le spectre de luminescence se compose, au contraire, de l'unique raie de luminescence excitonique IX². *Pour une polarisation donnée*, l'intensité et l'énergie de cette raie diminuent lorsque la distance augmente (cf fig. 6.8c par exemple) : cela correspond au phénomène usuel de transport d'excitons dipolaires répulsifs dans un piège linéaire tel que nous l'avons décrit au chapitre 4. *Pour une position spatiale donnée*, l'effet de la polarisation se manifeste par une variation simultanée de l'intensité et de l'énergie de la raie excitonique, tel que cela est visible sur les spectres 6.10a et 6.10b. Proposons-nous d'interpréter ces variations d'énergie.

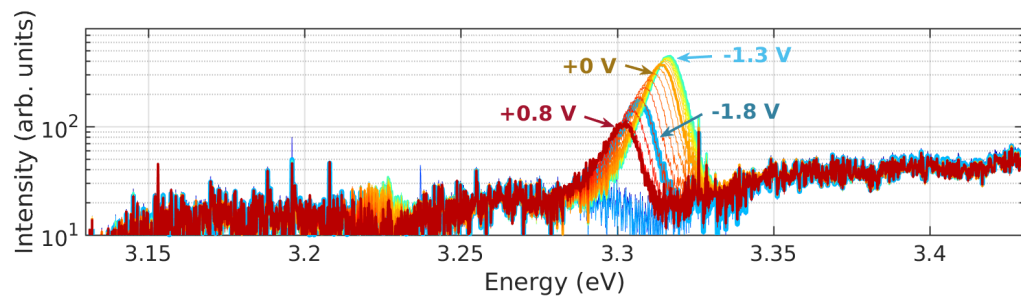
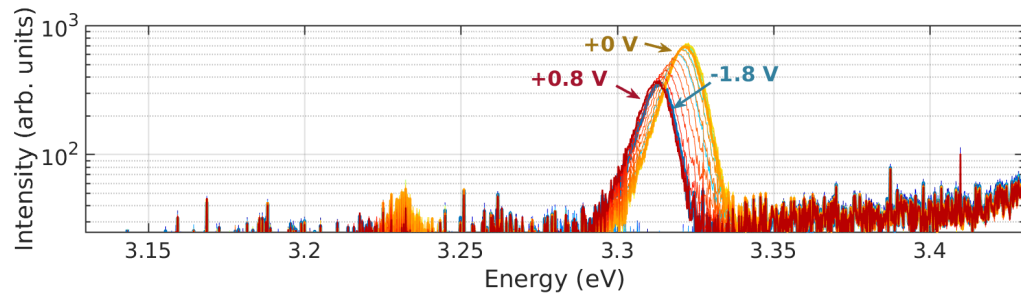
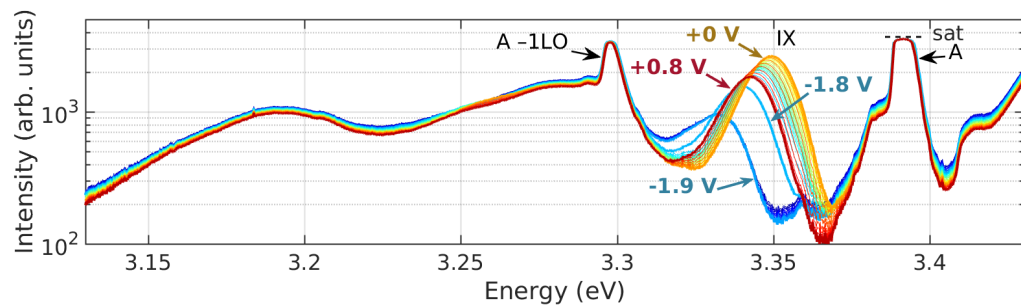
Comment interpréter l'énergie de l'émission excitonique dans le piège en présence d'une polarisation appliquée ? Il est légitime de se demander si l'interprétation usuelle constituant à attribuer le décalage énergétique de la raie IX (*blueshift*) à un accroissement de la densité d'excitons (cf § 3.5) demeure valide lorsque la structure est soumise à une polarisation électrique. Nous allons montrer dans la suite que cela est bien le cas. Ainsi, **la variation de l'énergie de la raie IX résulte non pas de la modification de l'énergie E_0 ³ par la tension V_{bias} appliquée, mais bien de la modification des propriétés de transport⁴ dans le piège linéaire⁵** : lorsque le transport est favorisé, les excitons sont facilement évacués de la zone sous le spot, ce qui diminue leur densité et donc l'énergie de cette luminescence sous le spot. La situation expérimentale correspondant à une excitation sur le semi-transparent sera présentée au paragraphe 6.2.3 et mettra en évidence un comportement très différent.

2. En réalité le spectre possède également les multiples répliques phonons de la raie IX qui n'ont pas été clairement résolues à cause du faible temps d'intégration utilisé dans cette série de mesures.

3. E_0 étant l'énergie de l'exciton dans la limite des basses densités d'excitons. Cette valeur est estimée à 3,15 eV pour l'échantillon D704 dans les zones sans électrodes en surface (cf chap. 4).

4. Par propriétés de transport, on entend non seulement la mobilité et la durée de vie des porteurs, mais également les propriétés de la structure de confinement latéral en incluant les recombinaisons radiatives au niveau des bords de piège, la hauteur finie de la barrière de potentiel et la présence du courant noir susceptible de détruire les excitons.

5. La valeur de l'énergie E_0 , pour la luminescence des excitons émanant du piège (c'est-à-dire dans les zones sans électrodes en surface), étant indépendante de la polarisation V_{bias} appliquée aux électrodes.

(a) Spectres de luminescence à 50 μm de l'excitation laser.(b) Spectres de luminescence à 30 μm de l'excitation laser.

(c) Spectres de luminescence sous l'excitation laser.

FIGURE 6.10 – Jeux de spectres de luminescence pour différentes valeurs de polarisation (-2,8 V à +0,6 V par pas de 0,1 V). Les jeux de spectres (a), (b), (c) sont relevés pour trois positions spatiales distinctes, ces positions étant repérées sur la figure 6.8.

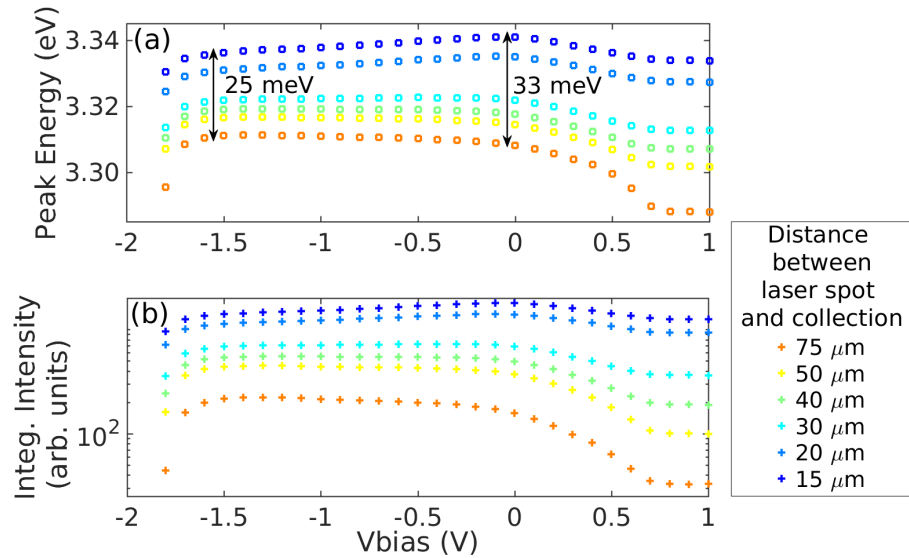


FIGURE 6.11 – Influence de la polarisation sur les paramètres (a) énergie du pic et (b) intensité intégrée de la raie de luminescence excitonique pour les six positions spatiales repérées sur la figure 6.8.

Contrôle du transport par la tension de polarisation Envisageons à présent de manière plus systématique la capacité de la polarisation à modifier le transport ⁴. Pour cela, nous avons tracé, en fonction de la polarisation appliquée, l'évolution de l'énergie et de l'intensité de la raie d'émission excitonique, pour un jeu de 6 positions spatiales respectivement prises à 10, 20, 30, 40, 50 et 75 μm du spot laser (cf fig. 6.11⁶). Voici les constats que l'on peut tirer à partir de cette figure :

- Pour des différentes positions spatiales, les maxima d'énergie de PL ne sont pas atteints pour les mêmes valeurs de polarisation : par exemple, à 15 μm du spot laser, le maximum d'énergie est atteint pour $V_{\text{bias}} \approx -0.1$ V (fig. 6.11a, carrés bleus), tandis qu'à 75 μm, l'énergie est maximale pour une polarisation davantage négative ($V_{\text{bias}} \approx -1,5$ V, fig. 6.11a, carrés orange). Cela montre que l'optimum de remplissage du piège n'est pas atteint à la même valeur de V_{bias} pour toutes les positions spatiales.
- De plus, on constate qu'à 30 μm du spot, la tension de polarisation ne semble jouer quasiment aucun rôle ni sur l'énergie, ni si l'intensité de la PL. La largeur spectrale du profil énergétique est également réduite à 25 meV pour une polarisation de $-1,5$ V alors qu'elle est de 33 meV à polarisation nulle (cf fig.6.10). Ainsi, *le profil énergétique est d'autant plus homogène que la polarisation inverse est grande* : l'optimum est atteint pour $V_{\text{bias}} = -1,5$ V. Ce résultat suggère l'**existence d'un optimum** en terme de polarisation pour la réalisation d'**une zone spatiale**

6. Les données de cette figure correspondent aux résultats du fit des raies excitoniques IX telles que celles présentées sur les spectres de la figure 6.10.



la plus uniformément peuplée en excitons. C'est d'ailleurs pour cette même valeur de polarisation, $V_{\text{bias}} = -1,5 \text{ V}$, que l'énergie de PL à la distance de $75 \mu\text{m}$ est maximale⁷.

- Lorsque le transport d'excitons au sein du piège est convenablement établi (pour $-1,7 \text{ V} < V_{\text{bias}} < 0,2 \text{ V}$), à *position spatiale donnée*, la variation d'énergie de PL avec la polarisation est de l'ordre de quelques meV (fig. 6.11a). A *polarisation donnée*, la variation d'énergie de PL avec la position (dans l'intervalle $15 \mu\text{m} - 75 \mu\text{m}$) est de 25 meV à 33 meV selon la valeur de la polarisation. Ainsi, à position spatiale fixée, la variation d'énergie lorsque la polarisation varie de $-1,7 \text{ V}$ à $+0,2 \text{ V}$ est inférieure à la variation d'énergie, à polarisation fixée, lorsque la position spatiale varie dans l'intervalle $15 \mu\text{m} - 75 \mu\text{m}$.
- Enfin, on constate que l'évolution de l'intensité de PL suit une évolution similaire à celle de l'énergie (fig. 6.11b), l'allure des courbes et la position des maxima étant très similaires à celles des énergies. On peut donc se demander si, la relation Intensité – Énergie de l'émission est comparable à celle que l'on observait lorsque nous discutons les effets du piégeage (cf fig. 4.17, et § 4.4.1) : en présence de polarisation, l'évolution de l'intensité avec l'énergie possède-t-elle encore une allure exponentielle ? Cette question est traitée ci-après.

Indépendance de l' « énergie à vide » E_0 du puits quantique vis-à-vis de la tension de polarisation On constate sur la figure 6.12 que l'ensemble des données collectées pour les 6 positions spatiales ($15, 20, 30, 40, 50$ et $75 \mu\text{m}$) et les diverses tensions de polarisation se positionnent sensiblement selon une unique courbe maîtresse, telle que nous l'avons déjà décrite dans le chapitre 4 (cf fig. 4.2). On utilise donc le même modèle (éq. 4.2) pour relier l'intensité I et l'énergie E de la raie IX,

$$I/\Delta E \propto e^{\Delta E/E_r} \quad (6.11)$$

où $E_r = \gamma\Phi_0$ est l'échelle d'énergie typique de variation de l'intensité (plus sa valeur est grande, moins l'intensité de PL varie avec l'énergie), et $\Delta E = E - E_0$, avec E_0 l'énergie de l'exciton dans la limite des très basses densités. La régression linéaire (cf pointillés rouges fig. 6.12) effectuée sur les 6 jeux de données (jeux des 6 différentes positions) fournit les paramètres

$$E_0 = 3,296 \text{ eV} \text{ et } E_r = 34 \text{ meV}.$$

Ceci prouve que la polarisation, qui est appliquée sur l'électrode « autour du piège » mais pas à la verticale du piège, modifie la hauteur de la barrière de confinement

7. L'existence de ce maximum d'énergie de PL à $75 \mu\text{m}$ pour $V_{\text{bias}} = -1,5 \text{ V}$ corrobore le fait que la densité excitonique est également maximale pour cette polarisation.



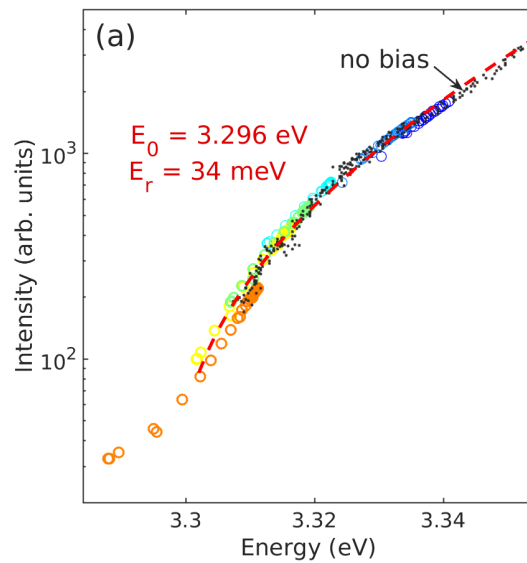


FIGURE 6.12 – Relation entre l’intensité et l’énergie de PL de la raie IX obtenue à partir des données de la figure 6.11. Les six jeux de positions (15, 20, 30, 40, 50 et 75 μm) sont présentés avec le même code couleur que celui de la figure source 6.11. Les points noirs sont les données obtenues à polarisation nulle. La courbe en pointillées rouges est le résultat de la modélisation (voir description dans le texte).

latéral mais ne modifie pas l’énergie asymptotique E_0 du puits quantique à densité nulle d’excitons.

Comparaison des échantillons D704 et D713 et de leurs relations Energie-Densité d’excitons Les figures 6.13a et 6.13b permettent de confronter les données Intensité - Énergie de la raie IX, obtenues pour l’échantillon D713, lorsque l’on varie simultanément la position spatiale et la polarisation, avec :

- les données Intensité - Énergie obtenues pour l’échantillon D704 (fig. 6.13a, étoiles bleues, cercles verts et carrés bleus) dont le champ électrique interne au puits quantique est plus fort ⁸ ;
- l’évolution des intégrales de recouvrement des fonctions d’onde électron et trou (fig. 6.13b) lorsque l’on augmente la densité de porteurs injectés dans les structures D704 (en bleu) et D713 (en rouge). Il s’agit de données obtenues via le code Poisson-Schrödinger décrit au paragraphe 3.2.3.

Les valeurs des paramètres E_r décrivant le mieux les données expérimentales sont de 87,6 meV et 34 meV sont en accord qualitatif avec les données du modèle Poisson-Schrödinger (cf courbes en pointillés de la figure 6.13a) qui prédit les valeurs de 36 meV

8. Rappelons qu’un champ électrique interne au puits quantique plus fort conduit à une énergie de la transition E_1H_1 plus faible ainsi qu’à un taux de recombinaison radiatif plus faible.



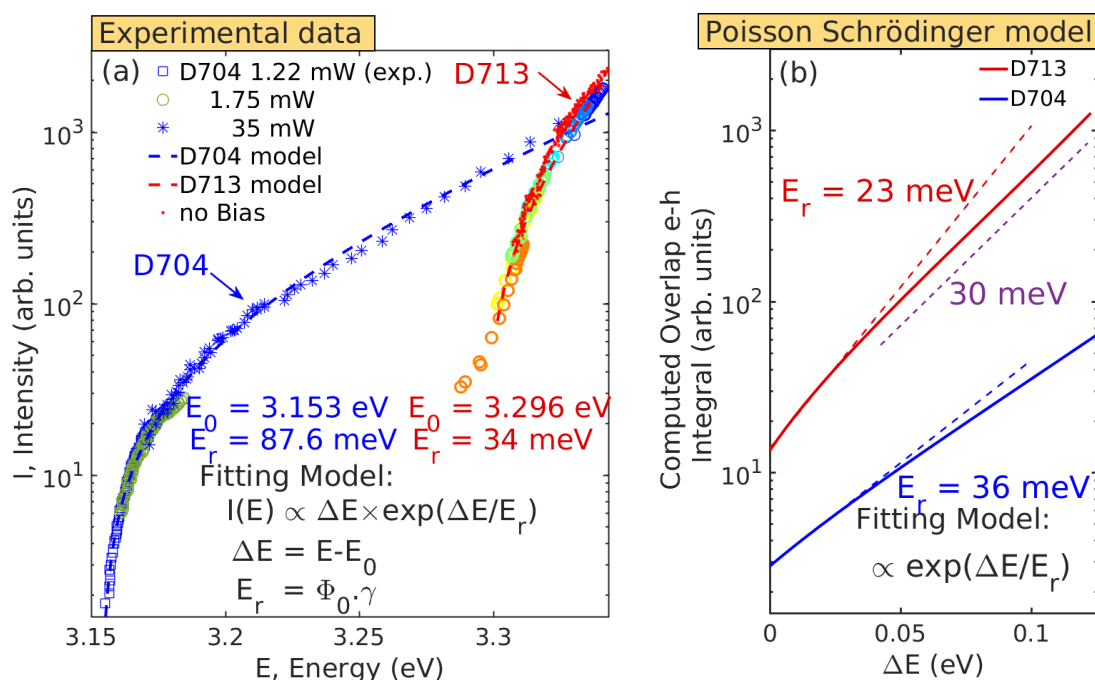


FIGURE 6.13 – (a) évolution de l'intensité en fonction de l'énergie de la raie IX pour, d'une part, l'échantillon D704 étudié à 3 puissances différentes (cf légende) et, d'autre part, l'échantillon D713 (les données étant celles de la figure 6.11, le code couleur des 6 positions étant le même). En pointillés sont tracés les résultats de la modélisation (cf éq. 6.11) qui fournissent les valeurs E_0 et E_r . Les points rouges représentent les données pour l'échantillon D713 en l'absence de polarisation. (b) intégrale de recouvrement (à une constante multiplicative près) en fonction du *blueshift* énergétique ΔE résultant du calcul par le code Poisson-Schrödinger (cf §3.2.3) pour l'échantillon D713 (rouge) et D704 (bleu). Les pointillés sont des approximations exponentielles, les paramètres E_r , représentant l'inverse des pentes, sont précisés sur la figure.

et 23 meV pour D704 et D713, respectivement. L'échantillon ayant le plus grand champ interne a son énergie d'émission la plus faible mais également la variation d'intensité radiative avec l'énergie qui est la moins marquée : on constate effectivement que la valeur de E_r la plus élevée, 36 meV, est celle du D704 qui possède la plus grande concentration en aluminium dans les barrières et donc le plus fort champ interne.

Outre le fait de valider à nouveau les phénomènes physiques déjà décrits pour l'échantillon D704 au chapitre 4, ces résultats confirment que **la relation Intensité-Energie de la raie IX émanant de la zone piège n'est pas affectée par la valeur de polarisation appliquée** au niveau de l'électrode. Ainsi, la relation densité - *blueshift* peut donc être conservée même en présence de polarisation.

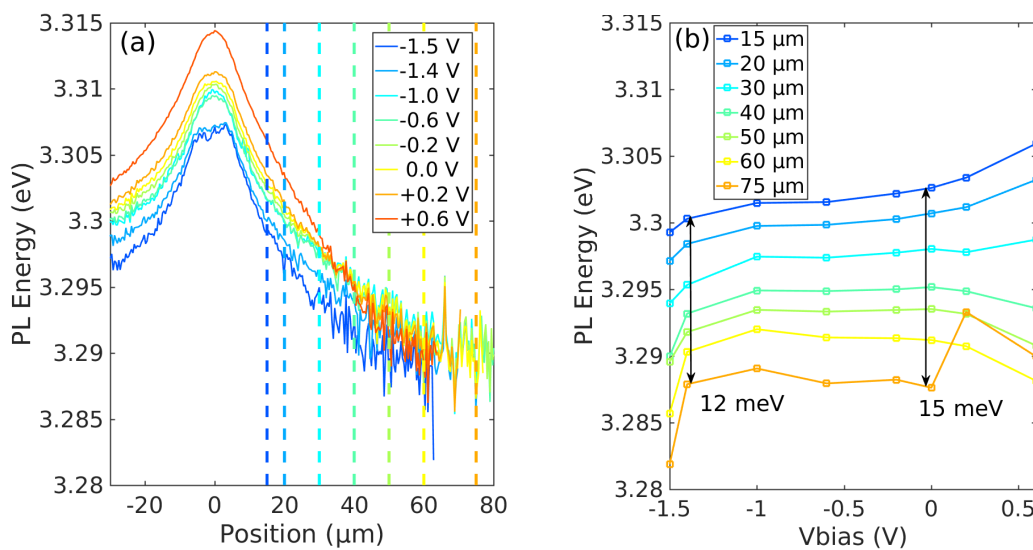


FIGURE 6.14 – Profils énergétiques résolus en espace (a) et en polarisation (b). L'excitation laser de puissance **0,60 mW** est focalisée **dans le piège linéaire** de la structure L50R2C (protocole décrit sur la figure 6.7). Les positions spatiales (15, 20, 30, 40, 50, 60 et 75 μm) utilisées pour construire la figure de droite sont repérées sur la figure de gauche par des tirets reprenant le même code couleur.

Synthèse Les conclusions préliminaires que l'on peut tirer de cette section sont les suivantes.

- D'une part, le contrôle électrostatique du piégeage est possible : nous **modulons la hauteur de la barrière de confinement latéral dans le piège et le transport des excitons par le potentiel appliqué.**
- L'évolution du photocourant est corrélée au transport excitonique : lorsque la polarisation inverse est trop grande, les porteurs de charges sont séparés dans la direction z et contribuent au courant électrique au lieu de participer au transport dans le plan et donner lieu à une recombinaison radiative. Tant que **la polari-**



sation inverse $|V_{\text{bias}}|$ est inférieure à une valeur seuil, le transport est possible le long du piège filiforme.

- L'énergie de la raie excitonique émanant d'une zone sans électrode en surface (donc dans le piège) est le reflet de la densité d'excitons, de manière similaire à la situation où la polarisation n'est pas appliquée.
- Enfin, nous avons observé l'existence d'une tension de polarisation optimale en terme d'uniformité du profil énergétique : cela tend à prouver que **l'uniformité de la densité spatiale du fluide excitonique est améliorée** grâce à la polarisation que l'on est susceptible d'imposer.

6.2.2 Effet de la puissance d'excitation

L'expérience décrite dans ce paragraphe est identique à celle du paragraphe précédent (cf schéma de la fig. 6.7), hormis la puissance d'excitation qui est quatre fois plus faible ($P_0 = 0,60$ mW, au lieu de 2,4 mW). On s'attend donc à :

- une injection moins importante de porteurs, donc un photocourant réduit,
- une densité d'excitons plus faible, qui se traduira par un *blueshift* et donc une énergie d'émission plus faible,
- un transport moins efficace car des interactions répulsives moins intenses⁹.

Effet de seuil avec la polarisation appliquée L'évolution de la luminescence avec la tension de polarisation est donnée sur la figure 6.15 qui regroupe quatre images de PL correspondant aux situations caractéristiques suivantes :

- $V_{\text{bias}} < -1,5$ V, le transport est absent,
- $V_{\text{bias}} = -1,4$ V, le transport apparaît sous polarisation inverse de la jonction métal/semi-conducteur,
- $V_{\text{bias}} = +0,3$ V, il s'agit d'une situation intermédiaire dans laquelle jonction est polarisée en direct,
- $V_{\text{bias}} = +0,8$ V, le potentiel de piégeage ($E_t \approx 30$ meV) est quasiment supprimé, le profil de luminescence devient donc symétrique de part et d'autre de l'excitation laser.

Tout comme dans l'expérience décrite au paragraphe précédent, il existe une *valeur seuil* de la polarisation inverse à partir de laquelle le transport excitonique n'est plus possible. La nouvelle valeur seuil est $V_{\text{bias}} = -1,5$ V, contre $-1,8$ V précédemment. Ainsi,

9. Par ailleurs, le remplissage du piège étant moins important, la fraction d'excitons localisés sur les minima du potentiel désordonné est plus importante. Cela contribue probablement à limiter aussi le transport.



lorsque la puissance du laser diminue, **il n'est plus possible d'avoir le transport excitonique tout en maintenant une forte polarisation inverse**. Nous interprétons cela de la manière suivante : la densité de porteurs créés sous le spot est réduite, si bien que les porteurs contribuent préférentiellement au photocourant via un « mécanisme de séparation de charges dans la direction z » plutôt qu'à un transport dans le plan du puits quantique.

Proportion de photons incidents contribuant au photocourant à saturation

La figure 6.16 donne les courbes I-V obtenues pour les deux puissances d'excitation distinctes (2,4 mW sur la figure de gauche et 0,6 mW sur la figure de droite). Voici ce qu'apporte leur comparaison : à polarisation très négative, lorsque la puissance du laser est de 0,6 mW, le photocourant sature à environ $1 \mu\text{A}$ ($0,85 \mu\text{A}$ sous $-2,6 \text{ V}$). En revanche, lorsque la puissance du laser est de 2,4 mW, le photocourant sature à environ $4 \mu\text{A}$ ($4,10 \mu\text{A}$ sous $-2,6 \text{ V}$). Le photocourant à saturation varie approximativement d'un facteur 4, c'est-à-dire proportionnellement à la puissance du laser. Ainsi, la proportion de porteurs photocréés qui donnent lieu à un courant électrique est-elle maximale lorsque la jonction est fortement polarisée en inverse. On peut estimer la proportion de ces porteurs en la ramenant au flux de photons incidents sur l'échantillon

$$\Phi_{\text{incident}} = \frac{P\lambda}{hc} \quad (6.12)$$

où e est la charge élémentaire et hc/λ est l'énergie du photon laser de longueur d'onde dans le vide $\lambda = 355 \text{ nm}$ ($3,49 \text{ eV}$). Ce flux incident conduirait, en cas de recombinaison « 1 pour 1 » de chaque photon en *une* paire électron-trou, à une intensité de courant électrique I_{incident} telle que

$$I_{\text{incident}} = e\Phi_{\text{incident}} = eP/h\nu = 0,6 \cdot 10^{-3} / 3,49 = 171 \mu\text{A}. \quad (6.13)$$

On constate donc que la proportion des photons incidents qui, absorbés par l'échantillon, sont collectés par les électrodes et contribuent au photocourant, demeure relativement faible ($\approx 1/171 \approx 0,6\%$). Cette proportion est donc globalement inchangée lorsque la puissance du laser est augmentée.

Influence de la polarisation sur le profil énergétique Les figures 6.14a,b fournissent, pour cette nouvelle puissance d'excitation de 0,6 mW, les valeurs de l'énergie de l'émission excitonique extraite à partir de raies spectrales¹⁰ similaires à celles la figure 6.10. La figure 6.14a donne l'évolution spatiale de l'énergie d'émission pour huit

10. Les valeurs d'énergie présentées sur les figures 6.14a,b sont obtenues par modélisation de l'allure triangulaire de la raie excitonique.



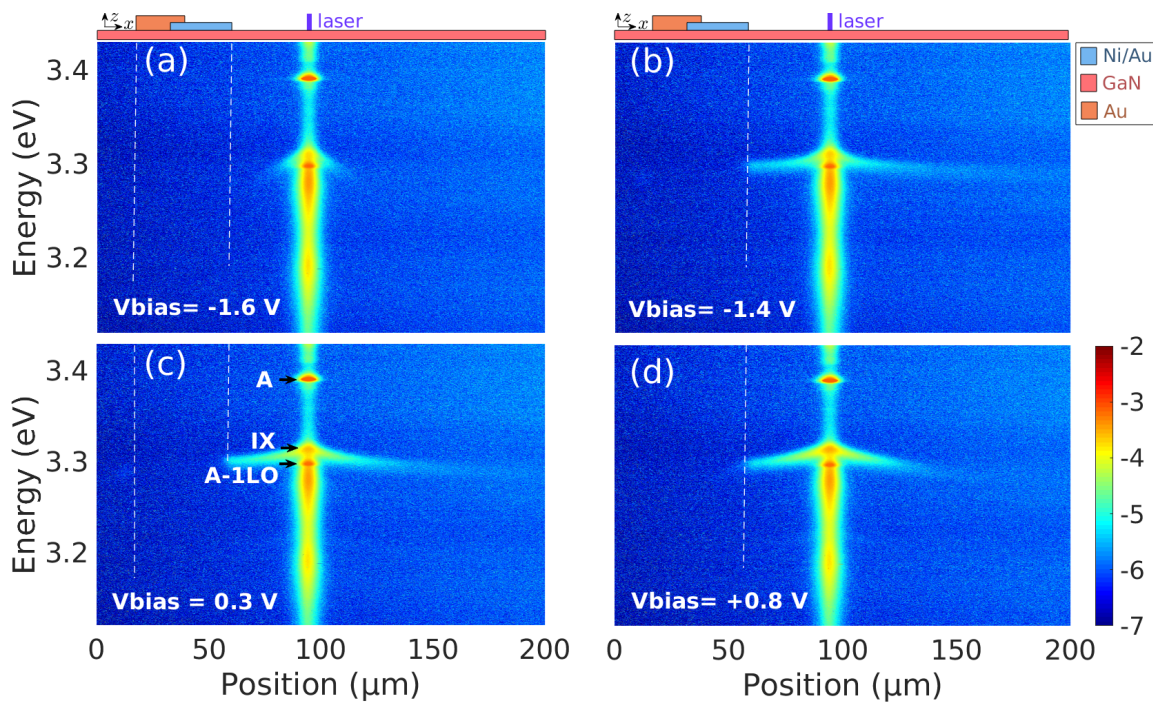


FIGURE 6.15 – Images de PL correspondant à l'**expérience d'excitation dans le piège à puissance faible** décrite sur la figure 6.7. La puissance d'excitation vaut 0,6 mW. Le logarithmique de l'intensité lumineuse est encodé selon l'échelle de couleur donnée à droite. L'influence de la polarisation V_{bias} est illustrée par quatre configurations particulières : (a) $V_{\text{bias}} < -1,5$ V, le transport est absent, (b) $V_{\text{bias}} > -1,4$ V le transport apparaît, (c) $V_{\text{bias}} = 0,3$ V correspond à une situation de remplissage maximum, (d) $V_{\text{bias}} = +0,8$ V le potentiel de piégeage est amoindri.

valeurs particulières de la polarisation appliquée :

- On constate un *redshift* global du profil énergétique de l'ordre 5 à 7 meV lorsque la tension de polarisation varie de $-1,5$ V à $+0,6$ V. Deux hypothèses pourraient expliquer ce *redshift* :
 - (1) c'est l'énergie de l'exciton dans la limite d'une densité nulle, « E_0 », qui est altérée par l'application de la tension de polarisation,
 - (2) la valeur de cette énergie « E_0 » n'est pas modifiée, le piège est davantage rempli en porteurs chargés, l'augmentation de l'énergie d'émission résulte alors du redressement du diagramme de bande consécutif à l'existence des deux plans de charges opposées aux extrémités du puits quantique.

Dans ce qui suit, nous allons argumenter pour invalider l'hypothèse (1) en faveur de l'hypothèse (2).

- En observant attentivement les différents profils énergétiques, on constate également que leur allure possède une décroissance avec la distance plus rapide lorsque la polarisation est de $+0,6$ V. Cela s'explique par l'annihilation du potentiel de piégeage sous le semitransparent. C'est l'effet du redressement du diagramme de bandes induit par l'interface métallique (effet de jonction Schottky, cf § 3.1.2, § 3.1.3 et fig. 3.4). La propagation des excitons ne se fait plus le long du piège linéaire car une partie du fluide excitonique « fuit » sous les électrodes métalliques qui ne jouent plus leur rôle confinant (cf fig.4.18 pour une illustration expérimentale).

La figure 6.14b, peut être comparée à la figure 6.11a obtenue à plus forte excitation. On constate comme précédemment, une réduction de l'inhomogénéité énergétique du profil spatial qui diminue de 15 meV à polarisation nulle à seulement 12 meV lorsque la polarisation est de $-1,4$ V. Ainsi, **l'uniformité de la densité spatiale** est, ici encore, **améliorée grâce à la polarisation inverse** de la jonction métal/semi-conducteur.

6.2.3 Excitation sur l'électrode semi-transparente

On s'intéresse à présent aux conséquences de l'injection de porteurs sur l'électrode semi-transparente. On s'attend donc à visualiser non seulement les effets de la hauteur de la barrière de potentiel de confinement mais également la dépendance de cette barrière avec la tension appliquée. Dans cette section, le spot laser est focalisé sur l'électrode semi-transparente, à $7 \mu\text{m}$ du bord du piège (cf fig. 6.17). La puissance du laser est de **3,8 mW**, la température toujours de 10 K. Comme dans les deux expériences précédentes, nous augmentons la tension de polarisation de -3 V à $+0,8$ V, par pas de $+0,1$ V. Nous effectuons simultanément l'acquisition des images de luminescence dans le piège (cf fig. 6.18) et de l'intensité du courant traversant la jonction (cf fig. 6.21).



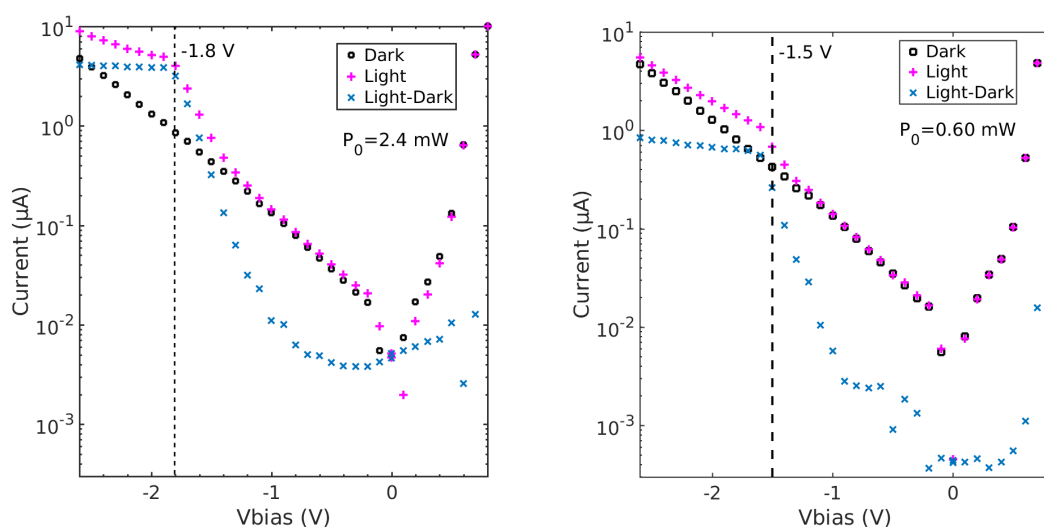


FIGURE 6.16 – Comparaison des mesures I-V sous éclairage pour la structure L50R2C de l'échantillon D713 (voir figure 6.7 pour le protocole) pour deux puissances d'excitation différentes : (a) 2,4 mW à gauche, correspondant à la situation du paragraphe précédent, et (b) 0,60 mW à droite, situation décrite dans ce paragraphe. Les courants d'obscurité, sous éclairage et leur différence (*ie* le photocourant) sont représentés, respectivement, par les symboles noirs (o), magentas (+) et bleus (x).

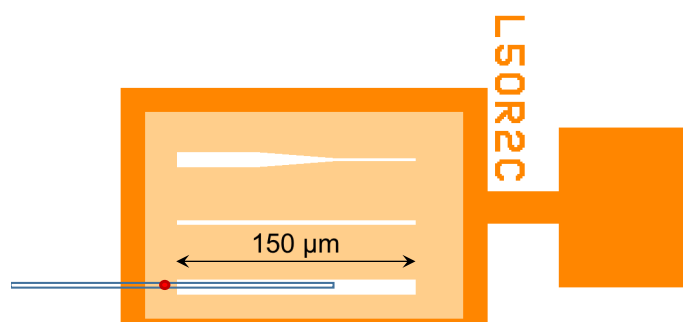


FIGURE 6.17 – Schéma de l'expérience de photoluminescence avec **excitation sur le semi-transparent** : le piège linéaire de $150\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ sur la structure L50R2C de l'échantillon D713 est optiquement pompé par une excitation laser continue à 355 nm (spot rouge), située à $7\ \mu\text{m}$ du bord de piège. Le rectangle illustre la zone de lumière collectée et optiquement conjuguée avec la fente d'entrée du spectromètre. La polarisation électrique est variée, de $-3\ \text{V}$ à $+0,8\ \text{V}$ par pas de $0,1\ \text{V}$. Le diamètre du spot laser est de l'ordre du micromètre.

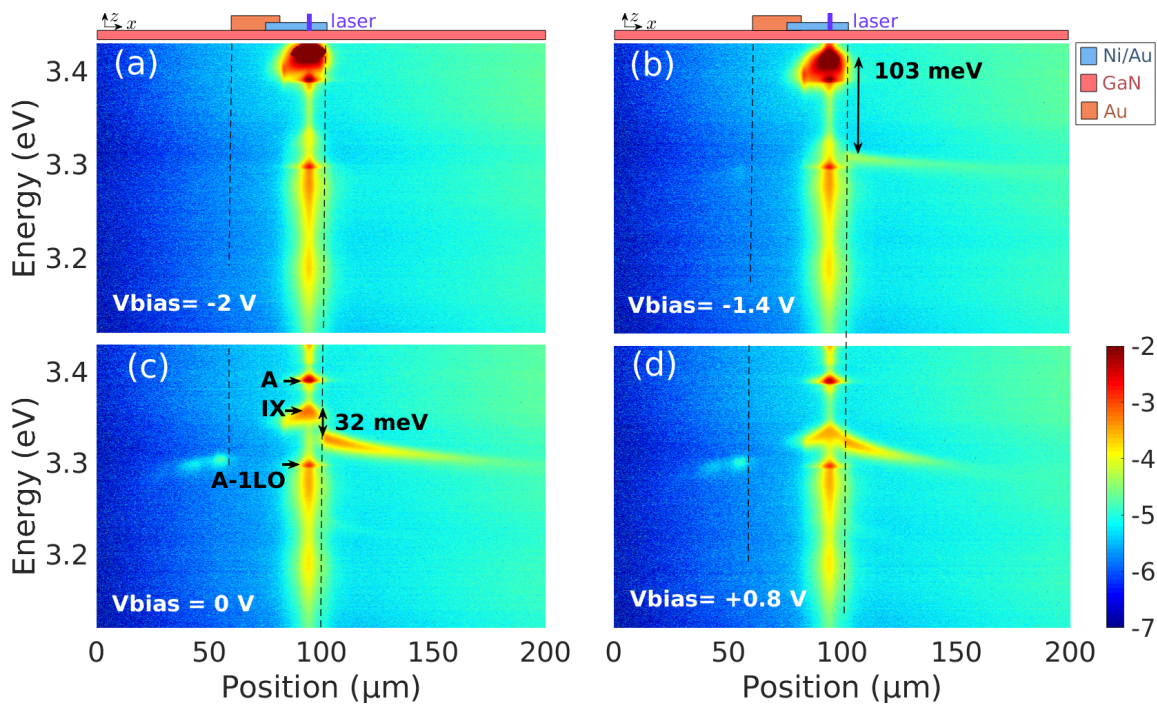


FIGURE 6.18 – Images PL correspondant à l’expérience décrite sur la figure 6.17. La puissance d’excitation vaut **3,8 mW**. Le logarithmique de l’intensité lumineuse est encodé selon l’échelle de couleur donnée à droite. L’influence de la polarisation V_{bias} est illustrée par quatre configurations particulières : (a) $V_{\text{bias}} < -1,6$ V, le transport est absent, (b) $V_{\text{bias}} = -1,4$ V le transport apparaît, (c) $V_{\text{bias}} = 0$ V correspond à une situation de remplissage maximum, (d) $V_{\text{bias}} = +0,8$ V le potentiel de piégeage est amoindri.



Contrôle du remplissage du piège grâce à la polarisation appliquée Sur la figure 6.18 quatre images PL correspondant à quatre configurations particulières sont représentées, le bord de piège étant repéré par les tirets noirs :

- (a) pour $V_{\text{bias}} < -1.6$ V, le transport est absent,
- (b) pour $V_{\text{bias}} > -1,6$ V, le transport apparaît,
- (c) $V_{\text{bias}} = 0$ V, le profil énergétique dans le piège est maximum, donc le remplissage du piège est optimal,
- (d) pour $V_{\text{bias}} = +0,8$ V, le potentiel de piégeage est amoindri et le profil de luminescence revêt une allure davantage symétrique.

La figure 6.18c fait clairement apparaître une **discontinuité de l'énergie** entre, d'une part, la luminescence dans le piège et, d'autre part, la luminescence sous le semitransparent. A polarisation nulle, le saut énergétique de 32 meV est très proche de la valeur du potentiel de confinement E_t que nous avons évaluée au chapitre 4 à 30 meV (cf §4.3.1).

Sous l'excitation laser, on observe que la raie de luminescence A (cf fig. 6.8, 6.15 et 6.10) a son énergie qui **n'évolue pas** avec la polarisation appliquée, son énergie est de 3,393 eV. *A contrario*, pour la **raie IX**, caractéristique de l'émission excitonique sous le spot laser, on constate que **son énergie varie avec la tension de polarisation** V_{bias} (cf spectres fig. 6.19a). Par rapport aux situations décrites dans les deux paragraphes précédents où l'excitation se faisait dans le piège, le fait d'injecter des porteurs sur l'électrode semi-transparente permet donc de visualiser la dépendance de l'énergie de l'émission avec la tension appliquée : lorsque la tension appliquée, V_{bias} , augmente de -3 V à $+0,8$ V, l'énergie de l'émission excitonique sous le spot (raie IX), diminue de 3,425 eV à 3,335 eV (soit une variation de 90 meV, cf fig. 6.20).

Contrôle de l'énergie de la raie IX sous l'électrode semi-transparente La figure 6.19 donne l'évolution, avec la tension de polarisation, des spectres (a) sous le spot laser et (b) à $11 \mu\text{m}$ du spot, c'est-à-dire correspondant à la luminescence en provenance du piège. On vérifie que les allures spectrales de la raie A et de sa réplique phonon (A-1LO) demeurent inchangées. Par ailleurs, ces raies sont absentes des spectres obtenus dans la zone piège (b). En revanche, la raie IX évolue, en position énergétique mais également en intensité. Par ailleurs, on constate que l'intensité de la réplique phonon (A-1LO) diminue lorsque la tension V_{bias} augmente (cf encart de la figure 6.19a), cette diminution semblant s'effectuer *en marches d'escalier*. L'origine physique de ce phénomène n'est, pour l'heure, pas encore comprise.

La variation de l'énergie d'émission sous le spot (raie IX) en fonction de la tension de polarisation V_{bias} est tracée sur la figure 6.20. On observe que :



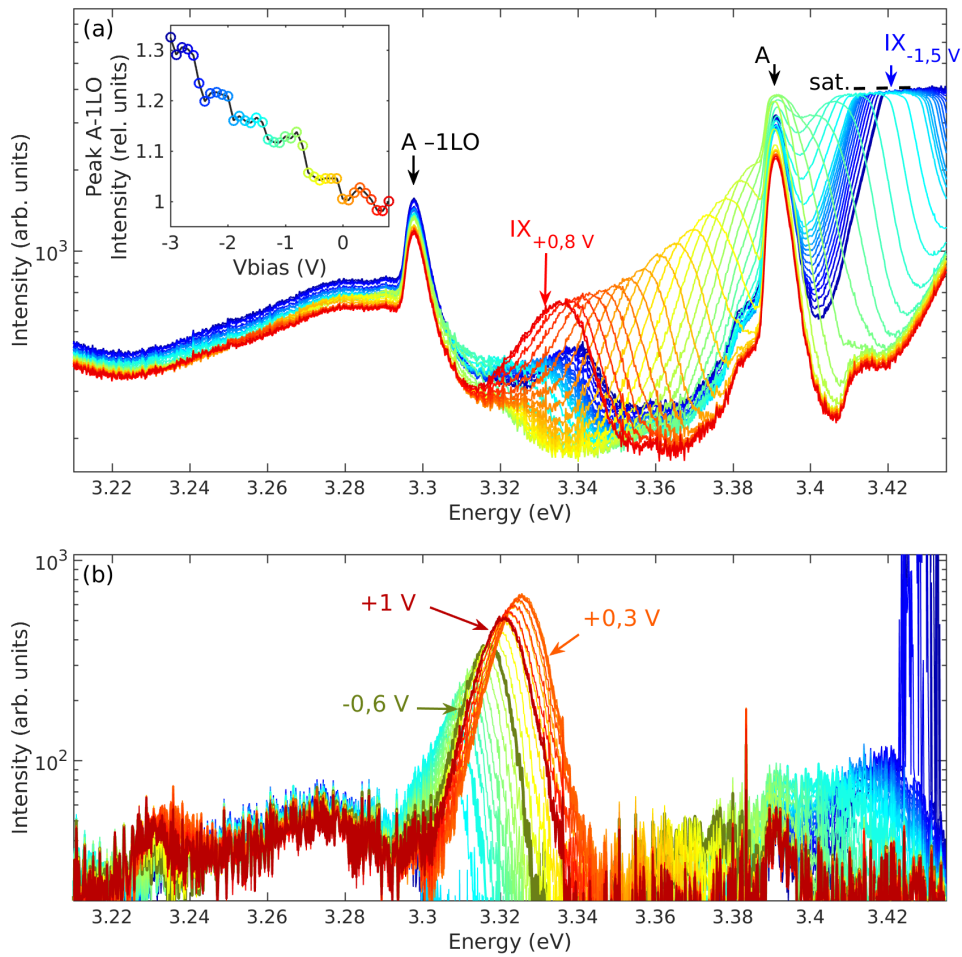


FIGURE 6.19 – Série de spectres (a) sous le spot laser et (b) à 11 μm du laser (dans le piège) pour l'excitation sur l'électrode semi-transparente de puissance 3,8 mW (voir figure 6.17 pour le protocole) pour différentes tensions de polarisation. La valeur de polarisation de chaque spectre évolue de -3 V (bleu) à $+0,8$ V (rouge) par pas de 0,1 V, selon un code couleur de type « arc-en-ciel ». L'encart donne l'évolution de l'intensité de la réplique phonon, pic « A-1LO », en fonction de la polarisation.

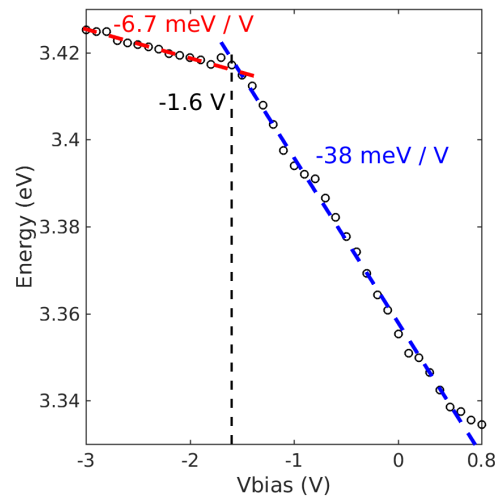


FIGURE 6.20 – Évolution de l'énergie de la raie IX collectée sous le spot laser avec la tension de polarisation appliquée, lorsque l'excitation s'effectue sur le semi-transparent.

- tant que $V_{\text{bias}} < -1,6 \text{ V}$, le transport n'est pas apparu dans le piège et l'énergie d'émission décroît avec l'augmentation de V_{bias} selon une pente de $-6,7 \text{ meV/V}$,
- dès que V_{bias} dépasse la valeur seuil de $-1,6 \text{ V}$, le transport est visible dans le piège, la décroissance de l'énergie d'émission s'effectue alors selon une pente plus marquée de -38 meV/V .

Pour expliquer cette pente de -38 meV/V , notre interprétation est la suivante : une polarisation inverse ($V_{\text{bias}} < 0$) au niveau du semi-transparent a pour effet de redresser le diagramme de bande en diminuant le champ électrique interne dans le puits quantique (cf schémas des bandes CB et VB de la figure 6.25). Il en résulte une **augmentation de l'énergie de la transition E_1H_1** et donc, de l'énergie de l'émission excitonique. Une augmentation de V_{bias} de ΔV , se traduit, en première approximation, par une modification du diagramme de bande dans les seuls premiers 208 nm de la structure qui correspondent à la zone non intentionnellement dopée (on rappelle les largeurs des différentes zones pour l'échantillon D713 : top 100 nm ; puits quantique 8 nm ; bottom 100 nm). La longueur de désertion est suffisamment grande ($L_{ZCE} \approx 300 \text{ nm}$, cf §3.1.2) pour que **la modification de potentiel électrostatique** résultant de l'application de la tension V_{bias} **soit quasiment linéaire** sur ces 208 nm. Ainsi, la diminution de l'énergie de l'émission, ΔE , avec l'augmentation de la polarisation V_{bias} est donnée par proportionnalité

$$\Delta E = e \frac{L_W}{L_B + L_W} V_{\text{bias}} \quad (6.14)$$

entre la largeur $L_W = 8 \text{ nm}$ du puits quantique et la largeur totale $L_B = 200 \text{ nm}$ des



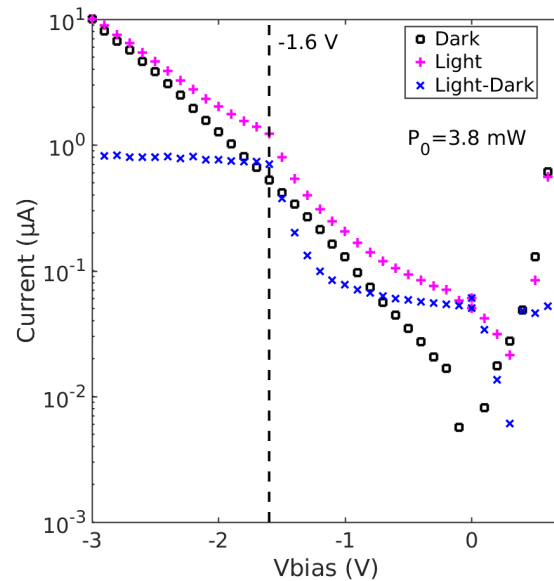


FIGURE 6.21 – Mesures I-V sous éclairage du piège filiforme L50R2C de l'échantillon D713, l'excitation optique ayant lieu **sur l'électrode semi-transparente** (voir figure 6.17 pour le protocole). Les courants d'obscurité, sous éclairage et leur différence (*ie* le photocourant) sont représentés, respectivement, par les symboles noirs (o), magentas (+) et bleus (x). La puissance du laser incident est de **3,8 mW**.

barrières (top et bottom). Par conséquent, on vérifie que la variation ΔE de l'énergie de l'émission avec la polarisation V_{bias} se fait linéairement selon

$$\Delta E/V_{\text{bias}} = 8/208 \approx 38,5 \text{ meV/V} \quad (6.15)$$

c'est-à-dire en parfait accord avec les mesures expérimentales.

Photocourant et seuil d'apparition du transport dans le piège Les mesures I-V présentées sur la figure 6.21 montrent que, par rapport aux deux situations précédentes (excitation dans le piège à 2,4 mW et 0,6 mW) :

- le photocourant (symboles « x » bleus) est relativement faible à saturation, soit de l'ordre de $0,8 \mu\text{A}$ sous $-2,6 \text{ V}$. Cette valeur est similaire à ce qu'on obtient dans le piège lorsque la puissance est seulement de $0,6 \text{ mW}$, soit $6,3$ fois plus faible. Or, les porteurs créés sous le semi-transparent ne participent pas moins au photocourant dans la direction z que lorsqu'ils sont créés directement dans le piège car ils doivent en plus effectuer un transport dans le plan pour regagner l'électrode métallique. Ainsi, nous pouvons légitimement supposer que **la création de porteurs par excitation optique sur le semi-transparent est moins efficace** que dans le cas d'une excitation directement dans le piège. Cela est probablement dû



à l'épaisseur de l'électrode métallique : le rayonnement laser incident serait majoritairement réfléchi et seule une faible proportion de ce rayonnement incident (environ un sixième¹¹) parviendrait effectivement à passer sous le semi-transparent pour contribuer à la création des porteurs.

- le photocourant à polarisation nulle vaut $5 \cdot 10^{-2} \mu\text{A}$. Il est plus important que lorsque l'excitation se situe directement dans le piège ($3 \cdot 10^{-4} \mu\text{A}$ pour 0,6 mW et $5 \cdot 10^{-3} \mu\text{A}$ pour 2,4 mW), et cela d'au moins un ordre de grandeur. Ceci s'explique par le fait que, même lorsque le transport excitonique dans le piège a lieu, l'injection de porteurs sur le semi-transparent s'accompagne « d'une perte » conséquente de charges car ces dernières sont plus facilement séparées dans la direction z grâce à l'effet du redressement de bande induit par la présence du métal à la surface : le processus de recombinaison interbande est en compétition avec la séparation des charges par le champ électrique appliqué.

Pour $V_{\text{bias}} > -1,6 \text{ V}$, on observe une chute du photocourant qui s'accompagne de l'apparition du transport dans le piège. Cette valeur seuil est similaire à celle que nous observons avec une puissance laser de 0,6 mW lorsque l'excitation se situe dans le piège. On constate donc qu'aux mêmes valeurs seuil correspondent les mêmes photocourants à saturation. Tout se passe comme si, **le transport dans le piège n'est possible que lorsque la tension de polarisation V_{bias} devient supérieure à un seuil qui ne dépend que de l'intensité du courant électrique** ou, ce qui revient au même, du flux de photons ayant réellement traversé le semitransparent **et non de la position où l'injection se produit**. Pour confirmer cette hypothèse, il faudrait relever les courbes I-V pour différentes positions de l'excitation sur le semi-transparent par rapport au bord du piège, et vérifier que l'on peut, en ajustant la puissance du laser, maintenir la relation « tension de seuil » *vs* « photocourant à saturation » constante. Il s'agit d'une étude que l'on peut envisager dans de futurs travaux.

Profils spatiaux de l'énergie et de l'intensité La figure 6.22a donne les **profils spatiaux de l'énergie de la raie IX** pour différentes valeurs de la polarisation V_{bias} . La figure 6.22b illustre l'évolution de l'énergie des mêmes raies IX¹² avec la polarisation pour 7 positions fixées repérées par leur distance à l'excitation laser. On peut faire les constatations suivantes :

- 1 Il existe une discontinuité du profil énergétique située à l'abscisse $x = 7 \mu\text{m}$ qui

11. Ce facteur un sixième est également à considérer lorsque l'on souhaite comparer l'intensité de luminescence provenant du piège et celle émanant de la zone recouverte par les électrodes semi-transparentes.

12. Les valeurs d'énergie présentées sur la figure 6.22 sont obtenues par modélisation de l'allure triangulaire de la raie excitonique.



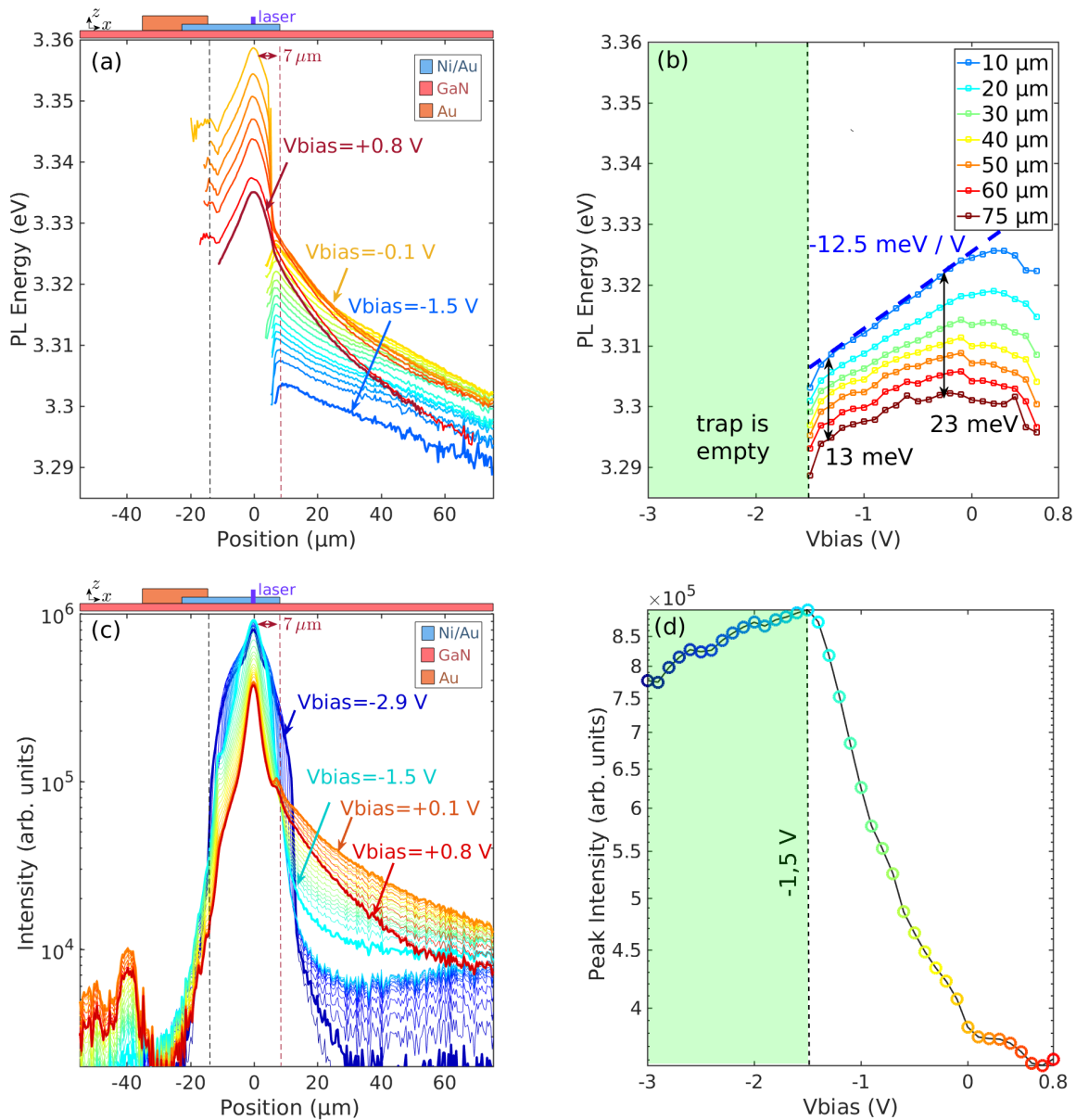


FIGURE 6.22 – (a,b) : profils énergétiques résolus en espace (a) et en polarisation (b). La figure (b) montre l'évolution avec V_{bias} de l'énergie de la raie IX pour 7 positions spatiales fixées (voir légende). La figure (c) montre le profil d'intensité spectralement intégrée en fonction de la position. La figure (d) donne l'évolution du maximum d'intensité en fonction de la polarisation appliquée, V_{bias} . L'excitation laser de puissance **3,8 mW** est focalisée sur l'électrode semi-transparente de la structure L50R2C (protocole décrit sur la figure 6.17).

correspond à la frontière avec le bord de piège. Notons que lorsque $V_{\text{bias}} < 0,1$ V, la raie IX se confond avec la raie A : dans ce cas le profil énergétique n'est pas extrait.

- 2 Lorsque $V_{\text{bias}} = +0,8$ V, la discontinuité du profil énergétique est quasiment supprimée. On peut donc considérer que la polarisation V_{bias} a pour effet de supprimer la barrière de potentiel de piégeage dont la hauteur est estimée à $E_t \approx 30$ meV environ. A l'aide des mesures I-V en statique, nous avons obtenu une valeur de barrière Schottky $\Phi_b^{\text{IV}} \approx 1,2$ V. Nous aurions pu nous attendre à devoir appliquer une polarisation de $+1,2$ V¹³ pour compenser le potentiel de surface (cf fig. 3.4). Toutefois, la caractérisation I-V étant faite à 300 K, il est probable que la valeur de Φ_b soit différente à basse température. Par ailleurs, l'inversion de la relation 6.14 permet de faire correspondre une hauteur de barrière de 30 meV à **une modification ΔV du potentiel de surface**

$$\Delta V = \frac{L_w + L_b}{L_w} E_t = 780 \text{ mV}. \quad (6.16)$$

Ainsi, cette valeur est en très bon accord avec la valeur $V_{\text{bias}} = 800$ mV que l'on a obtenue expérimentalement **pour annihiler le potentiel de confinement**. Cela corrobore également la compréhension que nous avons du diagramme de bande et le scénario de contrôle du piégeage tel qu'il est décrit sur le schéma de la figure 6.25.

- 3 Lorsque $V_{\text{bias}} = +0,8$ V le profil d'énergie et donc de densité possède une décroissance avec la distance nettement plus marquée (cf fig. 6.22a). Cela s'interprète comme précédemment (cf fig. 4.7 et 4.8) : le potentiel de confinement est annihilé et la propagation s'effectue avec un profil de densité similaire à celui de l'espace libre.
- 4 Lorsque V_{bias} augmente de $-1,5$ V à $-0,1$ V, le profil énergétique dans le piège augmente régulièrement, selon un *blueshift* typique de l'ordre de 15 meV (20 meV à $10 \mu\text{m}$ et 10 meV à $60 \mu\text{m}$). Cela traduit donc un remplissage du piège optimal lorsque $V_{\text{bias}} = -0,1$ V.
- 5 Comme on peut le voir sur la figure 6.22b, le profil énergétique est davantage uniforme lorsque $V_{\text{bias}} = -1,5$ V (13 meV de blueshift à $-1,5$ V contre 23 meV à 0 V sur une étendue spatiale de $65 \mu\text{m}$).

Sur la figure 6.22c sont donnés les **profils de l'intensité intégrée** en fonction de la position par rapport au spot laser, pour différentes valeurs de la tension de polarisation V_{bias} variant de $-2,9$ V à $+0,8$ V. La luminescence est intégrée une large

13. La hauteur de barrière Schottky obtenue par la mesure C-V vaut $\Phi_b^{\text{IV}} = 0,7$ V, ce qui concorde avec la valeur expérimentale de tension nécessaire pour annuler l'effet du piégeage, soit 780 mV.



bande spectrale ([3.28 V ; 3.43 eV]) de manière à inclure la raie IX dont l'énergie varie notablement avec la tension V_{bias} (90 meV de variation, cf fig. 6.20).

Dans le piège, c'est-à-dire pour $x > 7 \mu\text{m}$, on peut vérifier que le profil d'intensité (fig. 6.22c) possède une allure similaire à celle du profil énergétique (fig. 6.22a) :

- lorsque $V_{\text{bias}} < -1,6 \text{ V}$, le transport dans le piège est absent, on collecte alors la lumière diffusée par les photons émanant du spot et son intensité reste faible. De plus, à partir de $V_{\text{bias}} = -1,5 \text{ V}$, le transport apparaît dans le piège et les profils d'intensité évoluent en augmentant systématiquement jusqu'à $V_{\text{bias}} \approx +0,1 \text{ V}$. Cette évolution reflète **l'amélioration du remplissage**, comme observé sur le profil énergétique (cf fig. 6.22a).
- lorsque $V_{\text{bias}} > 0,1 \text{ V}$, l'intensité dans le piège s'amointrit progressivement et la décroissance de l'intensité avec la distance est plus marquée. C'est encore la diminution du potentiel de confinement qui permet aux excitons de « fuir » par les bords du piège **faisant évoluer les conditions de transport vers celles du régime propagation 2D libre**.

Enfin, **le bord de piège** (interface localisée à l'abscisse $x = 7 \mu\text{m}$ sur la figure 6.23) fait apparaître une discontinuité du profil d'intensité lumineuse à forte polarisation négative¹⁴. Cette discontinuité s'estompe avec l'augmentation de V_{bias} . On note toutefois un maximum radiatif lorsque $V_{\text{bias}} = +0,1 \text{ V}$: cette « anomalie radiative » est probablement la conséquence de l'accumulation de charges à l'interface entre le piège et le semitransparent, l'énergie potentielle excitonique ne variant vraisemblablement pas de manière monotone entre la « zone piège » et la « zone semi-transparent » (voir les figures 6.25 et 4.12 illustrant le maximum de densité au niveau des bords de piège résultant du minimum de l'énergie E_0).

Relation Intensité - Énergie de la raie IX sous l'électrode semi-transparente

Terminons l'exploitation de ces mesures par le dépouillement des données Intensité et Énergie de la raie IX collectée sous le spot laser, c'est-à-dire au niveau de l'électrode métallique, dans la continuité des interprétations de la figure 6.13. Tant que la jonction métal/semi-conducteur demeure polarisée en inverse ($V_{\text{bias}} < 0 \text{ V}$) et tant que cette polarisation inverse n'est pas trop importante ($V_{\text{bias}} > -1,6 \text{ V}$), le piège linéaire est le siège d'un phénomène de propagation quasi-unidimensionnelle d'excitons ayant été injectés à partir de l'électrode semi-transparente. Nous pouvons donc supposer que la densité de porteurs créés sous le spot est grande et peu dépendante des conditions de polarisation. Les données $I(E)$ de la **raie IX sous le spot**, dans cette gamme de

14. Compte-tenu de la grande variation énergétique de la raie IX, il n'est pas possible de restreindre davantage la fenêtre spectrale d'intégration utilisée pour le profil d'intensité de la figure 6.23. L'émission de la raie IX ne se distingue donc pas systématiquement de celle de la raie A.



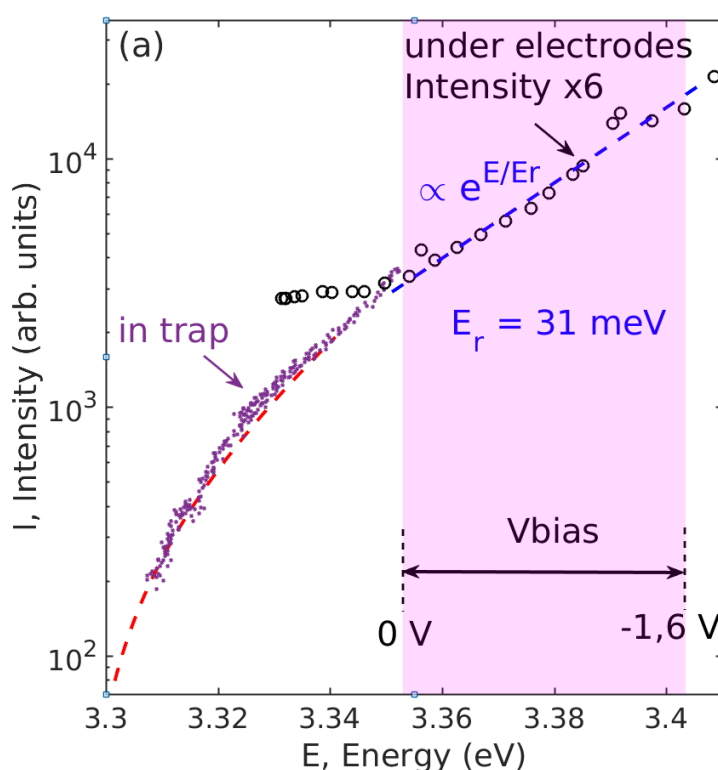


FIGURE 6.23 – Evolution de l'intensité de la raie IX en fonction de son énergie lorsque la luminescence provient de la zone piège (points violets) et sous le spot laser focalisé **sur l'électrode semi-transparente** (cercles noirs). La puissance du laser est de **3,8 mW**. Les valeurs d'intensité ont été multipliées par un facteur 6 afin de compenser l'absorption lumineuse par le semi-transparent métallique ¹¹. La courbe en tirets rouges est le résultat de la modélisation (cf § 6.2.1 et fig. 6.12). La courbe en tirets bleus est le *fit* exponentiel des valeurs expérimentales de l'intensité de la raie IX **sous l'électrode** en fonction de l'énergie, restreintes aux valeurs de polarisation $-1,6 \text{ V} < V_{\text{bias}} < 0 \text{ V}$.

polarisation appliquée, sont superposées à celles de la figure 6.12 qui rassemble les mêmes données collectées à différentes positions spatiales et pour différentes valeurs de polarisation lorsque l'excitation se fait dans le piège, ce qui conduit à la nouvelle figure 6.23 : les données dans le piège apparaissent en violet, les données sous le semi-transparent en noir. Notons qu'afin de tenir compte de l'absorption du semi-transparent, l'intensité collectée a été multipliée par 6. Nos constats sont les suivants :

1. La relation $I(E)$ suit globalement la même courbe maîtresse que les données soient collectées dans le piège ou sous le semi-transparent. Cela conforte non seulement notre interprétation de l'absorption du rayonnement par le semi-transparent (coefficient un sixième) mais atteste également que le comportement Intensité *vs blueshift* de la raie IX est décrit par un unique phénomène physique : la modification du champ électrique interne au puits quantique, qu'elle ait pour

origine l'augmentation de la densité de porteurs, la modification du potentiel de surface via la création d'un contact Schottky ou encore l'application d'une polarisation via un appareil électrique conduit à l'évolution conjointe de l'intégrale de recouvrement et de l'énergie de la transition E_1H_1 telle qu'elle est décrite par le modèle Poisson-Schrödinger (cf §3.2.3).

2. On note que les données $I(E)$ sous le spot sont, dans la représentation semi-log de cette figure, alignées. Ainsi, contrairement à ce que l'on observait pour les données obtenues dans le piège, l'effet de la polarisation peut s'expliquer par une translation des points Intensité-Energie en accord avec la seule variation exponentielle du taux de recombinaison radiatif, la quantité d'excitons demeurant grossièrement constante. On note de plus que le paramètre $E_r \approx 31$ meV caractérisant la dépendance exponentielle de ces données (cf fig. 6.23, modèle en tirets bleus) possède une valeur en très bon accord avec le modèle numérique, soit 30 meV (cf fig. 6.13b, tirets violets¹⁵).

En résumé, l'excitation sur le semi-transparent nous permet donc de clarifier le rôle joué par les électrodes en terme (1) de modification du potentiel de surface, (2) d'absorption du rayonnement laser et de la luminescence, (3) de modification de l'intensité et de l'énergie de la PL, tout en renforçant les conclusions dégagées dans les paragraphes précédents.

15. La gamme de *blueshift* à considérer étant de l'ordre de 50 meV sous le spot, il est nécessaire de considérer sur la figure 6.13b, non pas la courbe aux faibles densités (tirets rouges, D713) mais la zone dont la pente est donnée par les tirets violets, fournissant $E_r = 30$ meV.



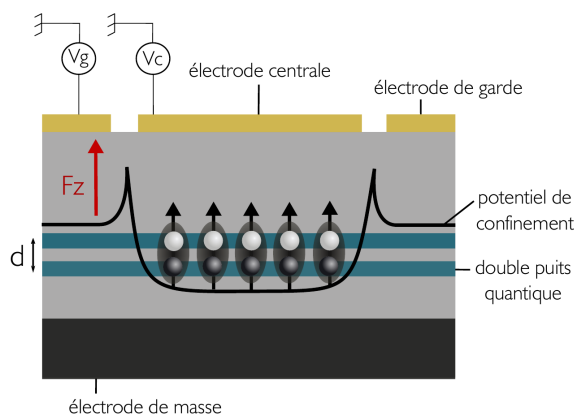


FIGURE 6.24 – Schéma du dispositif de piégeage électrostatique des excitons dans des doubles puits quantiques GaAs : la polarisation électrique est appliquée grâce à deux électrodes déposées à la surface. Les dipôles s’alignent avec le champ électrique et sont attirés par les zones de fort champ. D’après [70].

6.2.4 Recombinaisons aux bords de piège

Dans le paragraphe 6.2.3 où l’excitation se faisait sur l’électrode semi-transparente, on observe une discontinuité du profil l’intensité ainsi qu’une hausse de ce profil au niveau de l’interface entre le piège et l’électrode (cf fig. 6.22c, pour $V_{\text{bias}} = +0,1 \text{ V}$). De plus, sur les images bidimensionnelles de luminescence (tomographies du paragraphe 4.3.2, figures 4.12 et 4.11), on observe un cordon d’émission intense au voisinage du bord de piège. Enfin, on constate également un optimum de remplissage du piège (figures 6.22b, 6.14b et 6.11a) dont la valeur optimale de tension de polarisation, V_{bias} , n’est pas celle pour laquelle la hauteur du potentiel de confinement est maximale. Toutes ces observations nous amènent à réfléchir spécifiquement aux effets qui se produisent en bord de piège.

Doubles puits quantiques GaAs Les effets liés aux bords de piège sont également décrits dans les thèses de DANG (fig. I.8 [70]) et ANANKINE (fig. 2.3a [63]). Dans ce système de double puits quantiques GaAs, la zone de piégeage est séparée de l’électrode de garde par une zone sans électrode (cf fig. 6.24) : par rectification électrostatique entre ces deux zones, il apparaît une barrière de potentiel réalisant le confinement des excitons alors même que les polarisations de la garde et du piège sont identiques. Cet effet en bord de piège est d’une importance capitale pour le bon fonctionnement de ces dispositifs et leurs paramètres géométriques sont donc optimisés en conséquence.

Polarisation et densité de porteurs On constate sur la figure 6.14a que, pour une même puissance d’excitation laser située dans le piège, la densité de porteurs varie de manière significative avec la polarisation : le *blueshift* est de l’ordre 5 à 7 meV

comme on peut le voir sur le profil énergétique. Comment peut-on expliquer l'effet de la polarisation sur le remplissage du piège ? Quelle doit-être la valeur de polarisation V_{bias} de manière à garantir un remplissage optimal du piège ? On s'attend à ce que, l'augmentation de la polarisation inverse s'accompagne, au niveau du semitransparent :

1. d'une augmentation de la barrière de potentiel vue par les excitons. En conséquence, la densité maximale d'excitons susceptibles d'être piégés est-elle plus importante.
2. d'un affaiblissement du champ électrique interne. Cela conduit à une augmentation du recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou et donc à un taux de recombinaison radiatif bien plus important pour les excitons au niveau des bords de piège.

Ainsi, la densité d'excitons dans le piège résulte à la fois, de la puissance d'excitation laser, mais aussi des recombinaisons radiatives se produisant au niveau des bords de piège tel que cela a été observé au chapitre 4 (cf fig. 4.12). Nous expliquons ainsi la hiérarchie des profils énergétiques de la figure 6.14b de la manière suivante : lorsque l'on augmente la polarisation négative, il y a une augmentation du potentiel de confinement au niveau du semitransparent, mais surtout un accroissement du nombre de recombinaisons radiatives au niveau de l'interface entre le semitransparent et le piège qui contribue à dépeupler ce dernier.

Illustration synthétique du rôle des bords de piège Le schéma de la figure 6.25 propose une vision exhaustive de l'effet de la polarisation sur, d'une part, la hauteur de la barrière de potentiel sous le semitransparent et, d'autre part, le taux de recombinaison radiatif au niveau de l'interface entre le piège et le semitransparent. Les diagrammes des bandes de valence (VB) et de conduction (CB) sont représentés schématiquement dans chaque zone spatiale du puits quantique, avec ou sans semitransparent en surface. L'énergie de la transition interbande E_1H_1 est matérialisée par des segments colorés en rouge, orange ou vert, par ordre décroissant d'énergie. Le profil spatial de l'énergie « E_0 » (*ie* à la limite des faibles densités) de l'exciton est tracé en rouge, orange ou vert selon que le champ interne au puits quantique soit, respectivement, fortement, moyennement ou faiblement écranté. Rappelons que lorsque le champ interne est fortement écranté, non seulement l'énergie de l'exciton est élevée, mais les recombinaisons radiatives sont également très efficaces. Le tracé violet schématise le profil spatial de densité excitonique *dans la direction de la largeur du piège*. Lorsque la polarisation est très négative (fig. 6.25a), l'énergie de l'exciton sous le semitransparent est grande et le taux de recombinaison radiatif au niveau des bords du piège est élevé. En conséquence, le piège se vide de manière efficace ce qui limite la densité d'excitons. En revanche, lorsque la polarisation augmente (fig. 6.25b), les excitons disparaissent moins efficacement et la densité du fluide excitonique est plus importante. A la limite $V_{\text{bias}} = +0,6 \text{ V}$ (fig. 6.25c),



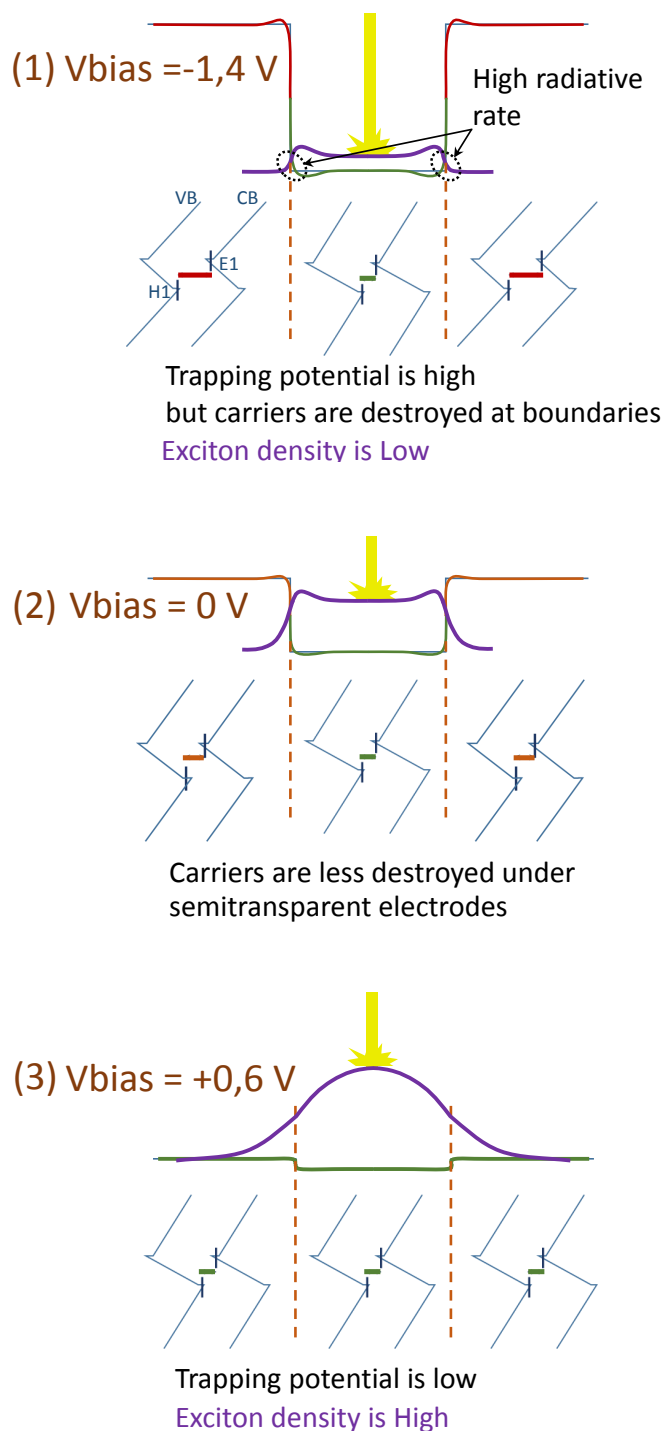


FIGURE 6.25 – Illustration de l'effet de la tension de polarisation : la densité d'excitons est tracée en violet, le profil de piégeage est tracé en rouge, orange ou vert selon que son intensité est grande, moyenne ou faible. (1) A polarisation très négative, le potentiel de piégeage sous le semitransparent est grand et les recombinaisons radiatives sont très intenses. Les porteurs sont rapidement détruits et la densité d'excitons demeure faible. (2) A polarisation nulle, les porteurs se recombinent moins efficacement et la densité est plus élevée. (3) Pour la polarisation de +0,6 V, l'effet de piégeage est quasiment supprimé car le champ électrique interne au puits quantique sous le semitransparent est amoindri.

le potentiel de confinement est quasiment supprimé, la propagation excitonique n'est plus guidée par le piège linéaire mais s'effectue par diffusion radiale autour du point d'injection laser. La densité d'excitons sous le spot demeure élevée car les recombinaisons radiatives ne sont plus exacerbées sous le semitransparent comme dans le cas où ce dernier est soumis à une forte polarisation inverse.

Perspectives : influence de la distance par rapport au bord de piège lors d'une excitation sur le semi-transparent. Pour approfondir encore davantage notre compréhension de ces phénomènes en bord de piège, il pourrait être pertinent d'étudier de manière systématique la dépendance de la tension de seuil, V_{seuil} , avec les conditions expérimentales. En effet, la valeur de tension seuil dépend, non seulement de la puissance, mais aussi de la position du laser. Lorsque l'excitation s'effectue sur le semi-transparent, on constate que le photocourant est plus faible et la valeur de la tension seuil, V_{seuil} , se rapproche de zéro : cela suggère que la valeur seuil est plutôt dictée par le photocourant à saturation que la puissance du laser car l'efficacité de cette dernière à créer des charges dépend de la zone d'excitation. Pour confirmer cette hypothèse, il faudrait relever les courbes I-V pour différentes positions de l'excitation sur le semi-transparent par rapport au bord du piège, et vérifier que l'on peut, en ajustant la puissance du laser, maintenir la relation « tension de seuil » *vs* « photocourant à saturation » constante. Il s'agit d'une étude que l'on peut envisager dans de futurs travaux.

6.3 Synthèse : contrôle électrostatique du piégeage et du transport

Voici les principales idées qui résument ce chapitre :

1. Conformément à nos attentes, nous observons bien le comportement attendu : $V_{\text{bias}} > 0$, le piège est détruit et $V_{\text{bias}} < 0V$, le piégeage augmente. Il est de plus possible de contrôler le niveau de remplissage du piège en appliquant une polarisation variable sur l'électrode semi-transparente. Que l'excitation s'effectue dans le piège ou bien sur l'électrode semi-transparente, il existe une valeur seuil ($V_{\text{seuil}} < 0$) de la tension de polarisation, au delà de laquelle ($V_{\text{bias}} > V_{\text{seuil}}$) la luminescence des porteurs apparaît dans le piège.
2. Le remplissage du piège est également corrélé à la diminution du photocourant, et cela quelles que soient les conditions d'excitation (forte injection, faible injection, dans le piège ou sur l'électrode semi-transparente) : lorsque la polarisation appliquée V_{bias} augmente et dépasse la valeur V_{seuil} , le photocourant



se met brutalement à chuter car les porteurs photocréés se propageant dans le piège et privilégient alors les recombinaisons radiatives au lieu de participer au photocourant.

3. La valeur seuil de la polarisation à partir de laquelle le remplissage du piège est visible, V_{seuil} , dépend de la puissance du laser : à une puissance de laser plus élevée, correspond une tension seuil V_{seuil} davantage négative¹⁶.
4. Le potentiel de piégeage induit par la présence de l'électrode métallique semi-transparente peut être amoindri, voire totalement supprimé, lorsqu'on applique une polarisation V_{bias} suffisamment positive entre cette électrode et la face arrière du substrat (typiquement $V_{\text{bias}} = +0,8$ V). Cela se traduit par un profil de densité qui évolue vers celui d'une propagation en espace libre.
5. La hauteur de la barrière de potentiel confinant les excitons dans le piège, à polarisation nulle, est estimée à $E_t \sim 30$ meV (cf § 3.1.3 et 4.3.1). Cette valeur est en accord avec la valeur de la polarisation $V_{\text{bias}} = +0,8$ V qui permet d'annuler le potentiel de confinement. Cette valeur s'obtient en modélisant l'effet de la polarisation sur le diagramme de bandes de l'hétérostructure de l'échantillon.
6. On a montré que la relation Énergie - Intensité de la raie IX dans le piège est indépendante de la valeur de polarisation appliquée au niveau des électrodes semi-transparentes. Cela signifie que l'énergie E_0 de l'exciton dans la limite des faibles densité dans le piège n'est pas affectée par la polarisation appliquée aux électrodes. On peut donc utiliser la relation *blueshift* = f(densité) pour estimer la densité d'excitons dans le piège, c'est-à-dire dans les zones qui n'ont pas d'électrodes en surface.
7. Lorsque l'excitation est effectuée sur l'électrode semi-transparente, on peut vérifier que l'énergie de la raie IX de l'émission au niveau de cette électrode varie grandement avec la tension de polarisation appliquée : pour augmentation de 1 V de V_{bias} , l'énergie de la raie IX diminue de 38 meV. Ce phénomène est encore bien expliqué à l'aide du diagramme de bande de la structure.
8. Dans la gamme de tension V_{bias} telle que le piège est rempli d'excitons, nous observons la dépendance du profil de densité avec V_{bias} . Nous en déduisons qu'il existe une valeur optimale de V_{bias} conduisant à un remplissage maximum du piège.

16. Ce phénomène pourrait résulter de l'effet suivant : une polarisation très négative fait passer l'état E1 de la fonction d'onde électronique sous le niveau de Fermi de l'électrode métallique. Ainsi, il s'y accumulent des électrons en excès qui, en rompant la neutralité électrique, détruisent l'édifice excitonique.



Conditions optimales en terme de densité Les conditions optimales de remplissage du piège sont définies comme étant celles qui s’opposent à tous les phénomène potentiellement « destructeurs » d’excitons ou limitant leur densité. Nous avons identifié 4 de ces mécanismes destructeurs ou limitants :

- Les excitons peuvent « fuir par dessus » la barrière de confinement si leur énergie (*blueshift*) est supérieure au potentiel de piégeage ($E_t \sim 30$ meV, à polarisation nulle). Lorsque l’on polarise davantage en inverse la jonction métal/semi-conducteur, on élève le potentiel de piégeage et donc on permet, *a priori*, au piège de confiner une plus grande densité d’excitons sans fuir.
- Les excitons peuvent se recombiner de manière non radiative. Il est probable que l’existence d’un fort courant noir favorise la dissociation de l’édifice excitonique : les charges libres qui traversent la structure dans la direction z écrantent la liaison coulombienne.
- Sous l’électrode semi-transparente, le champ électrique interne est amoindri, ce qui rend les recombinaisons radiatives plus efficaces et limite la durée de vie de l’exciton. Les bords de piège sont des minima de l’énergie potentielle excitonique et donc des zones d’accumulation. Ainsi, la proximité de ces zones avec l’électrode en fait des zones de fortes où les recombinaisons radiatives sont grandes, ce qui détruit les excitons. Ces zones sont d’autant plus radiatives et donc limitantes pour la densité dans le piège que l’on a rendu le potentiel de piégeage élevé. Il y a donc un compromis à trouver entre, d’une part, des barrières de potentiel suffisamment hautes pour confiner et, d’autre part, une polarisation pas trop négative pour éviter la destruction des excitons en bord de piège.
- Enfin, les excitons peuvent être détruits par l’excès d’électrons sous l’électrode métallique, résultant de la perte de neutralité électrique de la structure lorsque la tension de polarisation est trop négative.

Une polarisation trop négative limite le remplissage du piège bien que la hauteur du potentiel de confinement soit améliorée. L’utilisation d’une polarisation inverse très négative permet, pour de fortes puissances d’injection, de garantir un meilleur potentiel de confinement. *A contrario*, si la puissance laser est faible, l’effet des **recombinaisons sur les bords de piège** est d’autant plus marqué que la **jonction est polarisée en inverse** : nous devons avoir cela à l’esprit lorsque nous recherchons les conditions optimales de réalisation de condensats et lorsque nous analysons les images 2D du transport du fluide excitonique (fig. 4.12). En conclusion, les conditions optimales en terme de densité d’excitons résultent d’un compromis sur la polarisation appliquée, la valeur de cet optimum dépend de la puissance d’excitation : tel qu’on le constate sur la figure 6.11a, l’optimum correspond à une polarisation inverse de l’ordre de $V_{\text{bias}} = -0,8$ V, pour l’excitation dans le piège de **moyenne puissance**, soit 2,4 mW.



Chapitre 7

Synthèse et perspectives

Dans ce chapitre de synthèse nous tentons de rassembler l'ensemble de nos résultats expérimentaux sur un même diagramme de phase, pour s'assurer de la cohérence de nos différentes études et de leurs conclusions. L'ensemble de ce travail nous a permis d'explorer la possibilité de créer des liquides denses et froids d'excitons piégés, dans le but de former les états collectifs. Les points suivants ont été analysés de manière approfondie :

- le piégeage électrostatique d'excitons,
- l'analyse de la nature du liquide excitonique *via* le champ magnétique,
- et le contrôle électrostatique du piégeage par une tension électrique.

Voici **nos principales contributions** :

- La géométrie de piège « fil linéaire » est la plus performante pour la réalisation d'un liquide excitonique (cf chap. 6), froid et dense, en équilibre thermodynamique, ce qui constitue un prérequis pour l'exploration du diagramme de phase d'équilibre de ces particules.
- Les performances des pièges en terme de barrière de potentiel et de fuites d'excitons ont été quantifiées. Notamment, l'intensification de la luminescence sur les bords de pièges due à des effets de potentiel de surface a été caractérisée et interprétée dans les chapitres 4 et 6.
- Nous avons développé un outil numérique original basé sur l'analyse des formes de raies (chap. 3) qui permet d'accéder aux températures et aux densités des fluides d'excitons piégés, nous fournissant ainsi un cadre interprétatif pour l'étude du diagramme de phase en général et pour l'analyse des données expérimentales du chapitre 4 en particulier. Dans la lignée de travaux sur les excitons indirects dans les puits GaAs [24, 59, 60], l'hypothèse sur laquelle se base cet outil est que les interactions dipolaires répulsives joueraient, pour l'émergence d'états collectifs, un rôle d'exclusion dans l'espace des positions analogue à celui que tient le principe



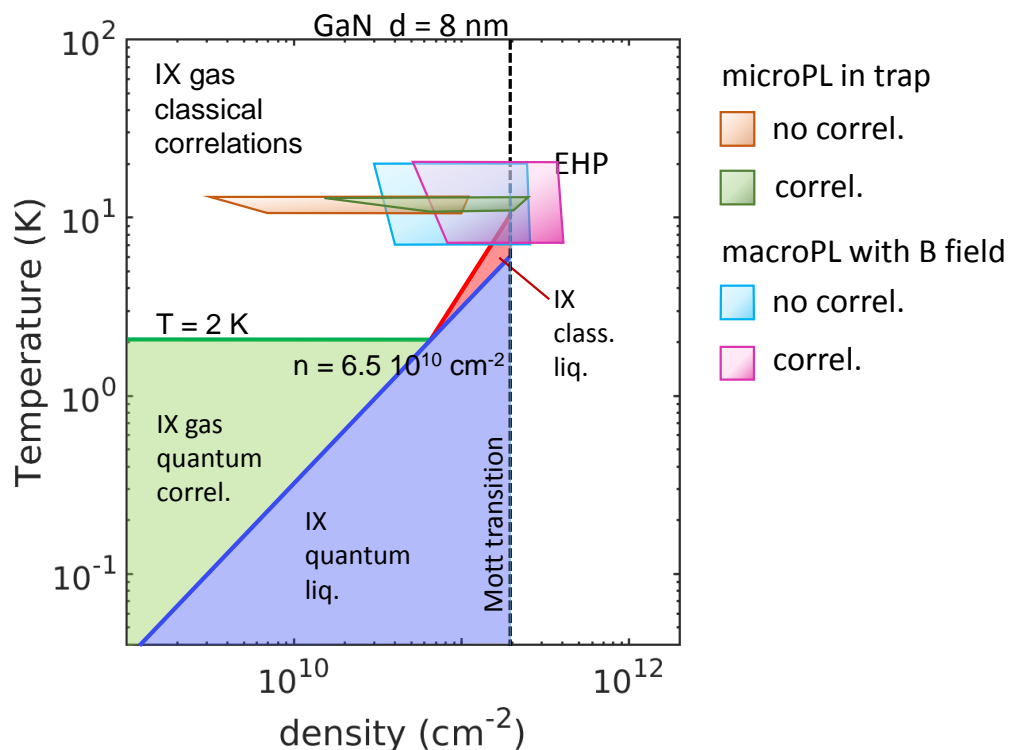


FIGURE 7.1 – Diagramme de phase théorique des excitons dipolaires dans l’hétérostructure à puits quantique polaire (cf fig. 1.8, § 1.3.3). On a matérialisé les points de ce diagramme (*densité, température*) ayant été explorés au cours des différentes configurations expérimentales étudiées en distinguant la manière dont la densité a été estimée (avec/sans prise en compte des corrélations).

de Pauli pour les particules fermioniques dans l’espace des états. Grâce à cet outil, les densités des fluides d’excitons que nous avons explorées ont pu être estimées : sur le diagramme de la figure 7.1, nous avons reporté en orange et en vert les domaines du plan Température *vs* Densité ayant été balayés au cours de ces mesures de μ PL, selon que l’estimation de la densité se fasse *sans* (orange) ou *avec* (vert) prise en compte des corrélations excitoniques (cf § 3.5).

- Parmi plusieurs protocoles, excitation en piège *vs* hors piège, focalisée *vs* défocalisée, nous avons établi un protocole optimal (cf. chap. 5) pour l’étude sous champ magnétique qui permet de répondre à la problématique de la nature des particules (excitons *vs* plasma EHP). La possibilité d’asseoir le bien fondé de ce protocole résulte des études conduites sur le transport des excitons, au chapitre 4 : l’analyse en μ PL du transport en piège et en espace libre, complétée par l’étude de l’influence des conditions d’excitation sur la largeur de raie (cf § 4.4.2), nous permet de justifier l’approche choisie pour les études en champ magnétique : notre connaissance de l’inhomogénéité du profil spatial des excitons, largement étudiée au chapitre 4, (à différentes puissances et conditions d’excitation, transport libre dans le plan *vs* transport dans des pièges de différentes formes, le rôle des

photons guidés) nous permet de valider la pertinence du protocole utilisé au chapitre 5 qui est compatible avec les moyens expérimentaux dont nous disposons. Cette démarche pragmatique illustre l'inter-dépendance et la complémentarité des différents travaux expérimentaux menés dans cette thèse.

- L'étude sous champ magnétique (chap. 5) nous a permis de vérifier le comportement diamagnétique des particules dans une large gamme du domaine température-densité, confirmant leur nature excitonique. De plus, les mesures à basse température et à forte puissance, menant à une évolution linéaire de l'énergie de la raie IX avec le champ magnétique, suggèrent une évolution du système vers un plasma électrons-trous dont la coexistence avec la phase excitonique (cette coexistence étant modélisée au chapitre 3) est manifestement visible dans la PL collectée sous le spot laser. Nous avons également proposé une estimation de la densité critique de Mott (aussi placée sur la figure 7.1), $\approx 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, associée à l'évolution évanescence de l'énergie de liaison excitonique. Enfin, nous avons quantifié le rôle du champ B sur le transport : il n'est pratiquement pas affecté par le champ, contrairement au transport d'IX dans les CQWs GaAs. Cela est dû essentiellement au rayon de Bohr plus petit dans nos structures. Le domaine exploré par ces mesures sous champ magnétique et avec un spot large est illustré sur la figure 7.1 : le domaine magenta correspond aux estimations de la densité *avec* prise en compte des corrélations, celui en bleu *sans* que ces corrélations soient considérées.
- L'étude sous polarisation électrique (chap. 6) a montré notre capacité à contrôler le transport et le piégeage des excitons. Le remplissage des pièges est corrélé à la diminution du photocourant, ce qui est intéressant car cela garantit une faible perturbation du fluide excitonique par des charges libres non thermalisées. Cette étude a également permis de s'assurer que la relation énergie de la raie IX *vs* densité est indépendante de la polarisation appliquée aux électrodes : cette analyse renforce également notre compréhension du mécanisme de piégeage (cf fig. 6.25). Par ailleurs, l'effet de l'électrode métallique semi-transparente sur le fonctionnement des pièges a été pleinement quantifié, non seulement en terme d'absorption du rayonnement incident et de la luminescence produite dans le puits quantique, mais également en terme de modification du diagramme de bandes.

Perspectives La suite des travaux menés dans cette thèse peut être envisagée sous les angles suivants :

- Les **mesures résolues temporellement** sont nécessaires pour accéder à la dynamique des différentes phases composant le système : dynamique associée à la luminescence plasma et à la luminescence excitonique. Mais également, ce type



de mesures donnerait accès à la vitesse du transport, en configuration guidée dans un piège électrostatique (linéaire par exemple), et permettrait de rechercher les éventuels effets non linéaires induits par le terme non diffusif de ce transport (terme *drift*, fortement dépendant de la densité).

- Le diagramme de phase de la figure 7.1 laisse supposer que nous ayons exploré les phases gazeuses, plasma et liquide. D'après ce diagramme, les comportements quantiques, dont les propriétés pourraient être révélées par des mesures de cohérence spatiale, seraient susceptibles d'émerger à des **températures plus basses**. S'engager dans de telles mesures constitue une perspective intéressante d'autant plus si l'étude temporellement résolue de ce transport révèle une variation des paramètres de la dynamique (coefficient de diffusion) induit par les basses températures.
- Réaliser les mesures **sous champ magnétique** dans la configuration de **micro-photoluminescence**, permettrait de sonder finement le comportement de la luminescence dans le piège et ainsi d'explorer la nature des particules qui s'accumulent dans la zone dite de « lac », loin de l'excitation laser.
- Le rôle joué par l'écrantage du champ électrique résultant des corrélations excitoniques est primordial pour l'estimation correcte de la densité des particules tout particulièrement dans les conditions de haute densité, lorsque la phase liquide se forme. C'est pourquoi, il serait intéressant d'intégrer ces corrélations à l'algorithme du calcul « Poisson-Schrödinger » (§ 3.2.3). Une seconde amélioration que nous envisageons pour ce code de calcul serait l'**ajout du terme d'interaction magnétique** dans le Hamiltonien de manière à rendre compte de l'évolution de l'énergie de l'exciton sous champ magnétique, dans la limite des hautes densités, c'est-à-dire spécifiquement lorsque l'énergie de liaison excitonique est faible (ou du même ordre) que le *shift* diamagnétique. L'autre effet bénéfique serait de quantifier l'évolution de la force d'oscillateur de l'exciton en fonction du champ magnétique.
- Les tomographies (§ 4.3.2) de luminescence sous polarisation (§ 6.2.4) révèlent que le transport d'excitons le long des bords des pièges est particulièrement efficace. Il semble intéressant d'exploiter cette propriété : on pourrait envisager des **canaux de transport unidimensionnels**, situés à l'interface entre les zones sans et les zones avec électrodes en surface. L'utilisation d'une excitation laser à double faisceau et d'une ligne à retard permettrait de tester la possibilité de réaliser un **contrôle « tout optique » du piégeage** et/ou du transport, potentiellement intéressant en vue de réaliser des dispositifs excitoniques. Ces études peuvent d'ores et déjà être envisagées en se basant sur les nombreuses géométries de structures existantes (cf annexe E) ou bien être également conduites sur de



nouvelles structures avec des géométries spécifiquement dédiées à cette nouvelle étude.



Conclusion

Dans cette thèse, nous avons étudié et contrôlé les excitons indirects et leurs états collectifs, dans des hétérostructures GaN/AlGaN dédiées. Cette étude, centrée sur la spectroscopie optique des fluides excitoniques, a aussi abordé la conception et la fabrication des échantillons, les développements instrumentaux, plusieurs configurations de spectroscopie de PL, et une modélisation avancée des résultats obtenus. Ce travail a abouti aux principaux résultats suivants :

- la démonstration du piégeage latéral et du refroidissement des excitons indirects, lorsqu'ils sont confinés dans le potentiel électrostatique créé par des électrodes semi-transparentes. Il est ainsi possible d'accumuler des excitons indirects, dont la densité est homogène sur une zone étendue et dont la thermalisation est efficace. Ce résultat était une condition préalable à l'étude du diagramme de phase complexe de ces bosons dipolaires à basse température.
- le contrôle électrique des pièges, du transport des excitons et de leur densité. Cela ouvre des perspectives intéressantes pour la réalisation de dispositifs excitoniques.
- La signature expérimentale de la nature excitonique des particules accumulées, par une étude sous champ magnétique et par des modélisations de formes de raies et de décalages énergétiques.
- Lorsque la densité augmente, et à basse température, l'existence de corrélations au sein du fluide excitonique a permis de conclure à la réalisation d'un liquide de bosons dipolaires, et finalement à la dissociation des excitons en porteurs libres, *i.e.* la transition de Mott.
- Nous avons placé les premiers points sur le diagramme de phase des bosons dipolaires, en fournissant une première mise en évidence non seulement de l'existence d'une phase fortement corrélée résultant des interactions à forte densité (phase de liquide dipolaire) mais aussi de la dissociation (transition de Mott) de ces excitons indirects dans les hétérostructures GaN/(Al,Ga)N.

Ces résultats importants ont été obtenus sur des échantillons de très grande qualité et aux potentialités encore largement inexplorées. Ils constituent des étapes importantes vers des recherches expérimentales ciblées, à plus basse température, dans des conditions



thermodynamiques, température, densité et moment dipolaire, ayant pour objet de parcourir de manière extensive le diagramme de phase de ces fluides d'excitons dipolaires, et le confronter aux modèles théoriques les plus avancés.



Annexe A

Exciton : énergie et fonction d'onde propre

Nous présentons ici une théorie succincte de l'exciton de Wannier-Mott qui se différencie de l'exciton de Frenkel par son rayon classique beaucoup plus grand et son énergie plus faible. L'exciton de Wannier-Mott est celui qui se forme dans les matériaux qui nous intéressent, de grande constante diélectrique, l'énergie coulombienne étant fortement écrantée, son rayon dépasse plusieurs mailles de réseau et l'approximation de la fonction enveloppe s'applique. L'exciton est le niveau énergétique excité le plus bas du cristal semi-conducteur, lorsque l'électron est élevé au niveau de plus bas de la bande de conduction laissant une lacune (trou) sur le niveau de plus élevé de la bande de bande. Ce problème complexe met en jeu une théorie à N corps, il peut toutefois être notablement simplifié grâce à la notion de trou qui englobe les $N - 1$ électrons de la bande de valence. Nous admettons que l'étude de l'exciton se ramène ainsi à ce problème à deux corps :

- d'une part, l'électron de masse m_e et de charge $-e$,
- d'autre part, le trou de masse m_h et de charge $+e$.

La fonction d'onde de ce système à deux particules est décrite dans l'espace tensoriel produit, $\{|\Psi_e\rangle\} \otimes \{|\Psi_h\rangle\}$, des états de l'électron et des états du trou. L'état fondamental est alors solution stationnaire du Hamiltonien excitonique :

$$H_X = \frac{P_1^2}{2m_e} + \frac{P_2^2}{2m_h} + V_c(r_1) + V_c(r_2) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon|r_1 - r_2|} \quad (\text{A.1})$$

où $V_c(r)$ est le potentiel cristallin, et ϵ la constante diélectrique du milieu. Nous introduisons les fonctions de Bloch $|\mathbf{k}_1\rangle = e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_1} u_{\mathbf{k}_1}^c(\mathbf{r}_1)$, pour la bande de conduction et $|\mathbf{k}_2\rangle = e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_2} u_{\mathbf{k}_2}^v(\mathbf{r}_2)$ pour la bande valence, telles que

$$\left[\frac{P_1^2}{2m_e} + V_c(r_1) \right] |\mathbf{k}_1\rangle = \left(E_C + \frac{\hbar^2 k_1^2}{2m_e} \right) |\mathbf{k}_1\rangle \quad (\text{A.2})$$



et

$$\left[\frac{P_2^2}{2m_h} + V_c(r_2) \right] |\mathbf{k}_2\rangle = \left(-E_V + \frac{\hbar^2 k_2^2}{2m_h} \right) |\mathbf{k}_2\rangle. \quad (\text{A.3})$$

Nous projetons alors la fonction d'onde inconnue, $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ sur les états de Bloch, $|\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2\rangle = |\mathbf{k}_1\rangle \otimes |\mathbf{k}_2\rangle$,

$$\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} C(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) |\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2\rangle. \quad (\text{A.4})$$

L'équation aux valeurs propres relative à l'opérateur H_X , $H_X \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = E \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, s'écrit en projection sur $\langle \mathbf{k}'_1, \mathbf{k}'_2 |$:

$$\begin{aligned} \left[E_C - E_V + \frac{\hbar^2 k_1^2}{2m_e} + \frac{\hbar^2 k_2^2}{2m_h} \right] C(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) + \sum_{\mathbf{k}'_1, \mathbf{k}'_2} C(\mathbf{k}'_1, \mathbf{k}'_2) \langle \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 | V(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) | \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 \rangle \\ = E C(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \end{aligned}$$

Par une démarche analogue à celle qui conduit à l'approximation de la fonction enveloppe (voir [92] par exemple), nous pouvons simplifier le terme d'interaction coulombienne puis séparer le mouvement relatif de celui du centre de masse en introduisant les vecteurs d'onde :

$$\mathbf{K} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 \quad \text{et} \quad \frac{\mathbf{k}}{\mu} = \frac{\mathbf{k}_1}{m_e} - \frac{\mathbf{k}_2}{m_h} \quad (\text{A.5})$$

respectivement pour le mouvement du centre de masse et pour le mouvement relatif où $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$ définit la masse réduite. Avec ce changement de coordonnées, le Hamiltonien est séparable, ce qui conduit à l'équation de Schrödinger pour la fonction enveloppe, $f(\mathbf{r})$, du mouvement relatif $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$,

$$-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{2\mu} f(\mathbf{r}) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon \|\mathbf{r}\|} f(\mathbf{r}) = \left(E - \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2M} - E_g \right) f(\mathbf{r}) \quad (\text{A.6})$$

qui est celle d'un atome de « type hydrogène » et où $M = m_e + m_h$ est la masse totale de l'exciton et $E_g = E_C - E_V$ le gap. Les énergies permises pour les états stationnaires

$$E_{n, \mathbf{K}} = E_g + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2M} - \frac{Ry^*}{n^2} \quad (\text{A.7})$$



sont des bandes paraboliques situées sous le gap. Ry^* définit le *Rydberg excitonique* reliée au Rydberg de l'atome d'hydrogène selon

$$Ry^* = \frac{\mu}{m_0} \left(\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon} \right)^2 Ry \quad (\text{A.8})$$

La fonction d'onde de l'état fondamental (1s) s'écrit alors

$$\Psi_{1s}(r_1, r_2) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}) \frac{1}{\sqrt{\pi a_B^3}} \exp(-\|\mathbf{r}\|/a_B) \quad (\text{A.9})$$

où Ω est le volume de quantification pour le mouvement du centre de masse, a_B est le rayon de Bohr, et \mathbf{R} représente les coordonnées du centre de masse

$$\mathbf{R} = (m_e \mathbf{r}_1 + m_h \mathbf{r}_2) / (m_e + m_h). \quad (\text{A.10})$$





Annexe B

Paramètres physiques

Les paramètres physiques et les données relatives à l'échantillon D704 sont présentés dans le tableau [B.1](#).



Material parameters	Units	Values
m_e^z for electron in GaN	(m_0)	0.200
m_h^z for hole in GaN	(m_0)	1.1
m_e^z for electron in $\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$	(m_0)	0.213
m_h^z for hole in $\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$	(m_0)	1.367
m_e^\perp transverse electron mass in QW	(m_0)	0.2
m_h^\perp transverse hole mass in QW	(m_0)	1.6
ε_W Dielectric permittivity in GaN	(ε_0)	8.9
ε_B Dielectric permittivity in $\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$	(ε_0)	8.926
P_W^0 Total (spon. and piezo) polarization in QW	($\text{C} \cdot \text{m}^{-2}$)	-0.0290
P_B^0 Total (spon. and piezo) polarization in barriers	($\text{C} \cdot \text{m}^{-2}$)	-0.0406
GaN bandgap energy at $T = 4$ K	(eV)	3.507
$\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$ bandgap energy at $T = 4$ K	(eV)	3.709
Band offset in GaN and $\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$	(%)	80
Schottky barrier shift Ni/ $\text{Al}_{0.11}\text{Ga}_{0.89}\text{N}$	(eV)	~ 1
Calculated parameters	Units	Values
Built-in electric field F	(kV/cm)	980
Exciton radiative lifetime scaling factor γ	(cm^{-2})	2.7×10^{11}
Exciton binding energy E_b at $n \approx 0$	(meV)	~ 10
Exciton-exciton interaction constant ϕ_0	($\text{eV} \cdot \text{cm}^2$)	1.50×10^{-13}
Trapping energy barrier $E_t = E_G - E_0$	(meV)	55

TABLE B.1 – Paramètres matériaux et données relatives à l'échantillon D704.



Annexe C

Validation du modèle de spectre de PL e-h dans le cas de la couche active à puits quantique InGaN/GaN d'un laser à microdisque

Dans la section 3.4, nous avons décrit la méthode numérique pour modéliser la forme des spectres de PL. Dans cette annexe, nous illustrons la mise en œuvre de cette méthode pour rendre compte de la luminescence de multipuits InGaN/GaN, système qui diffère du puits AlGaIn/GaN qui constitue le centre de nos travaux. Cette démarche vise à tester la « portabilité » du modèle dans cette situation physique proche. Nous présentons d'abord la façon dont le modèle rend compte de l'augmentation de la densité de porteurs puis, dans un deuxième temps, nous montrons comment ce modèle rend compte, non seulement de l'allure spectrale de la PL, mais aussi de la condition d'amplification optique lorsque le pompage optique est suffisamment fort.

C.1 Résultats de la modélisation et discussion

La figure C.1 présente les spectres et les courbes de gain obtenus en utilisant la modélisation décrite dans la section 3.4 lorsque l'on fait varier la densité de porteurs, les autres paramètres étant fixés. Comme attendu, l'augmentation de la densité de porteurs se traduit sur le spectre d'émission spontanée par :

- l'augmentation de l'intensité de photoluminescence,
- le déplacement du maximum d'émission vers les hautes énergies,



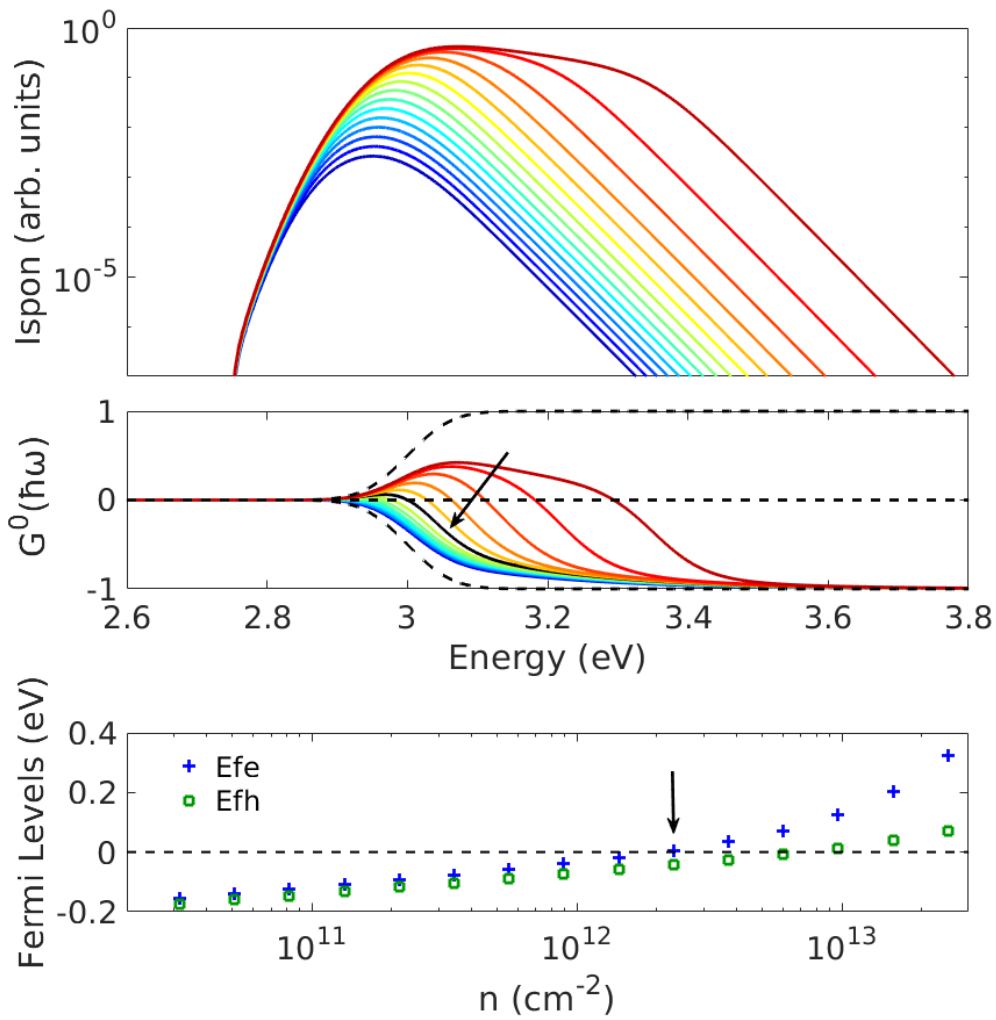


FIGURE C.1 – Spectres d'émission spontanée, courbes du gain net relatif et quasi niveaux de Fermi calculés selon le modèle présenté pour différentes valeurs de la densité de paires, $n = n_{e-h}$. Pour ces simulations, on a fixé la température des porteurs à $T_{car} = 350$ K, l'énergie de la transition à $E_0 = 3,00$ eV et son désordre à la valeur $\sigma_{E_0} = 52$ meV. La flèche noire repère l'apparition de la condition d'amplification.

- une poussée du flanc haute énergie à fort taux d'occupation, c'est-à-dire lorsque le système devient dégénéré,
- l'augmentation des quasi niveaux de Fermi (courbe « Fermi Levels »). Cette augmentation devient plus prononcée pour le quasi niveau de Fermi électronique dès que l'on passe le seuil de la dégénérescence¹, le seuil de dégénérescence, $E_{Fe} > 0$, étant repéré par la flèche noire.

Les courbes du gain relatif, $G^0(\hbar\omega)$, montrent que la « condition d'inversion de

1. Ce phénomène s'explique de la manière suivante : les électrons possèdent une masse effective plus faible que celle des trous donc une densité d'états plus faible également. Ainsi, dans l'hypothèse de la neutralité électrique (*ie* $n_{eh} = n_e = n_h$), le niveau de Fermi électronique augmente plus vite que celui des trous pour assurer le même niveau de remplissage des bandes de valence et de conduction.

population » (condition de Bernard-Duraffourg [92]) est atteinte lorsque la densité de porteurs devient supérieure à une valeur seuil : le gain et la valeur d'énergie à gain maximal augmentent avec la densité de porteurs. On note également, qu'à cause de la présence du désordre, il existe un domaine d'énergie où la condition d'amplification, $G^0(\hbar\omega) > 0$, est satisfaite bien que les quasi niveaux de Fermi résident sous les niveaux des bas de bande ($E_{Fe}, E_{Fh} < 0$). En effet, la courbe de gain repérée par la flèche noire correspond à une valeur de densité de porteurs $\sim 2,3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ pour laquelle les quasi niveaux de Fermi sont à la limite de la dégénérescence. On constate bien que, pour cette densité de porteurs, il existe une gamme d'énergie pour laquelle le gain est positif alors que les quasi niveaux de Fermi sont encore sous le seuil de la dégénérescence. L'intérêt de cette modélisation est justement qu'elle va nous fournir, à partir de spectres de photoluminescence, non seulement une estimation de la densité de porteurs, mais aussi la courbe de gain et les quasi niveaux de Fermi.

C.2 Échantillon et mesures

L'échantillon utilisé (cf fig. C.2) est composé de dix puits quantiques de 2,2 nm en $\text{In}_{0,14}\text{GaN}$ séparés de 9 nm de GaN jouant le rôle de barrière².

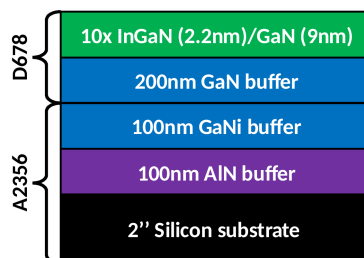


FIGURE C.2 – Structure de l'échantillon InGaN/GaN utilisé pour valider la modélisation des raies spectrales. Il est constitué de multi-puits quantiques InGaN/GaN. La composition en Indium est estimée à $x_{In}=0,14$.

A l'aide du montage optique schématisé sur la figure 2.15, on excite l'échantillon et on collecte la lumière de photoluminescence que l'on analyse spectralement. Les échantillons sont excités optiquement par une source pulsée à 266 nm avec un taux de répétition de 4 kHz. La puissance du faisceau incident est variée de $0.02 P_0$ à $P_0 = 5 \text{ mJ/cm}^{-2}/\text{pulse}$. Les mesures sont réalisées à 130 K.

2. Ces échantillons sont utilisés pour la conception d'un laser à puits quantiques, qui n'est pas en lien avec les travaux de cette thèse.

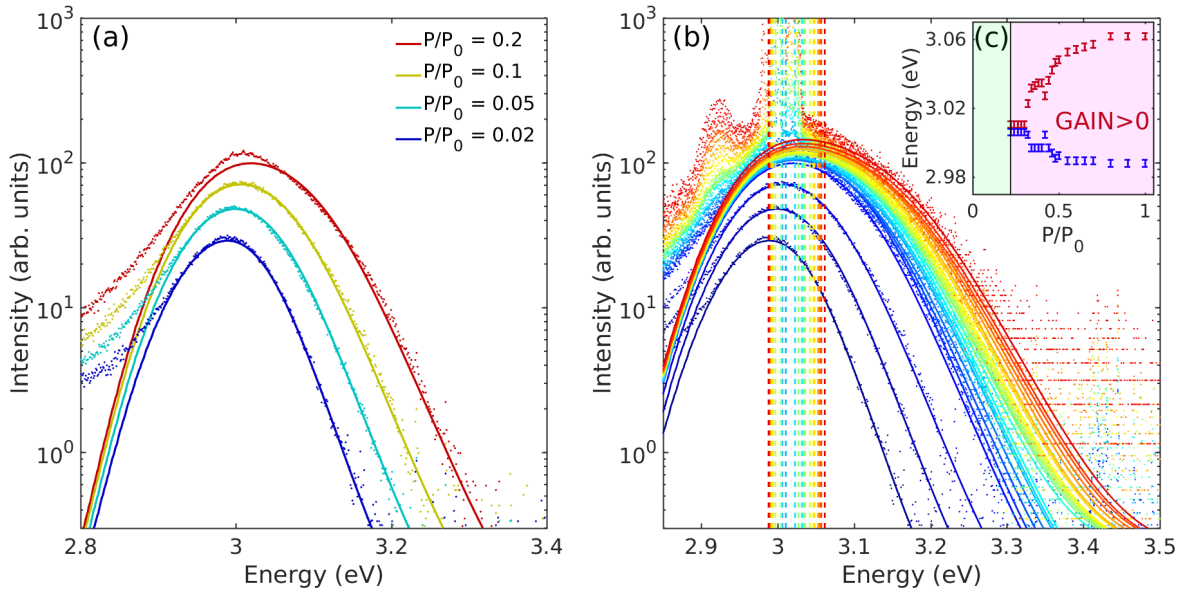


FIGURE C.3 – Spectres expérimentaux de luminescence et modélisation de la raie de PL. (a) Série de spectres pour les 4 plus faibles puissances P telles que $P/P_0 \leq 0,2$. Les courbes en traits pleins sont les courbes résultant de la modélisation de la forme de raie. (b) Spectres expérimentaux et courbes modèles. Les traits pointillés délimitent le domaine spectral où le gain $G^0(\hbar\omega)$ est positif. (c) : évolution des limites basse (bleu) et haute du domaine à gain positif en fonction de la puissance d'excitation P/P_0 .

C.3 Résultats expérimentaux et discussion

La figure C.3a donne l'évolution des spectres avec la puissance d'excitation pour les quatre plus faibles puissances. On constate que, l'énergie et l'intensité de la raie augmentent avec la puissance conformément au fait que les populations de porteurs libres (électrons et trous) sont plus importantes. Les courbes modèles (traits continus) rendent convenablement compte de la partie haute énergie des formes de raies. Toutefois, on note que le flanc basse énergie est assez mal modélisé³.

La figure C.3b donne l'évolution des spectres pour l'ensemble de la gamme de puissance utilisée : au delà de $P/P_0 = 0,2$, il apparaît des **pics de luminescence très intenses et très étroits** : il s'agit d'amplification d'émission stimulée [92]⁴. Notre modèle rend compte de manière satisfaisante de l'évolution des raies spectrales dans le domaine des hautes énergies. Notre modèle nous donne également accès aux courbes de gain $G^0(\hbar\omega)$ à partir desquelles nous déterminons la plage spectrale pour laquelle

3. Pour les faibles énergies d'émission, on sait que l'interaction coulombienne exacerbe la force d'oscillateur des charges non-liées (cf facteur de Sommerfeld § 2.1). Cela pourrait expliquer pourquoi l'émission est plus intense que celle de notre modèle qui ne prend pas en compte cette interaction.

4. L'amplification d'émission stimulée (ASE) résulte de la propagation dans la couche active de l'émission spontanée alors que la condition de Bernard-Duraffourg est réalisée (*ie* le milieu est un amplificateur optique).

le milieu est amplificateur ($G^0(\hbar\omega) > 0$)⁵. Les limites basse et haute de ce domaine spectral sont matérialisées par des tirets verticaux sur la figure C.3b. La figure C.3c donne l'évolution de ces limites en fonction de la puissance d'excitation. On constate que la zone spectrale correspondant au gain positif s'élargit lorsque la puissance de pompage augmente, en accord les résultats expérimentaux.

En conclusion, l'évolution des spectres modèles avec la densité de porteurs est compatible avec le comportement physique attendu. Le modèle que nous avons développé est apte à décrire l'allure spectrale de la luminescence mais également à rendre compte du phénomène d'amplification optique. C'est sur la base de ce modèle que nous allons extraire les densités et les températures à partir des raies de luminescence dans les pièges électrostatiques (cf § 4.4.3, chap. 4).

5. On note également que lorsque les raies fines et étroites apparaissent, la forme de raie n'évolue plus, alors que la puissance d'injection est augmentée. Cela s'explique par le fait que l'amplification de l'émission stimulée, limite l'inversion de population et empêche une « poussée du flanc haute énergie » de la raie telle que prédit par le modèle (fig. C.1).



VALIDATION DU MODÈLE DE SPECTRE DE PL E-H DANS LE CAS DE LA COUCHE
242 ACTIVE À PUIITS QUANTIQUE INGAN/GAN D'UN LASER À MICRODISQUE



Annexe D

Loi de Saha à partir des statistiques quantiques

La description thermodynamique de l'équilibre



s'obtient à partir des statistiques quantiques. Considérons un gaz de fermions bidimensionnels, sans interaction, de masse m_e , en équilibre avec un thermostat à la température T et avec un réservoir de particules de potentiel chimique E_{Fe} . La relation entre la densité surfacique n_e de fermions et les paramètres thermodynamiques T et E_{Fe} est donnée par la statistique de Fermi-Dirac

$$n_e = \int \rho_e^{2D}(E) \frac{1}{\exp\left(\frac{E-E_{Fe}}{k_B T}\right) + 1} dE \quad (\text{D.2})$$

où $\rho_e^{2D}(E)$ est la densité d'états en énergie pour les fermions que l'on suppose être des électrons dans la bande de conduction. L'énergie de bas de bande est noté E_c , la densité d'états

$$\rho_e^{2D}(E) = \frac{g_e m_e}{2\pi\hbar^2} \mathcal{H}(E - E_c) \quad (\text{D.3})$$

est une fonction en marche d'escalier. Dans l'expression précédente, la dégénérescence de spin de l'électron vaut g_e vaut 2. L'intégration fournit l'expression dans laquelle la densité d'électrons est une fonction croissante du potentiel chimique E_{Fe} (quasi niveau de Fermi des électrons) :

$$n_e = \frac{m_e k_B T}{\pi\hbar^2} \ln\left(1 + \exp\left(-\frac{E_c - E_{Fe}}{k_B T}\right)\right). \quad (\text{D.4})$$



En inversant cette relation on obtient l'expression du quasi niveau de Fermi en fonction de la densité d'électrons

$$E_{Fe} = E_c + k_B T \ln \left(\exp \left(\frac{\pi \hbar^2}{m_e k_B T} n_e \right) - 1 \right). \quad (\text{D.5})$$

La même démarche fournit une équation similaire pour le quasi-niveau de Fermi de trous

$$E_{Fh} = E_c + k_B T \ln \left(\exp \left(\frac{\pi \hbar^2}{m_h k_B T} n_h \right) - 1 \right). \quad (\text{D.6})$$

Le taux d'occupation du gaz de bosons est quant à lui décrit par la statistique de Bose-Einstein de température T et de potentiel chimique μ_X . Dans l'hypothèse d'interactions négligeables, l'intégration du taux d'occupation sur la densité d'états bidimensionnelle des excitons de masse $M = m_e + m_h$ permet d'obtenir la densité d'excitons, n_X

$$n_x = -\frac{2Mk_B T}{\pi \hbar^2} \ln \left(1 - \exp \left(-\frac{E_X - \mu_X}{k_B T} \right) \right) \quad (\text{D.7})$$

où l'on a tenu compte de la dégénérescence de spin de l'exciton $g_s = 4$. On a introduit la quantité $E_X = E_c - E_v - E_b$ qui est l'énergie de la transition excitonique et correspond à l'écart entre les bandes de conduction et de valence diminué de son énergie de liaison E_b . L'hypothèse d'équilibre entre les excitons et le plasma électron-trou se traduit par l'égalité suivante entre le potentiel chimique de l'exciton et les niveaux de Fermi

$$\mu_X = E_{Fe} - E_{Fh}. \quad (\text{D.8})$$

Si on fait de plus l'hypothèse de la neutralité du plasma,

$$n_{eh} = n_e = n_h \quad (\text{D.9})$$

on obtient, en combinant les équations D.6, D et D.7, la relation suivante entre, d'une part, la densité de paires électron-trou dans l'état non lié, n_{eh} , et, d'autre part, la densité d'excitons, n_X :

$$\frac{1 - e^{-n_X/n_X^T}}{\left(e^{n_e h/n_e^T} - 1 \right) \left(e^{n_e h/n_h^T} - 1 \right)} = \exp \left(\frac{E_b}{k_B T} \right) \quad (\text{D.10})$$

où l'on a introduit les grandeurs $n_e^T = m_e k_B T / \pi \hbar^2$, $n_h^T = m_h k_B T / \pi \hbar^2$ et $n_X^T = m_X k_B T / \pi \hbar^2$ homogènes à des densités bidimensionnelles. Cette équation traduit l'équilibre thermodynamique entre les phases plasma et excitons. Dans la limite de gaz non dégénérés, il est possible de supposer $n_X \ll n_X^T$, $n_e \ll n_e^T$ et $n_h \ll n_h^T$. Ainsi,



on utilise donc les approximations $1 - e^{-n_X/n_X^T} \simeq n_X/n_X^T$, $1 - e^{-n_e/n_e^T} \simeq n_e/n_e^T$ et $1 - e^{-n_h/n_h^T} \simeq n_h/n_h^T$ ce qui conduit à simplifier l'équation D.10 en

$$\frac{n_{eh}^2}{n_X} = \frac{\mu k_B T}{2\pi \hbar^2} \exp\left(-\frac{E_b}{k_B T}\right). \quad (\text{D.11})$$

A ce stade, les interactions entre particules n'ont pas été prises en compte. Or, ces interactions entre particules ont pour effet de modifier, en outre, l'énergie de la liaison excitonique, E_b , susceptible de dépendre de la densité de particules. Lorsque l'énergie de liaison devient très faible devant $k_B T$, on s'attend à la création de paires ionisées au détriment des excitons. Toutefois, cet effet n'est pas prédit par l'équation D.11. Nous utilisons donc la fonction de partition de « Planck-Larkin » [137, 171] qui corrige la statistique Boltzmannienne et prend en compte des états liés lorsque E_b est très faible devant $k_B T$

$$e^{E_b/k_B T} \rightarrow e^{E_b/k_B T} - (1 + E_b/k_B T) \quad (\text{D.12})$$

On établit ainsi l'équation¹ du « type Saha » présentée au paragraphe 3.6.1.

1. L'équation D.12 constitue, par rapport à l'exponentielle de Boltzmann, une correction à l'ordre 2 en $E_b/k_B T$. Dans l'équation 3.100 (cf § 3.6.4), nous nous contentons d'une correction à l'ordre 1.





Annexe E

Échantillons et structures de pièges

Les données de luminescence dans ce travail de thèse sont principalement obtenues à partir des deux échantillons D704 et D713 qui se distinguent essentiellement par la nature du substrat mais aussi par l'épaisseur de la barrière supérieure (AlGa_N, *top layer*) et sa teneur en aluminium. Les paramètres de ces échantillons ainsi que ceux de deux autres (D620 et D621), plus anciens et correspondant aux travaux antérieurs à cette thèse, sont rassemblés dans la table E.1.

Echantillon		D620	D621	D704	D713
EPL, 4K	(eV)	3,20	3,13	3,15	3,30
Aluminium	(%)	15,2	9,7	11	7
AlGa _N 2, top	(nm)	10	10	50	100
GaN, QW	(nm)	7,7	8,5	7,8	8
AlGa _N 1, bottom	(nm)	30	100	100	100
GaN, buffer	(μ m)	1,4	1,4	0,8	1,2
substrat		Ammono	Lumilog	Lumilog	Ammono
TDD	(cm^{-2})	$1 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^7$	$1 \cdot 10^4$

TABLE E.1 – Paramètres physiques de quatre échantillons utilisés dans l'équipe de recherche au Laboratoire Charles Coulomb (L2C, Montpellier). La croissance de ces échantillons est effectuée au Centre de Recherche pour l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CRHEA, Valbonne). TDD est la densité surfacique de dislocations traversantes (Threading Dislocations Density) : une valeur basse indique qu'*a priori* le taux de recombinaison non radiative sera faible et, donc, que la luminescence sera le processus préférentiel de destruction des charges libres. EPL est l'énergie de la photoluminescence, dans la limite des faibles densités de porteurs photocréés.



La **teneur en aluminium** de l'échantillon D713, 7%, a été choisie inférieure à celle de l'échantillon D704, 11%, afin de réduire le *désordre de composition d'alliage*. En conséquence, le **champ électrique interne** (voir éq. 3.6), dû à la différence de polarisation spontanée entre le matériau puits et le matériau barrière, **est également moins important** : l'électron et le trou sont donc moins spatialement séparés. L'exciton étant « moins indirect », on choisit d'augmenter le nombre de monocouches constituant le puits quantique. La largeur du puits passe est ainsi de 7,8 nm pour D704 à 8,0 nm pour D713 afin que la **durée de vie radiative demeure sensiblement similaire** pour ces deux échantillons. Rappelons toutefois que l'énergie de photoluminescence est plus importante pour D713, compte-tenu de la réduction de la valeur du champ interne F intervenant dans l'équation décrivant l'effet Stark quantique confiné 2.11.

Les propriétés de luminescence (énergie, durée de vie radiative, largeur de raie) de l'hétérostructure à puits quantique sont déterminées par les paramètres des échantillons D704 et D713. Ces propriétés peuvent être évaluées en espace libre (c'est-à-dire en l'absence de piège). Le substrat est dopé donneur ($\sim 3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). La face arrière de ces échantillons est métallisée par quatre couches déposées successivement Ti (30 nm), Al (180 nm), Ni (40 nm) et Au (400 nm), elle joue le rôle d'une surface isopotentielle et constitue la masse du dispositif.

LetterDim {D, L, E} valDim LetterCode {T,C,R,M,B,S,D} number LetterSample / Axis {A,B,C, Y,U}

exemples: **D90T2A**, **P8S1U**, **D80T3C**








NOM	Dimension	Code	Valeurs	Listes	Nb
 Piège annulaire	D: diamètre	Trap : T	5 10 20 30 40 60 80 100	D5T3A D10T3A D20T3A D30T3A D40T3A D60T3A D80T2A D100T2A D40T1B D20T3C D100T3C	29
 Canal	E: épaisseur, longueur fixe 150um	Channel : C	3 5 10 20	E3C6A ESC4A E10C3A E20C4A	17
 Rampe	L : longueur du segment central	Ramp : R	25 50 100	L25R3C L50R4C L100R4C	11
 Transistor	E : épaisseur de barrière	Level control: L	5 10 15	E5L2B, E10L2B, E15L2B	6
 Barrière	E : épaisseur de barrière	Barrier : B	5 10 20 50	E5B5C E10B3C E20B3C E50B3C	14
 Peigne	P : période du gap Y U: orientation	Simple Comb: S	8, 10, 12	P8S2YU P10S2YU P12S2YU	6
 Interdigité Serpent	AUCUN « zero »	Double : W Snake : S	AUCUNE ex: W1C S1A	S3A, W3B	3 3

FIGURE E.1 – Nomenclature utilisée pour repérer les 7 types de piège.

Afin d'accroître la densité d'excitons, nous avons conçu de nombreuses structures de piégeage qui sont présentées ci-après sur les figures E.4, E.5 et E.6. Les structures ont été conçues au L2C (conception des masques de lithographie) et réalisées au CRHEA

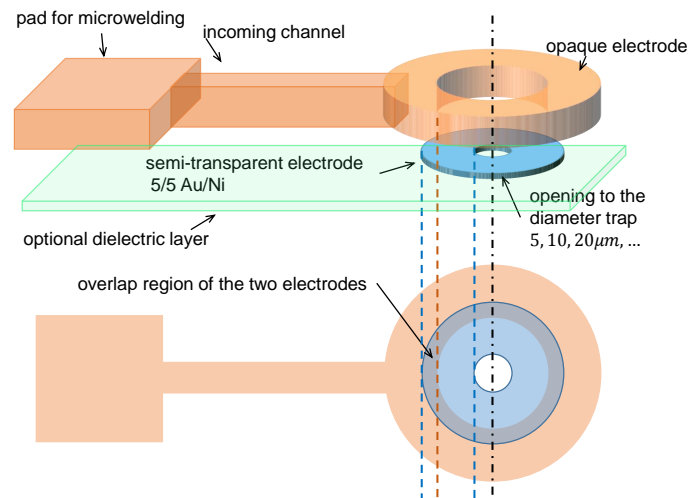


FIGURE E.2 – Schématisation des trois couches de lithographie : couche épaisse métallique, semi-transparente métallique, diélectrique optionnel.

(process de lithographie optique). Différentes géométries et différents paramètres (voir nomenclature sur la figure E.1) sont utilisés afin de pouvoir comparer les capacités de piégeage et déterminer les conditions optimales pour la réalisation de condensat. Le schéma d'implantation avec les dimensions des trois lots de structure est donné sur la figure E.3.

Chaque structure se compose :

- d'une électrode épaisse (dépôt de ~ 20 nm Ni puis ~ 400 nm Au) délimitant la frontière de la structure et reliée à un « pad » carré de $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ servant à connecter un fil électrique *via* une microsoudure.
- d'une électrode semi-transparente (dépôt de ~ 5 nm Ni puis ~ 5 nm Au) jouant le rôle de barrière de potentiel pour les excitons mais permettant néanmoins (1) d'observer, par transparence, la luminescence des charges qui se recombinent et (2) d'effectuer une injection optique dans cette zone spatiale.
- éventuellement d'une fine couche d'oxyde (SiO_2) déposée directement sous l'électrode semi-transparente (cf fig.E.2). Le rôle de ce diélectrique est de limiter les courants de fuite de la jonction et d'accroître la polarisation négative applicable. Toutefois, nous avons constaté *a posteriori* que les échantillons possédant cette couche d'oxyde avaient de moins bonnes propriétés de luminescence. Davantage de données seraient toutefois nécessaires pour confirmer cette observation.

L'électrode semi-transparente est par ailleurs contactée électriquement au « pad » carré. L'application d'une différence de potentiel électrique entre le semi-transparent et la face arrière de l'échantillon permet de varier le potentiel de confinement : c'est le principe du **contrôle électrique du piégeage** par la jonction schottky Nickel / semi-conducteur.

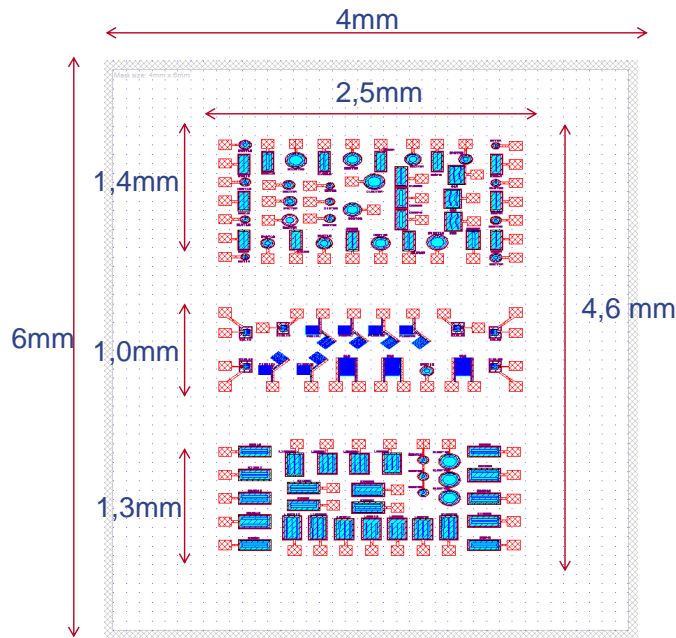


FIGURE E.3 – Implantation des trois lots de structures A, B et C présentes sur le schéma respectivement de haut en bas.

Les images de microscopie optique et électronique des échantillons sont données sur la figure E.7.

Les motifs d'électrodes ont été imaginés au tout début de la thèse. Seuls les pièges circulaires, les canaux 1D et les rampes ont été explorés en spectroscopie et imagerie. Les transistors, barrières, peignes simples et interdigités pourront donner libre cours à l'imagination de futurs expérimentateurs.

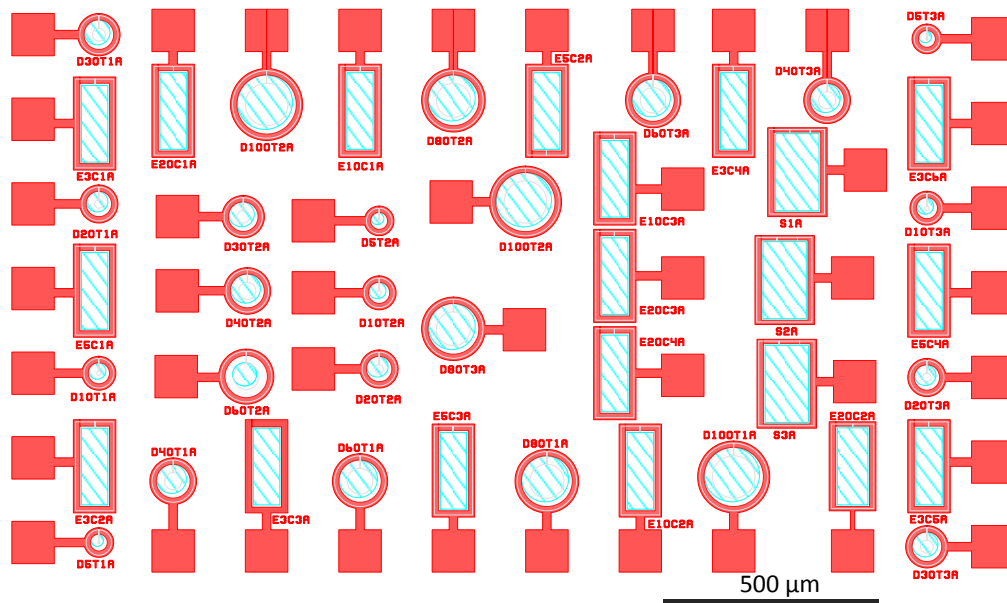


FIGURE E.4 – Schéma de l'« échantillon A » contenant 44 structures de piège.

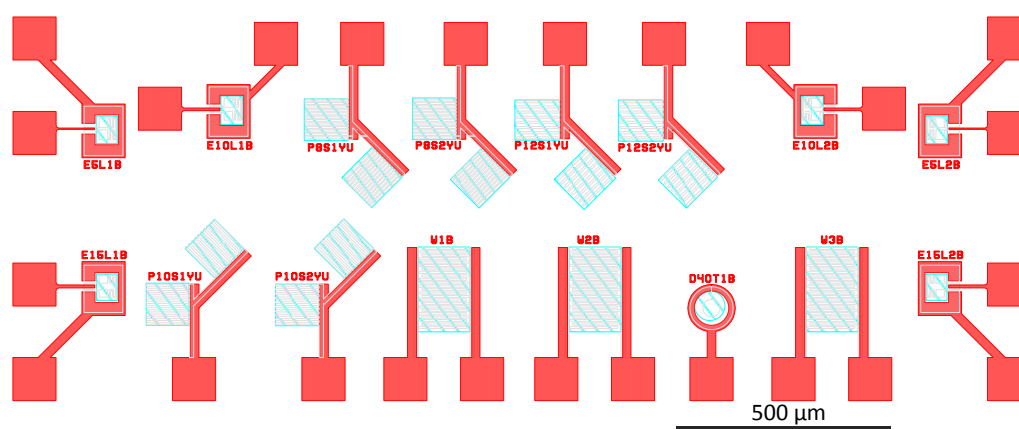


FIGURE E.5 – Schéma de l'« échantillon B » contenant 16 structures.

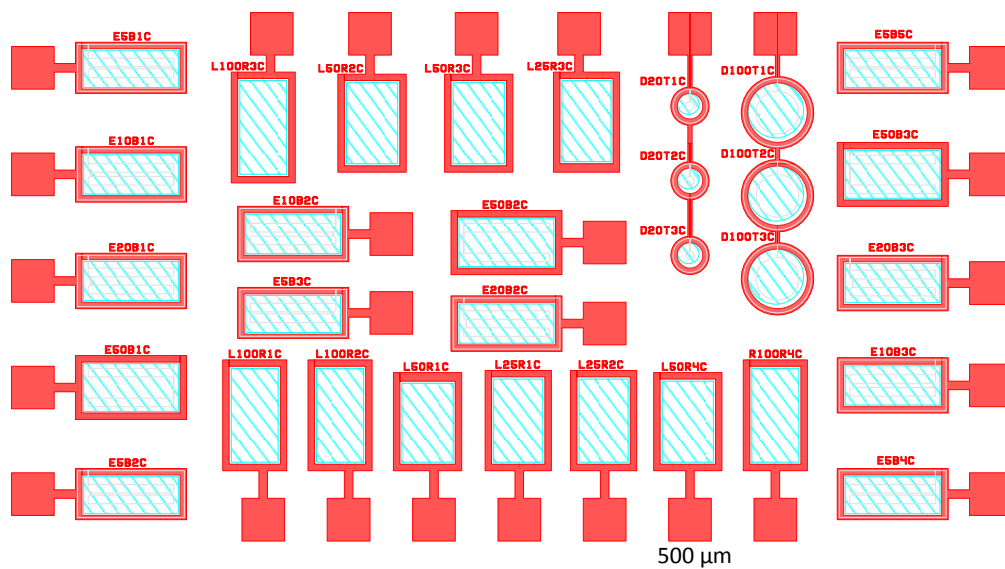
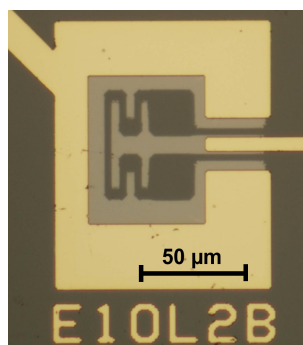
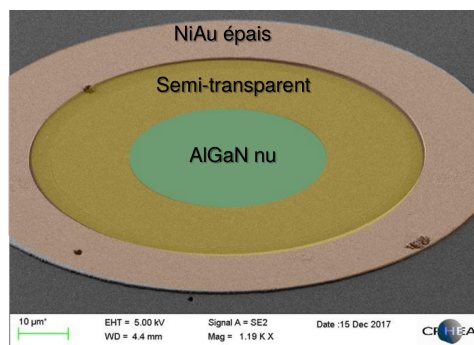


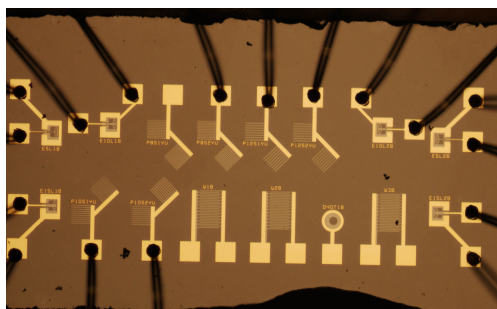
FIGURE E.6 – Schéma de l'« échantillon C » contenant 31 structures de piège.



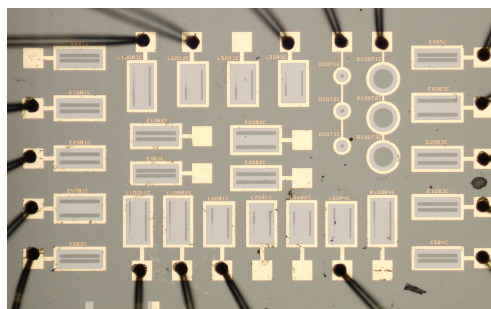
(a)



(b)



(c)



(d)

FIGURE E.7 – (a) Image du piège E10L2B, microscopie optique, obj. 50x ; (b) Piège D40T1A, de diamètre $40 \mu\text{m}$, microscopie électronique, détecteur électrons secondaires (SE) ; (c, d) Échantillons B et C, microscopie optique des structures et des contacts.

Annexe F

Algorithme de résolution de l'équation de Schrödinger 1D

Le listing [F.1](#) présente le code en MATLAB de la fonction qui a été développée pour résoudre l'équation de Schrödinger 1D par la méthode des différences finies. Ses paramètres d'entrée sont :

- le potentiel énergétique, V_i , échantillonné spatialement,
- le champ de masse effective, m_i ,
- le pas d'espace, dx ,
- le nombre, N , de valeurs et vecteurs propres de plus basses énergies à retourner.

Ses paramètres de sortie sont :

- la listes des N énergies propres de plus faibles valeurs E_i ,
- la liste de N vecteurs propres correspondants, Φ_i .

Sans rentrer dans le détail du code, mentionnons que l'on fait appel aux matrices creuses par l'intermédiaire

- de la fonction `spdiags` (ligne 16 du listing [F.1](#)) qui construit la matrice tridiagonale (cf § 3.2.1)
- et de la fonction `eigs` (ligne 20) qui diagonalise cette matrice et renvoie les N vecteurs et valeurs propres de plus faibles modules (*via* la commande '`SM`', *smallest magnitude*).



```

1 function [Ei,Phi] = Schrodinger(Vi,mi,dx,N)
2 % Compute N lowest eigen energies Ei & functions Phi(1:N,i)
3 % with input Vi and mi, dx=spatial step
4
5
6 norm1=2*dx^2*m0*hbar^2*nm^2*qe;%Numeric factor
7 avge=@(x,y) 2./(1./x+1./y);% Average for mass inverted
8 minVi=min(Vi);           % Only positive values
9 Vi=Vi-minVi;           % Translate into positive values
10 miNext=circshift(mi,-1); % m_{i+1}
11 miPrev=circshift(mi,1);  % m_{i-1}
12 mplus=avge(mi,miNext);  % from 1 to N-1
13 mminus=avge(mi,miPrev); % from 2 to N
14
15 %Building up the sparse matrix
16 Smat=spdiags([ (1./mplus+1./mminus)/norm1+Vi ...
17   -1./(norm1*mminus) -1./(norm1*mplus) ],[0 -1 1],NN,NN);
18
19 %Eigen values computation
20 [eigv Ei]=eigs(Smat,N,'SM');% The N smallest eigen values
21 Ei=diag(Ei)+minVi;        % Convert to column vector
22 [S I]=sort(Ei);          % Sorting the eigen values
23 Phi=zeros(size(eigv));   % Eigen function <- 0
24
25 %Normalisation
26 for i=1:N % Normalisation
27   Int=norm(eigv(:,I(i)))*dx;% Integration
28   Phi(:,i)=eigv(:,I(i))/sqrt(Int);% Rescale eigen function
29 end
30 Ei=Ei(I(:));            % Return sorted eigen Energies
31 end

```

Listing F.1 – Résolution de l'équation de Schrödinger 1D par différences fines.



Annexe G

Procédure d'extraction des paramètres de la raie de luminescence excitonique

Les raies de la luminescence excitonique possèdent, en représentation semi-logarithmique Intensité - Energie, $\text{Log}(I) = f(E)$, une allure triangulaire dont chacun des flancs basse et haute énergie peut être modélisé par une relation exponentielle

$$\propto \exp(\pm\beta_{1,2}E) \quad (\text{G.1})$$

avec $\beta_{1,2}$ qui caractérise la pente de ces flancs.

Afin de prendre en compte ces doubles flancs exponentiels, nous utilisons la forme générique suivante

$$I = f_{\theta}(E) = A \frac{\exp(\beta_1(E - E_0))}{1 + \exp(\beta_2(E - E_0))} \quad (\text{G.2})$$

où $\theta = \{A, \beta_1, E_0, \beta_2\}$ constitue le vecteur de paramètres à optimiser.

L'algorithme (cf listing G.1) utilise une régression des moindres carrés à partir d'une condition initiale \mathbf{p}_0 convenablement prédéterminée. Notons que le paramètre E_0 n'est pas l'énergie du maximum, E_{\max} : cette dernière est donc obtenue par une simple recherche numérique de la valeur maximale sur une liste de valeur d'énergies appliquée à la fonction modèle $x \rightarrow f_{\theta_0}(x)$ où θ_0 est l'optimum au sens des moindres carrés (cf lignes 10 à 13).

La figure G.1 illustre la pertinence de la forme générique utilisée et la qualité de la modélisation de la forme de raie résultant de l'algorithme des moindres carrés.



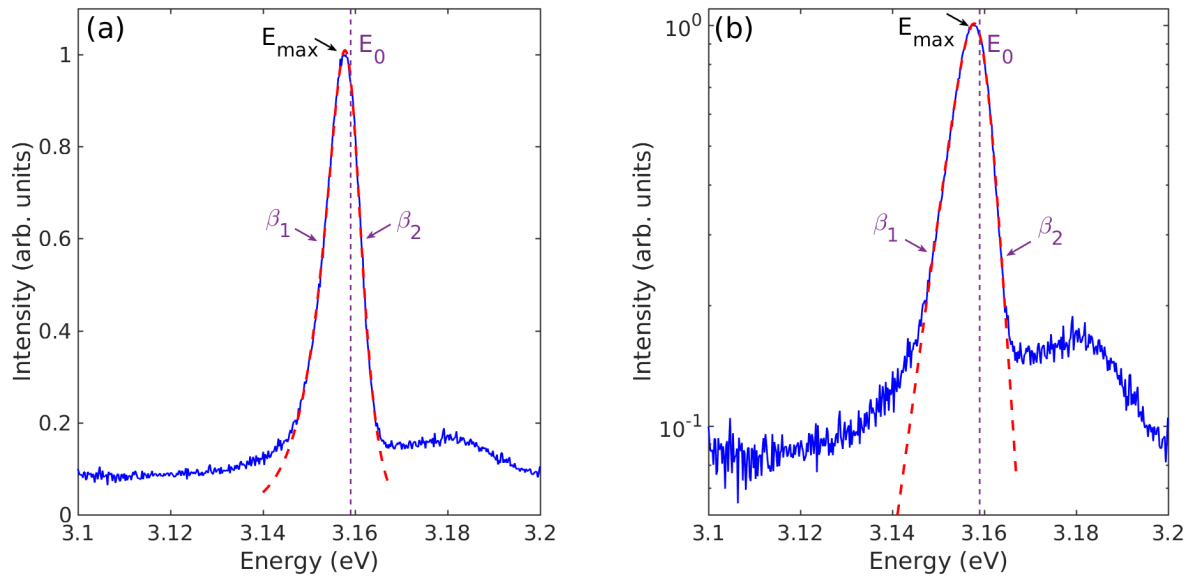


FIGURE G.1 – Spectre typique de la luminescence excitonique (bleu) et courbe modèle (tirets rouges) en représentation (a) linéaire et (b) semi-logarithmique. La valeur du paramètre $E_0 = 3,159$ eV est repérée par les tirets violets verticaux, le maximum de la courbe est atteint à l'énergie $E_{\max} = 3,158$ eV.

```

1 function [pres Emax] = fitTriangular(Ei, Ii)
2 % For Given a spectrum Ii = f(Ei)
3 % return the optimal Pres=[A beta1 E0 beta 2] and Emax
4
5 shape=@(p,x) p(1)*(exp(p(2)*(x-p(3)))) ./ ...
6 (1+exp((x-p(3))*p(4))); % Generic shape
7
8 pres=lsqcurvefit(shape,p0,xi,yi); % Least squares
9
10 % compute Emax
11 xOver=linspace(min(xi),max(xi),5e3); % Over sampling
12 [m iM]=max(shape(pres,xOver)); % Max of model
13 Emax=xOver(iM); % Energy at max.
14 end
    
```

Listing G.1 – Algorithme simplifié du fit de la forme triangulaire des raies excitoniques.



Annexe H

Modélisation du transport excitonique sous champ magnétique

Nous donnons ici la démarche de la modélisation numérique qui permet de déduire que l'effet du champ magnétique sur le transport est limité, dans les conditions expérimentales présentées au paragraphe 5.2 du chapitre 5 :

- Dans un premier temps, nous déterminons les caractéristiques du faisceau d'excitation laser à partir des profils spatiaux déterminés expérimentalement.
- Ensuite, nous ajustons les paramètres du modèle (flux effectif de photons N_p , voir ci-après), longueur de diffusion ℓ et taux de recombinaison radiatif τ_0 de manière à reproduire le profil de luminescence à champ nul pour les deux puissances extrêmes (90 mW.cm^{-2} et 2.8 mW.cm^{-2}).
- Enfin, nous avons quantifié l'effet d'une modification de la masse de exciton

$$M_X = (1 + \delta m_X)(m_e + m_h) \quad (\text{H.1})$$

avec $m_e = 0,2 m_0$, $m_h = 1,6 m_0$ et δm_X représente la variation adimensionnée de masse totale de l'exciton.

La masse m_X intervient dans l'équation de transport (éq. 3.101) *via* la constante de diffusion

$$D_X = \ell \sqrt{2k_B T / M_X} \quad (\text{H.2})$$

ainsi, une augmentation de la masse M_X diminue non seulement le courant de diffusion (éq. 3.102) mais aussi le courant de *drift* (éq. 3.103), la mobilité $\tilde{\mu}_X$ et la diffusivité D_X étant deux grandeurs proportionnelles (cf relation d'Einstein 3.104).



Profil de l'excitation laser Le taux de génération du spot est ajusté afin de reproduire le profil expérimental du spot laser. Il est ainsi modélisé par la fonction à symétrie cylindrique

$$G(r) = \frac{N_p}{\pi R_0^2 + \pi W^2/2} \times \operatorname{erfc}\left(\frac{r - R_0}{W}\right) \quad (\text{H.3})$$

où $R_0 = 200 \mu\text{m}$ est la largeur centrale du spot éclairant, $W = 110 \mu\text{m}$ est largeur de la zone de décroissance du spot et $\operatorname{erfc} : x \mapsto 2/\sqrt{\pi} \int_x^\infty dt e^{-t^2}$ est la fonction erreur complémentaire.

Le flux effectif de photons incidents est fixé à $N_p = 4 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ pour $P = 90 \text{ mW.cm}^{-2}$, sa valeur pour $P = 2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$ étant dans la proportion 2,8/90. Par rapport aux valeurs numériques utilisées dans notre étude précédente [143], seules les valeurs de la longueur de diffusion $\ell = 20 \text{ nm}$ et de la constante d'écrantage $\gamma = 2,7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ sont adaptées afin d'être cohérentes avec les résultats des simulations présentées au chapitre 3.

Résultats de la modélisation La figure H.1 donne l'évolution des profils simulés à 14 K (a,c) du *blueshift* énergétique et (b,d) de l'intensité de la raie de PL pour différentes valeurs de la masse de l'exciton. On constate comme prévu que l'augmentation du paramètre δm_X de masse conduit à une réduction du transport excitonique. A partir de telles simulations, on évalue les propriétés de l'émission sous le spot : le *blueshift* et l'intensité radiative sous le spot sont tracés en fonction du paramètre δm_X de masse pour les deux conditions de puissance sur la figure H.2. On constate qu'à faible puissance (fig. H.2c,d), lorsque la masse varie de $\delta m_X = 0,3$ (soit 30 % d'augmentation), le *blueshift* atteint 1 meV et l'intensité radiative augmente également de 30 %. Aux fortes puissances, la même variation de masse engendre une augmentation de 8 meV du *blueshift* et de 50 % de l'intensité radiative.

Comparaison avec les données expérimentales Si on souhaite confronter les résultats de ces modèles avec nos données expérimentales, il n'est pas pertinent de suivre l'évolution de l'énergie sous le spot car son augmentation contient un terme d'origine magnétique (terme diamagnétique en B^2) qui n'est pas pris en compte dans notre modèle de transport. Ainsi, le découplage des effets du transport et du *shift* magnétique n'est pas possible si on se réfère uniquement à l'énergie de l'émission. C'est pourquoi notre comparaison se porte sur l'intensité de la PL. Expérimentalement, les spectres de luminescence (cf fig.H.3) possèdent une évolution de leur intensité sous le spot qui n'augmente pas avec le champ magnétique (à faible puissance, on constate une réduction d'environ 15 % de l'intensité lorsque le champ augmente de 0 à 10 T).



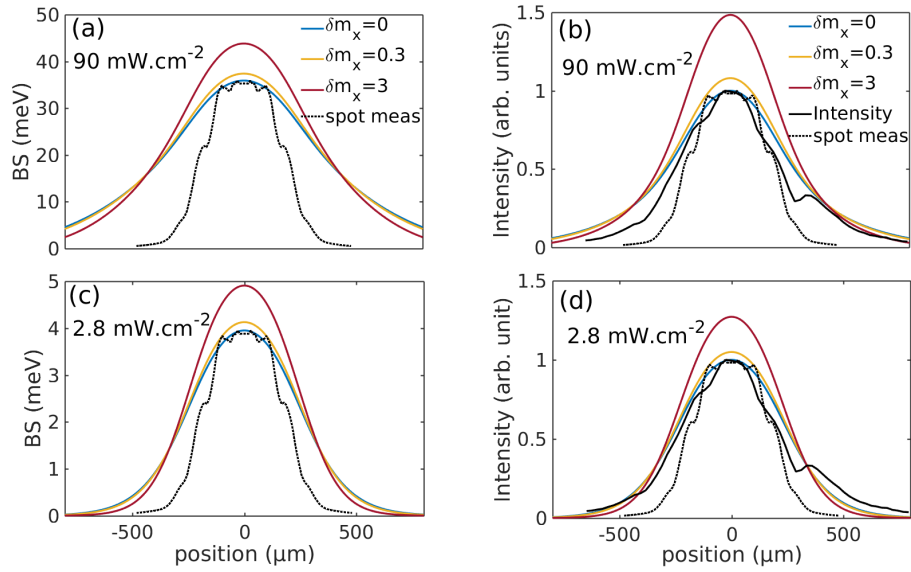


FIGURE H.1 – (a,c) : profils spatiaux de *blueshift* pour différentes valeurs de masse, à forte puissance (a, 90 mW.cm^{-2}) et à faible puissance (c, $2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$). (c,d) : profils spatiaux de l'intensité de PL dans les mêmes conditions de forte (b) et faible (d) puissances d'excitation. La simulation a été faite pour $T = 14 \text{ K}$.

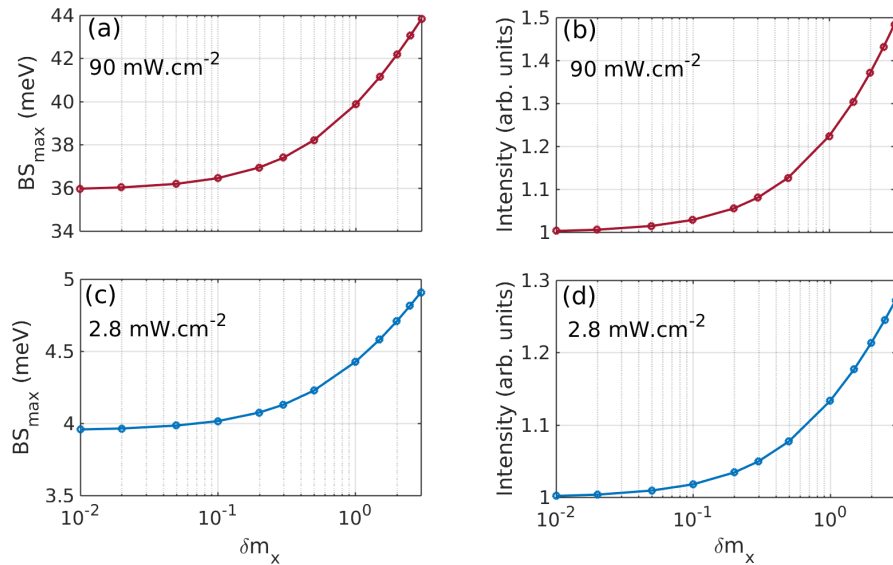


FIGURE H.2 – (a,c) : évolution du *blueshift* sous le spot en fonction du paramètre de masse δm_X , à forte puissance (a, 90 mW.cm^{-2}) et à faible puissance (c, $2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$). (b,d) évolution de l'intensité de PL sous le spot en fonction du paramètre de masse δm_X dans les mêmes conditions de forte (b) et faible (d) puissances d'excitation.

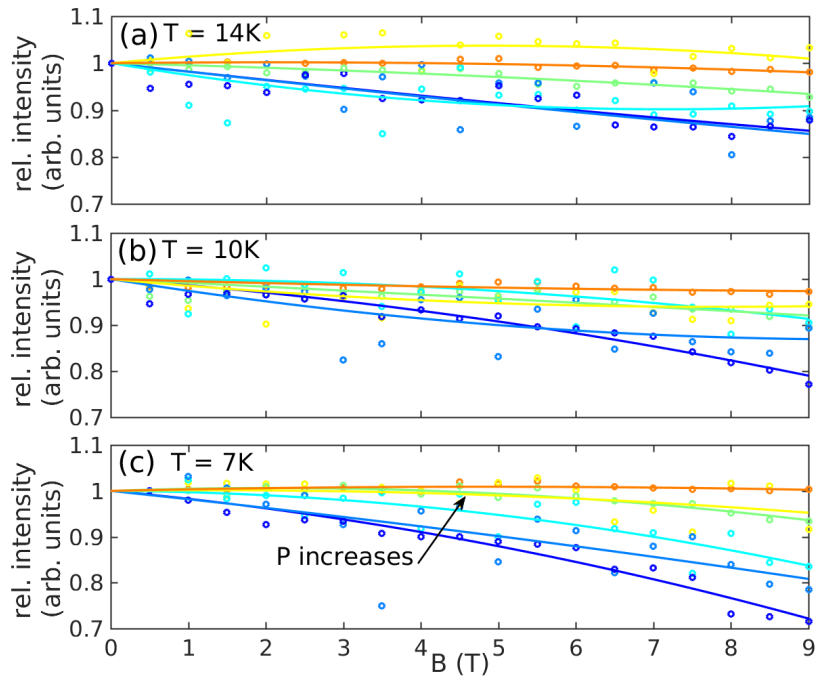


FIGURE H.3 – Évolution de l'intensité radiative de la raie IX sous le spot en fonction du champ magnétique à différentes puissances d'excitation (de $2,8 \text{ mW.cm}^{-2}$ à 90 mW.cm^{-2}) pour trois températures (a) 14 K, (b) 10 K et (c) 7 K. Les courbes en traits continus constituent un support visuel pour faciliter la lecture.

Ainsi, on peut conclure que, d'après ce modèle, le rôle du champ magnétique sur la modification des paramètres du transport et donc de la masse de l'exciton n'est pas significatif : une modification de l'intensité de 1 %, limite la variation de masse à quelques pourcents.

Annexe I

Développement technique du cryostat pour réaliser des mesures électriques

Nous donnons les principales étapes du travail qui a été réalisé pour adapter le cryostat à doigt froid afin de varier électriquement le potentiel de piégeage des excitons, contrôler le transport excitonique et mesurer le courant vertical dans la jonction Schottky.

La figure I.1 illustre le montage classique de cryogénie basé sur le cryostat à doigt froid (Oxford Microstat HiRes) que nous avons utilisé. L'hélium liquide est pompé depuis un bidon isolé thermiquement. Après avoir pénétré dans le cryostat proprement dit, il circule autour d'une pièce en cuivre elle-même en contact thermique avec l'échantillon, ce qui permet d'évacuer ses calories. L'hélium « réchauffé » est alors réinjecté à l'état gazeux dans un circuit de récupération afin d'être condensé à nouveau. La température du cryostat est asservie par un système électronique (correcteur P.I.D.) qui régule l'ouverture de la vanne pointeau (cf fig. I.1) en fonction de la valeur donnée par la sonde de température intégrée dans le cryostat. L'ensemble des éléments « froids », bidon, canne de transfert et cryostat sont isolés thermiquement grâce à des chambres à vide préalablement pompées. Notons qu'avec un bidon de 50 L, nous avons pu effectuer entre 10 et 15 jours de mesures selon les conditions de température choisies.

I.1 Conception mécanique et électrique

Afin de modifier le potentiel électrostatique des pièges à excitons, nous avons dû **adapter le cryostat existant** afin de contacter les nanostructures de piégeage à un dispositif électronique de type *Source Measure Unit* (SMU). J'ai réalisé ce travail en collaboration avec Pierre Valvin, Christophe Consejo, Alban Bertrand, Christian L'Hénoret, ingénieurs et techniciens en instrumentation au Laboratoire Charles Coulomb



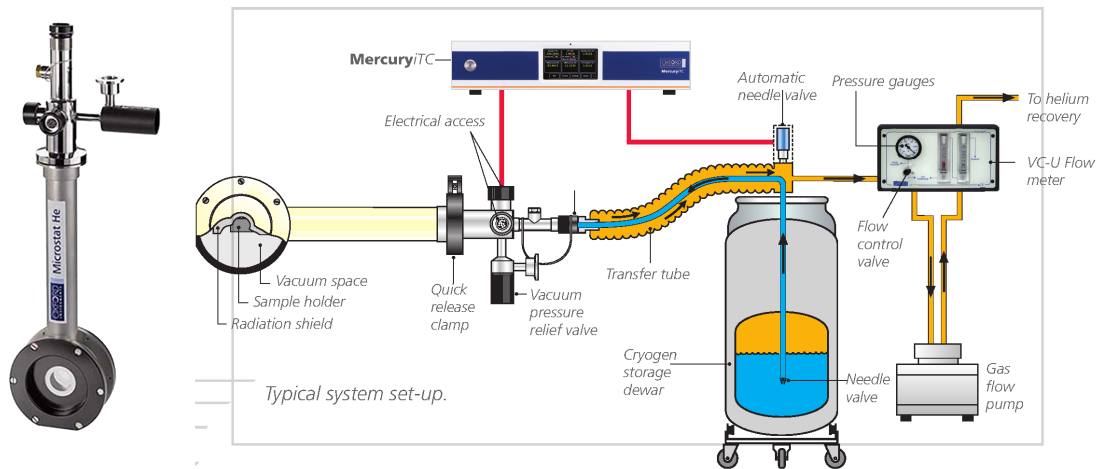


FIGURE I.1 – Protocole d’utilisation d’un cryostat à doigt froid à flux d’hélium (d’après *Oxford Instruments NanoScience*®). L’hélium liquide (en bleu) stocké dans le bidon (*cryogen storage dewar*) est injecté *via* la canne de transfert (*transfert tube*) dans le cryostat et évacue les calories de l’échantillon. L’hélium gazeux (en orange) est aspiré par la pompe vers le circuit de recyclage (*recovery*). Le contrôle de la température s’effectue en ajustant la vanne pointeau (*needle valve*) et la vanne en aval du manomètre (*flow control valve*).

(L2C, Montpellier). Une des difficultés est de garantir la bonne thermalisation de l’échantillon tout lui amenant du courant électrique *via* des conducteurs métalliques qui sont donc susceptibles d’amoinrir l’isolation thermique. La solution technique adoptée a été conçue pour être **entièrement démontable** et garantir la **réversibilité vers l’ancienne version**.

Les principales pièces constituant le nouvel assemblage sont présentées sur la figure I.2. D’abord, nous avons conçu une pièce spécifique pour assurer le transfert thermique (fig. I.2i) : cette pièce possède une rainure fraisée débouchant sur une ouverture qui permet le passage d’une tresse de dix fils électriques assurant le contact avec le porte échantillon. Deux pièces ont aussi été ajoutées : une pièce époxy en forme de croix (fig. I.2d) ainsi qu’une entretoise pour rehausser la garde thermique au dessus du niveau du porte échantillon. Nous avons malheureusement constaté que les performances thermiques étaient dégradées car l’échantillon se situait au dessus du plan défini par la garde thermique. Nous avons alors ajouté un *haut de garde thermique* qui **éloigne l’écran thermique de l’échantillon et contribue à une meilleure thermalisation** (fig. I.2f,g). Enfin, nous avons dû revoir le *design* du capot externe (fig. I.2e,h) en créant une nouvelle pièce qui tienne compte du nouvel encombrement du système ainsi modifié. Toutes ces étapes de conception ont été réalisées en interne à l’aide du logiciel *Autodesk Inventor*.

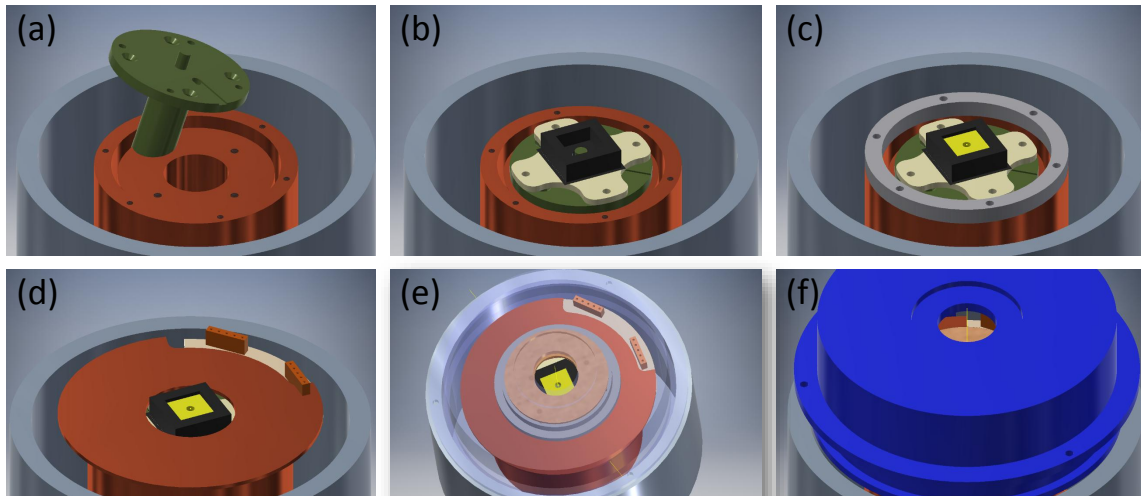


FIGURE I.3 – Différentes phases de l’assemblage du cryostat : (a) embase (orange) et élément de transfert (vert) ; (b) plaque époxy (jaune pale) et porte-échantillon (noir) ; (c) échantillon (jaune) et entretoise (gris) ; (d) garde thermique (orange) et fiches électriques ; (e) haut de garde thermique ajouré (gris et saumon) ; (f) capot externe (bleu) avec rainure pour joint et lamage pour la fenêtre de quartz.

thermique à basse température.

I.3 Validation des performances cryogéniques

Une fois que l’on a assemblé cette nouvelle version du cryostat qui permet les contacts électriques, nous avons besoin :

- (1) de vérifier que ses performances thermiques sont correctes et, si besoin, de préciser les modifications à apporter sur le *design* afin de les améliorer,
- (2) de quantifier ces performances thermiques et notamment d’être capable d’estimer **la température réelle de l’échantillon** à partir de la valeur de température indiquée par la sonde intégrée au cryostat et présente sur la face avant du régulateur de température fourni par le fabricant.

Pour ce faire, nous utilisons un échantillon « test » constitué d’un capteur de température de type Cernox[®], qui est le composant CX-1050, dont la variation de résistance avec la température (cf fig.I.5a) est bien adaptée à la gamme utilisée dans nos expériences (4 K – 100 K). Le constructeur nous fournissant les données d’étalonnage de ce capteur, il nous est possible de remonter, à partir de la mesure de sa résistance, à une valeur très précise de sa température. L’échantillon test est alors placé dans les mêmes conditions expérimentales qu’un véritable échantillon pour lequel nous souhaiterions faire les mesures optiques sous polarisation : il est inséré dans le cryostat (cf fig. I.5b) sous flux d’hélium et nous varions sa température. Le contrôle précis de la consigne en

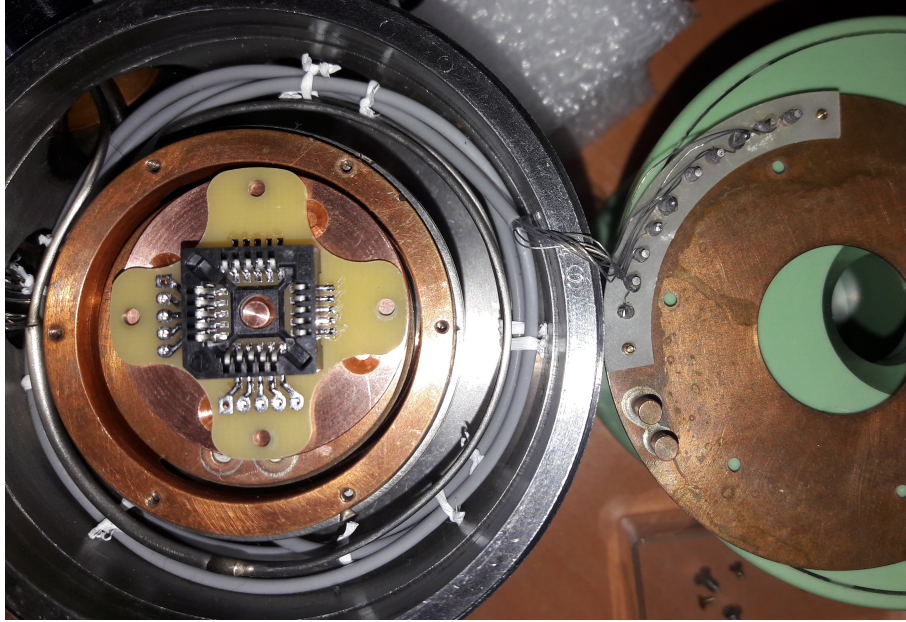


FIGURE I.4 – Photographie du cryostat ouvert. À gauche, on observe le porte échantillon (noir) et les soudures sur l'époxy. À droite, la garde thermique et les pinoches sur lesquelles sont effectuées les soudures pour le câblage électrique (vue dessus-dessous).

température est assuré grâce à la sonde T_{probe} intégrée au cryostat. On mesure alors la résistance, R_{meas} du capteur Cernox[®] pour différentes valeurs de la température. On répète cette opération pour différentes configurations du cryostat :

- (a) sans garde thermique, c'est-à-dire dans la situation où l'échantillon ne se situe pas en retrait par rapport au plan défini par l'écran thermique,
- (b) avec la garde thermique rehaussée, c'est-à-dire en présence de la pièce illustrée sur la figure I.2f) qui améliore l'écrantage radiatif,
- (c) avec la garde thermique rehaussée à laquelle on ajoute un scotch d'aluminium ajouré afin de permettre le passage de l'excitation optique,
- (d) idem à la situation précédente sauf que le scotch d'aluminium n'est pas ajouré et rend ainsi l'échantillon totalement aveugle au rayonnement extérieur.

La dépendance de la résistance R_{meas} du capteur avec la température de consigne T_{probe} est tracée sur la figure I.6a, pour les quatre configurations précédemment décrites. À partir de l'étalonnage du capteur CX-1050, on peut convertir les valeurs de la résistance R_{meas} en température, T_{estim} , qui correspond à l'estimation de la température « réelle » d'un véritable échantillon soumis à des mesures optiques. L'écart $\Delta T = T_{\text{estim}} - T_{\text{probe}}$ entre cette estimation et la consigne est tracé sur la figure I.6b. Les résultats expérimentaux permettent de conclure que :

- sans garde thermique, l'écart entre la température de consigne et la température « réelle » de l'échantillon peut valoir jusqu'à 16 K lorsque la consigne est de

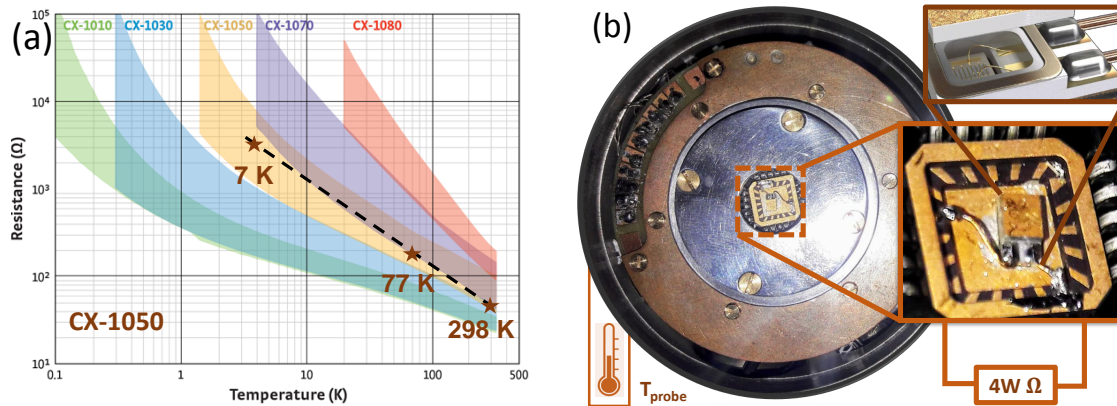


FIGURE I.5 – Le graphe (a) donne l'évolution de la résistance du composant CX-1050 en fonction de la température et justifie ainsi le choix de ce capteur compte-tenu de la plage de température accessible par le cryostat à doigt froid. Les trois points d'étalonnage (étoiles) sont fournis par le constructeur. La figure (b) illustre le protocole de test des performances thermiques du cryostat : la résistance du capteur CX-1050 inséré dans le cryostat est mesurée *via* un montage 4 points. La sonde T_{probe} permet le suivi de la consigne de température.

4 K. Par conséquent, la température la plus basse est limitée à 20 K avec cette configuration.

- l'ajout d'une garde thermique, et même du film d'aluminium contribue à améliorer nettement les performances thermiques du cryostat. La température minimale que l'on peut atteindre descend à 12 K environ.
- toutefois, il semble illusoire de souhaiter accéder à une température de 4 K. La température minimale de l'ordre de 5 K n'est atteinte que lorsque l'échantillon est isolé totalement d'un point de vue radiatif, ce qui exclut évidemment toute mesure optique.
- il est probable que le paramètre limitant soit le diamètre de l'élément de transfert (cf fig. I.2i) en contact avec l'échantillon. On pourrait envisager une nouvelle version en augmentant ce diamètre de quelques millimètres car cela demeure compatible avec les contraintes dimensionnelles du porte échantillon.

In fine, cette étude nous a permis de valider l'intérêt de la garde thermique, de quantifier les performances du cryostat mais également d'être capable d'estimer la température réelle de l'échantillon à partir de la valeur de température indiquée par le contrôleur de température.

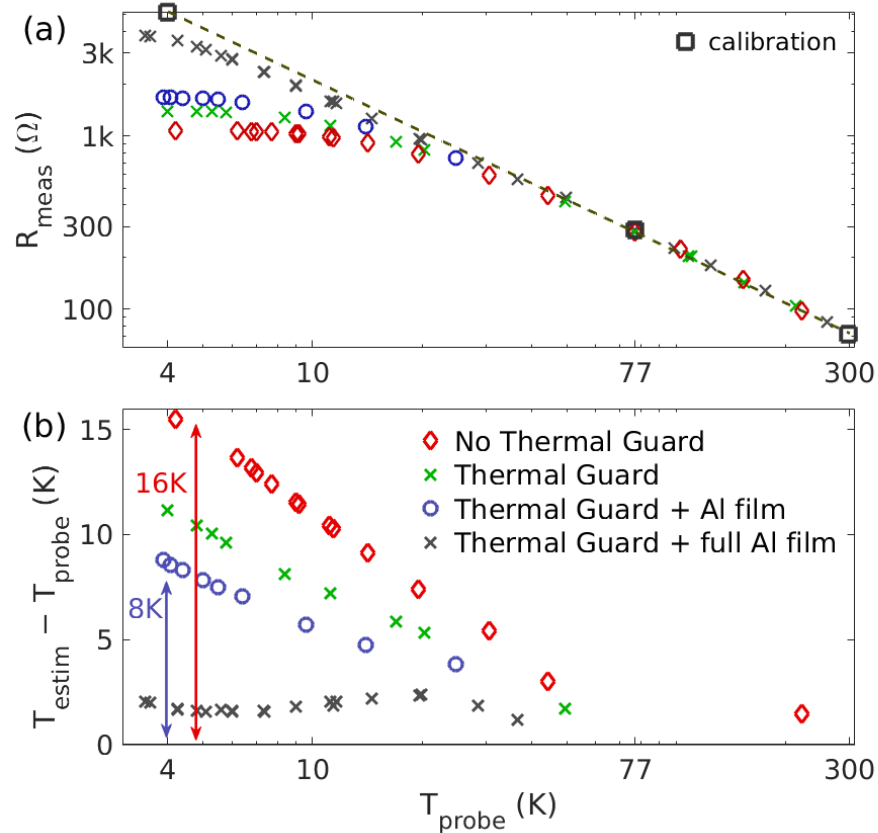


FIGURE I.6 – Comparaison des performances thermiques du cryostat. La figure (a) donne les valeurs de la résistance, R_{meas} , du capteur CX-1050 en fonction de la consigne T_{probe} pour différentes configurations : (rouge) sans garde thermique; (vert) avec garde thermique; (bleu) avec en plus de la garde thermique, un écran d'aluminium ajouré; (noir) avec garde thermique et écran intégral en aluminium. La figure (b) donne l'évolution de l'écart $\Delta T = T_{\text{estim}} - T_{\text{probe}}$ entre, d'une part, la température estimée selon la droite d'étalonnage exponentielle (en tirets noirs sur la figure (a)) et, d'autre part, la température de consigne T_{probe} .



Bibliographie

- [1] E. A. Cornell and C. E. Wieman, “Nobel Lecture : Bose-Einstein condensation in a dilute gas, the first 70 years and some recent experiments,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 74, pp. 875–893, 2002. [(document)]
- [2] W. Ketterle, “Nobel lecture : When atoms behave as waves : Bose-Einstein condensation and the atom laser,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 74, pp. 1131–1151, 2002. [(document)]
- [3] L. V. Keldysh and A. N. Kozlov, “Collective Properties of Large-radius Excitons,” *ZhETF Pis ma Redaktsiiu*, vol. 5, pp. 238–, Apr. 1967. [(document)]
- [4] L. V. Butov, “Excitonic devices,” *Superlattices and Microstructures*, vol. 108, pp. 2–26, 2017. [(document)]
- [5] J. Dalibard, “Cohérence et superfluidité dans les gaz atomiques,” 2016. disponible à www.college-de-france.fr/site/jean-dalibard/course-2015-2016. [1.1.1, 1.1, 1.1.4]
- [6] J. Dalibard, “Fluides quantiques de basse dimension et transition de kosterlitz-thouless,” 2017. disponible à www.college-de-france.fr/site/jean-dalibard/course-2015-2016. [1.1.2, 1.1.4]
- [7] L. Butov, C. Lai, A. Ivanov, A. Gossard, and D. Chemla, “Towards bose–einstein condensation of excitons in potential traps,” *Nature*, vol. 417, no. 6884, pp. 47–52, 2002. [1.1.3]
- [8] C. Abbas, *Optical spectroscopy of indirect excitons and electron spins in semiconductor nanostructures*. PhD thesis, Université Montpellier, 2019. [1.2, 1.3.3]
- [9] M. Combescot and S.-Y. Shiau, *Excitons and Cooper Pairs : Two Composite Bosons in Many-Body Physics*. Oxford Graduate Texts, 2015. [1.1.4, 1.1.4, 1.3]
- [10] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, and D. A. B. Miller, “Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures,” *Phys. Rev. B*, vol. 32, pp. 6601–6609, Nov 1985. [1.1.4]
- [11] S. Schmitt-Rink, D. Chemla, and D. Miller, “Linear and nonlinear optical properties of semiconductor quantum wells,” *Advances in Physics*, vol. 38, no. 2, pp. 89–188, 1989. [1.1.4]



- [12] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud, “Direct observation of the mott transition in an optically excited semiconductor quantum well,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, p. 147403, Apr 2005. [1.1.5]
- [13] G. Rossbach, J. Levrat, G. Jacopin, M. Shahmohammadi, J.-F. Carlin, J.-D. Ganière, R. Butté, B. Deveaud, and N. Grandjean, “High-temperature mott transition in wide-band-gap semiconductor quantum wells,” *Phys. Rev. B*, vol. 90, p. 201308, Nov 2014. [1.1.5, 1.3.2, (i)]
- [14] V. V. Nikolaev and M. E. Portnoi, “Theory of excitonic mott transition in double quantum wells,” *physica status solidi (c)*, vol. 1, no. 6, pp. 1357–1362, 2004. [1.1.5, 1.3.3, 3.6.4]
- [15] J. Mock, G. Thomas, and M. Combescot, “Entropy ionization of an exciton gas,” *Solid State Communications*, vol. 25, no. 5, pp. 279 – 282, 1978. [1.1.5]
- [16] R. Zimmermann, *Many-particle theory of highly excited semiconductors*, vol. 18. Vch Pub, 1988. [1.2, 5.1, 5.4]
- [17] I. Bloch, J. Dalibard, and W. Zwerger, “Many-body physics with ultracold gases,” *Reviews of modern physics*, vol. 80, no. 3, p. 885, 2008. [1.2]
- [18] L. Esaki and R. Tsu, “Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors,” *IBM Journal of Research and Development*, vol. 14, no. 1, pp. 61–65, 1970. [1.2]
- [19] L. Keldysh and A. Kozlov, “Collective properties of excitons in semiconductors,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 27, no. 3, p. 521, 1968. [1.2, 1.2.1]
- [20] A. Cho and J. Arthur, “Bmolecular beam epitaxy,[progr,” *Solid State Chem*, vol. 10, pp. 157–191, 1975. [1.2]
- [21] M. Droz and M. Combescot, “Phase diagram for electron-hole droplets,” *Physics Letters A*, vol. 51, no. 8, pp. 473–474, 1975. [1.2.1]
- [22] V. Vavilov, V. Zayats, and V. Murzin, “Resonant absorption, scattering, and emission of electron-hole drops in germanium in the region of their plasma frequency,” *ZhETF Pisma Redaktsiiu*, vol. 10, p. 304, 1969. [1.2.1]
- [23] N. N. Sibeldin, “Electron–hole liquid in semiconductors and low-dimensional structures,” *Physics-Uspekh*, vol. 60, no. 11, p. 1147, 2017. [1.2.1]
- [24] M. Stern, V. Umansky, and I. Bar-Joseph, “Exciton liquid in coupled quantum wells,” *Science*, vol. 343, no. 6166, pp. 55–57, 2014. [1.2.1, 1.3.3, 7, 4.4.3.1, 4.4.3.3, 7]
- [25] A. Rustagi and A. F. Kemper, “Theoretical phase diagram for the room-temperature electron–hole liquid in photoexcited quasi-two-dimensional monolayer mos2,” *Nano letters*, vol. 18, no. 1, pp. 455–459, 2018. [1.2.1]



-
- [26] S. Berciaud, “Quasi-two-dimensional electron–hole droplets,” *Nature Photonics*, vol. 13, no. 4, pp. 225–226, 2019. [1.2.1]
- [27] T. B. Arp, D. Pleskot, V. Aji, and N. M. Gabor, “Electron–hole liquid in a van der waals heterostructure photocell at room temperature,” *Nature Photonics*, vol. 13, no. 4, pp. 245–250, 2019. [1.2.1, 1.4]
- [28] L. V. Keldysh, “Electron-hole drops in semiconductors,” *Soviet Physics Uspekhi*, vol. 13, no. 2, p. 292, 1970. [1.2.1]
- [29] D. W. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz, “Evidence for bose-einstein condensation of excitons in Cu_2O ,” *Phys. Rev. B*, vol. 41, pp. 11171–11184, Jun 1990. [1.2.2]
- [30] J. L. Lin and J. P. Wolfe, “Bose-einstein condensation of paraexcitons in stressed Cu_2O ,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 71, pp. 1222–1225, Aug 1993. [1.2.2]
- [31] K. E. O’Hara, L. Ó Súilleabháin, and J. P. Wolfe, “Strong nonradiative recombination of excitons in Cu_2O and its impact on bose-einstein statistics,” *Phys. Rev. B*, vol. 60, pp. 10565–10568, Oct 1999. [1.2.2]
- [32] D. W. Snoke, J. L. Lin, and J. P. Wolfe, “Coexistence of bose-einstein paraexcitons with maxwell-boltzmann orthoexcitons in Cu_2O ,” *Phys. Rev. B*, vol. 43, pp. 1226–1228, Jan 1991. [1.2.2]
- [33] T. Kazimierczuk, D. Fröhlich, S. Scheel, H. Stolz, and M. Bayer, “Giant rydberg excitons in the copper oxide Cu_2O ,” *Nature*, vol. 514, no. 7522, pp. 343–347, 2014. [1.2.2, 1.5]
- [34] S. Zielińska-Raczyńska, D. A. Fishman, C. Faugeras, M. M. P. Potemski, P. H. M. van Loosdrecht, K. Karpiński, G. Czajkowski, and D. Ziemkiewicz, “Magnetoexcitons in Cu_2O : theoretical model from weak to high magnetic fields,” *New Journal of Physics*, vol. 21, p. 103012, oct 2019. [1.2.2]
- [35] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. André, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and L. S. Dang, “Bose-einstein condensation of exciton polaritons,” *Nature*, vol. 443, no. 7110, pp. 409–414, 2006. [1.2.3]
- [36] P. M. Walker, L. Tinkler, D. V. Skryabin, A. Yulin, B. Royall, I. Farrer, D. A. Ritchie, M. S. Skolnick, and D. N. Krizhanovskii, “Ultra-low-power hybrid light-matter solitons,” *Nature Communications*, vol. 6, no. 1, p. 8317, 2015. [1.2.3]
- [37] F. Li, L. Orosz, O. Kamoun, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, T. Guillet, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, M. Mexis, M. Mihailovic, G. Patriarche, F. Réveret, D. Solnyshkov, J. Zuniga-Perez, and G. Malpuech, “From excitonic to photonic polariton condensate in a zno-based microcavity,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 196406, May 2013. [1.2.3]
-



- [38] T. Guillet and C. Brimont, “Polariton condensates at room temperature,” *Comptes Rendus Physique*, vol. 17, p. 946–956, Oct 2016. [1.2.3]
- [39] K. Sivalertporn, L. Mouchliadis, A. Ivanov, R. Philp, and E. A. Muljarov, “Direct and indirect excitons in semiconductor coupled quantum wells in an applied electric field,” *Physical Review B*, vol. 85, no. 4, p. 045207, 2012. [1.3.1]
- [40] Y. E. Lozovik and V. Yudson, “A new mechanism for superconductivity : pairing between spatially separated electrons and holes,” *Zh. Eksp. i Teor. Fiz*, vol. 71, pp. 738–753, 1976. [1.3.1]
- [41] F. Fedichkin, T. Guillet, P. Valvin, B. Jouault, C. Brimont, T. Bretagnon, L. Lachourcade, N. Grandjean, P. Lefebvre, and M. Vladimirova, “Room-Temperature Transport of Indirect Excitons in (Al,Ga)N/GaN Quantum Wells,” *Phys. Rev. Applied*, vol. 6, p. 014011, July 2016. [1.3.1, 1.3.3, 1.3.3, 3.7, 4.2.1, 4.2.1, 4.3.1, 4.4.2, 4.4.3.3, 5.2]
- [42] F. Fedichkin, P. Andreakou, B. Jouault, M. Vladimirova, T. Guillet, C. Brimont, P. Valvin, T. Bretagnon, A. Dussaigne, N. Grandjean, and P. Lefebvre, “Transport of dipolar excitons in (Al,Ga)N/GaN quantum wells,” *Phys. Rev. B*, vol. 91, p. 205424, may 2015. [1.3.1, 1.3.3, 3.7, 3.7, 3.7, 4.2.1, 4.4.3.3, 5.2]
- [43] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud, “Direct observation of the mott transition in an optically excited semiconductor quantum well,” *Physical review letters*, vol. 94, no. 14, p. 147403, 2005. [1.3.2, 1.7, 5.1, 5.4]
- [44] G. Rossbach, *High-Density Excitonic Effects in GaN : Mott-Transition and Polariton Lasing*. PhD thesis, PhD Thesis : École polytechnique federale de Lausanne, Lausanne, 2014.-192 p, 2014. [1.3.2, 1.7, 2.1, 2.12]
- [45] J. Slotboom and H. De Graaff, “Measurements of bandgap narrowing in si bipolar transistors,” *Solid-State Electronics*, vol. 19, no. 10, pp. 857–862, 1976. [5]
- [46] D. Kleinman and R. Miller, “Band-gap renormalization in semiconductor quantum wells containing carriers,” *Physical Review B*, vol. 32, no. 4, p. 2266, 1985. [1.3.2]
- [47] S. Schmitt-Rink, C. Ell, S. W. Koch, H. Schmidt, and H. Haug, “Subband-level renormalization and absorptive optical bistability in semiconductor multiple quantum well structures,” *Solid state communications*, vol. 52, no. 2, pp. 123–125, 1984. [1.3.2]
- [48] H. Schweizer, A. Forchel, A. Hangleiter, S. Schmitt-Rink, J. Löwenau, and H. Haug, “Ionization of the direct-gap exciton in photoexcited germanium,” *Physical Review Letters*, vol. 51, no. 8, p. 698, 1983. [1.3.2]
- [49] S. D. Sarma, R. Jalabert, and S.-R. E. Yang, “Band-gap renormalization in semiconductor quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 41, no. 12, p. 8288, 1990. [1.3.2]



-
- [50] A. Hangleiter, Z. Jin, M. Gerhard, D. Kalincev, T. Langer, H. Bremers, U. Rossow, M. Koch, M. Bonn, and D. Turchinovich, “Efficient formation of excitons in a dense electron-hole plasma at room temperature,” *Physical Review B*, vol. 92, no. 24, p. 241305, 2015. [(i), 5.4]
- [51] M. Stern, V. Garmider, V. Umansky, and I. Bar-Joseph, “Mott transition of excitons in coupled quantum wells,” *Physical review letters*, vol. 100, no. 25, p. 256402, 2008. [1.3.2]
- [52] B. Laikhtman and R. Rapaport, “Exciton correlations in coupled quantum wells and their luminescence blue shift,” *Phys. Rev. B*, vol. 80, p. 195313, Nov 2009. [1.3.3, 1.8, 3.5.1, 3.19, 5.2]
- [53] B. Laikhtman and R. Rapaport, “Correlations in a two-dimensional bose gas with long-range interaction,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 87, p. 27010, jul 2009. [1.3.3, 1.8, 3.5.1, 5.2]
- [54] V. Nikolaev and M. Portnoi, “Theory of the excitonic mott transition in quasi-two-dimensional systems,” *Superlattices and Microstructures*, vol. 43, no. 5-6, pp. 460–464, 2008. [1.3.3]
- [55] R. Suris, “Gas–crystal phase transition in a 2d dipolar exciton system,” *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, vol. 122, no. 3, pp. 602–607, 2016. [1.3.3]
- [56] V. Timofeev, A. Larionov, M. Grassi-Alessi, M. Capizzi, and J. M. Hvam, “Phase diagram of a two-dimensional liquid in GaAs/Al_xGa_{1-x}As biased double quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 61, no. 12, p. 8420, 2000. [1.3.3]
- [57] A. A. High, J. R. Leonard, A. T. Hammack, M. M. Fogler, L. V. Butov, A. V. Kavokin, K. L. Campman, and A. C. Gossard, “Spontaneous coherence in a cold exciton gas,” *Nature*, vol. 483, no. 7391, pp. 584–588, 2012. [1.3.3, 1.3.3]
- [58] A. High, J. Leonard, M. Remeika, L. Butov, M. Hanson, and A. Gossard, “Condensation of excitons in a trap,” *Nano letters*, vol. 12, no. 5, pp. 2605–2609, 2012. [1.3.3]
- [59] G. Schinner, J. Repp, E. Schubert, A. Rai, D. Reuter, A. Wieck, A. Govorov, A. Holleitner, and J. Kotthaus, “Many-body correlations of electrostatically trapped dipolar excitons,” *Physical Review B*, vol. 87, no. 20, p. 205302, 2013. [1.3.3, 4.4.3.3, 7]
- [60] G. J. Schinner, J. Repp, E. Schubert, A. K. Rai, D. Reuter, A. D. Wieck, A. O. Govorov, A. W. Holleitner, and J. P. Kotthaus, “Confinement and Interaction of Single Indirect Excitons in a Voltage-Controlled Trap Formed Inside Double InGaAs Quantum Wells,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 127403, Mar 2013. [1.3.3, 4.4.3.3, 7]
-



- [61] M. Alloing, M. Beian, M. Lewenstein, D. Fuster, Y. González, L. González, R. Combescot, M. Combescot, and F. Dubin, “Evidence for a bose-einstein condensate of excitons,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 107, p. 10012, jul 2014. [1.3.3]
- [62] M. Alloing, A. Lemaitre, and F. Dubin, “Quantum signature blurred by disorder in indirect exciton gases,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 93, no. 1, p. 17007, 2011. [1.3.3]
- [63] R. Anankine, *Cohérence quantique et superfluidité d’un gaz d’excitons piégés*. PhD thesis, Paris 6, 2017. [1.3.3, 6.2.4]
- [64] R. Anankine, M. Beian, S. Dang, M. Alloing, E. Cambril, K. Merghem, C. G. Carbonell, A. Lemaître, and F. Dubin, “Quantized vortices and four-component superfluidity of semiconductor excitons,” *Physical review letters*, vol. 118, no. 12, p. 127402, 2017. [1.3.3]
- [65] R. Anankine, S. Dang, M. Beian, E. Cambril, C. G. Carbonell, A. Lemaitre, and F. Dubin, “Temporal coherence of spatially indirect excitons across bose–einstein condensation : The role of free carriers,” *New Journal of Physics*, vol. 20, no. 7, p. 073049, 2018. [1.3.3]
- [66] Y. Shilo, K. Cohen, B. Laikhtman, K. West, L. Pfeiffer, and R. Rapaport, “Particle correlations and evidence for dark state condensation in a cold dipolar exciton fluid,” *Nature Communications*, vol. 4, Aug. 2013. [1.3.3]
- [67] M. Beian, M. Alloing, E. Cambril, C. G. Carbonell, J. Osmond, A. Lemaître, and F. Dubin, “Long-lived spin coherence of indirect excitons in GaAs coupled quantum wells,” *EPL*, vol. 110, pp. 27001–5, Apr. 2015. [1.3.3]
- [68] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, and R. Combescot, “Bose-einstein condensation in semiconductors : The key role of dark excitons,” *Physical review letters*, vol. 99, no. 17, p. 176403, 2007. [1.3.3, 2.1]
- [69] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, “Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems,” *Journal of Physics C : Solid State Physics*, vol. 6, no. 7, p. 1181, 1973. [1.3.3]
- [70] S. Dang, *Exploring the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless transition with dipolar excitons*. PhD thesis, Sorbonne Université, 2018. [1.3.3, 2.1, 3, 4.5, 6.24, 6.2.4]
- [71] C. Abbas, F. Chiaruttini, S. Cronenberger, D. Scalbert, F. Dubin, A. Lemaître, and M. Vladimirova, “Spin relaxation of indirect excitons in asymmetric coupled quantum wells,” *Superlattices and Microstructures*, vol. 122, pp. 643–649, 2018. [1.3.3]



-
- [72] A. Nalitov, M. Vladimirova, A. Kavokin, L. Butov, and N. Gippius, “Nonlinear optical probe of indirect excitons,” *Physical Review B*, vol. 89, no. 15, p. 155309, 2014. [1.3.3]
- [73] F. Fedichkin, *Excitons indirects dans les puits quantiques de la grande bande interdite*. PhD thesis, Montpellier, 2016. [1.3.3, 3.7, 4.2.1, 4.5]
- [74] X. Vögele, D. Schuh, W. Wegscheider, J. Kotthaus, and A. Holleitner, “Density enhanced diffusion of dipolar excitons within a one-dimensional channel,” *Physical review letters*, vol. 103, no. 12, p. 126402, 2009. [1.3.3]
- [75] C. Dorow, M. Hasling, E. Calman, L. Butov, J. Wilkes, K. Campman, and A. Gossard, “Spatially resolved and time-resolved imaging of transport of indirect excitons in high magnetic fields,” *Physical Review B*, vol. 95, no. 23, p. 235308, 2017. [1.3.3, 2.4, 5.2, 5.2, 5.6]
- [76] I. Singer, “Solid lubrication processes,” in *Fundamentals of Friction : Macroscopic and Microscopic Processes*, pp. 237–261, Springer, 1992. [1.4]
- [77] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. Booth, V. Khotkevich, S. Morozov, and A. K. Geim, “Two-dimensional atomic crystals,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 102, no. 30, pp. 10451–10453, 2005. [1.4]
- [78] A. K. Geim and I. V. Grigorieva, “Van der waals heterostructures,” *Nature*, vol. 499, no. 7459, pp. 419–425, 2013. [1.10]
- [79] X. Marie, B. Urbaszek, and T. Amand, “Les dichalcogénures de métaux de transition, nouveaux matériaux bidimensionnels,” *Reflets de la physique*, no. 50, pp. 21–25, 2016. [1.11]
- [80] F. Cadiz, E. Courtade, C. Robert, G. Wang, Y. Shen, H. Cai, T. Taniguchi, K. Watanabe, H. Carrere, D. Lagarde, *et al.*, “Excitonic linewidth approaching the homogeneous limit in mos 2-based van der waals heterostructures,” *Physical Review X*, vol. 7, no. 2, p. 021026, 2017. [1.4]
- [81] L. Keldysh, “Coulomb interaction in thin semiconductor and semimetal films,” *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, vol. 29, p. 658, 1979. [1.4]
- [82] P. Cudazzo, I. V. Tokatly, and A. Rubio, “Dielectric screening in two-dimensional insulators : Implications for excitonic and impurity states in graphene,” *Physical Review B*, vol. 84, no. 8, p. 085406, 2011. [1.4]
- [83] T. C. Berkelbach, M. S. Hybertsen, and D. R. Reichman, “Theory of neutral and charged excitons in monolayer transition metal dichalcogenides,” *Physical Review B*, vol. 88, no. 4, p. 045318, 2013. [1.4]
-



- [84] E. Calman, M. Fogler, L. Butov, S. Hu, A. Mishchenko, and A. Geim, “Indirect excitons in van der waals heterostructures at room temperature,” *Nature communications*, vol. 9, no. 1, pp. 1–5, 2018. [1.4, 1.12]
- [85] A. Janotti and C. G. Van de Walle, “Fundamentals of zinc oxide as a semiconductor,” *Reports on progress in physics*, vol. 72, no. 12, p. 126501, 2009. [2.1]
- [86] I. Institute, “Brillouin zone of the hexagonal lattice.” Available at <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaNs>, Ioffe Institute. [2.3]
- [87] X. Zhang, T. Taliercio, S. Kolliakos, and P. Lefebvre, “Influence of electron-phonon interaction on the optical properties of iii nitride semiconductors,” *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 13, no. 32, p. 7053, 2001. [2.1, 2.1]
- [88] B. Gil, “Physics of wurtzite nitrides and oxides,” *Physics of Wurtzite Nitrides and Oxides : Passport to Devices, Springer Series in Materials Science, Volume 197. ISBN 978-3-319-06804-6. Springer International Publishing Switzerland, 2014, 2014.* [2.4, 2.6]
- [89] S. Chichibu, A. Shikanai, T. Azuhata, T. Sota, A. Kuramata, K. Horino, and S. Nakamura, “Effects of biaxial strain on exciton resonance energies of hexagonal GaN heteroepitaxial layers,” *Applied physics letters*, vol. 68, no. 26, pp. 3766–3768, 1996. [2.4]
- [90] B. Gil, *Group III nitride semiconductor compounds : physics and applications*. Clarendon Press, 1998. [2.5]
- [91] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, “Band parameters for iii–v compound semiconductors and their alloys,” *Journal of Applied Physics*, vol. 89, no. 11, pp. 5815–5875, 2001. [5, 3.1.1, 3.1.1, 3.6]
- [92] B. V. Rosencher E., *Optoélectronique*, vol. 1. Paris, Dunod, 2002. [2.1, 2.2, 3.4, 3.1.2, 3.4, 3.4.1.1, 3.4.1.7, A, C.1, C.3]
- [93] G. La Rocca, “Wannier–mott excitons in semiconductors,” *Thin films and nanostructures*, vol. 31, pp. 97–128, 2003. [2.1]
- [94] M. Shinada and S. Sugano, “Interband optical transitions in extremely anisotropic semiconductors. i. bound and unbound exciton absorption,” *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 21, no. 10, pp. 1936–1946, 1966. [2.1]
- [95] F. Bassani and G. Parravicini, “Electronic states and optical transitions in solids (pergamon press, oxford, 1975).,” [2.1]
- [96] C. Tanguy, “Optical dispersion by wannier excitons,” *Physical review letters*, vol. 75, no. 22, p. 4090, 1995. [2.7]
- [97] C. Tanguy, P. Lefebvre, H. Mathieu, and R. Elliott, “Analytical model for the refractive index in quantum wells derived from the complex dielectric constant of



- wannier excitons in noninteger dimensions,” *Journal of applied physics*, vol. 82, no. 2, pp. 798–802, 1997. [2.7]
- [98] H. Fröhlich, “Electrons in lattice fields,” *Advances in Physics*, vol. 3, no. 11, pp. 325–361, 1954. [2.1]
- [99] N. Grandjean, B. Damilano, S. Dalmaso, M. Leroux, M. Laügt, and J. Massies, “Built-in electric-field effects in wurtzite AlGa_N/Ga_N quantum wells,” *Journal of applied physics*, vol. 86, no. 7, pp. 3714–3720, 1999. [2.9]
- [100] R. Zimmermann, F. Grosse, and E. Runge, “Excitons in semiconductor nanostructures with disorder,” *Pure and applied chemistry*, vol. 69, no. 6, pp. 1179–1186, 1997. [2.3, 2.4]
- [101] R. Zimmermann and E. Runge, “Exciton lineshape in semiconductor quantum structures with interface roughness,” *Journal of luminescence*, vol. 60, pp. 320–323, 1994. [2.3, 2.4]
- [102] Y. P. Varshni, “Temperature dependence of the energy gap in semiconductors,” *physica*, vol. 34, no. 1, pp. 149–154, 1967. [14]
- [103] M. J. M. Ali, *Optical characterisation of non polar nanostructures quantum wells ZnO/(Zn, Mg) O*. PhD thesis, 2018. [15]
- [104] M. Gallart, *Dynamique de recombinaison excitonique dans les puits quantiques GaN/AlGa_N*. PhD thesis, Montpellier 2, 2001. [2.3]
- [105] R. Martin, P. Middleton, K. O’donnell, and W. Van der Stricht, “Exciton localization and the Stokes’ shift in InGa_N epilayers,” *Applied physics letters*, vol. 74, no. 2, pp. 263–265, 1999. [2.3]
- [106] D. Miller, D. Chemla, and S. Schmitt-Rink, “Relation between electroabsorption in bulk semiconductors and in quantum wells : The quantum-confined franz-keldysh effect,” *Physical Review B*, vol. 33, no. 10, p. 6976, 1986. [2.3]
- [107] L. Shen, S. Heikman, B. Moran, R. Coffie, N.-Q. Zhang, D. Buttari, I. Smorchkova, S. Keller, S. DenBaars, and U. Mishra, “AlGa_N/Al_N/Ga_N high-power microwave HEMT,” *IEEE Electron Device Letters*, vol. 22, no. 10, pp. 457–459, 2001. [2.3]
- [108] M. Gallart, P. Lefebvre, A. Morel, T. Taliercio, B. Gil, J. Allegre, H. Mathieu, B. Damilano, N. Grandjean, and J. Massies, “Reduction of carrier in-plane mobility in group-iii nitride based quantum wells : The role of internal electric fields,” *physica status solidi (a)*, vol. 183, no. 1, pp. 61–66, 2001. [2.3, 19]
- [109] F. Natali, D. Byrne, M. Leroux, B. Damilano, F. Semond, A. Le Louarn, S. Vezian, N. Grandjean, and J. Massies, “Inhomogeneous broadening of al_xga_{1-x}n/ ga_n quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 71, no. 7, p. 075311, 2005. [2.3, 2.12, 4.4.2]



- [110] Y. E. Lozovik, I. V. Ovchinnikov, S. Y. Volkov, L. V. Butov, and D. S. Chemla, “Quasi-two-dimensional excitons in finite magnetic fields,” *Phys. Rev. B*, vol. 65, p. 235304, May 2002. [2.4, 5.2]
- [111] M. Goryca, J. Li, A. V. Stier, T. Taniguchi, K. Watanabe, E. Courtade, S. Shree, C. Robert, B. Urbaszek, X. Marie, *et al.*, “Revealing exciton masses and dielectric properties of monolayer semiconductors with high magnetic fields,” *Nature communications*, vol. 10, no. 1, pp. 1–12, 2019. [2.4, 2.13]
- [112] A. V. Stier, K. M. McCreary, B. T. Jonker, J. Kono, and S. A. Crooker, “Exciton diamagnetic shifts and valley zeeman effects in monolayer ws 2 and mos 2 to 65 tesla,” *Nature communications*, vol. 7, no. 1, pp. 1–8, 2016. [2.4]
- [113] S. Tarucha, H. Okamoto, Y. Iwasa, and N. Miura, “Exciton binding energy in GaAs quantum wells deduced from magneto-optical absorption measurement,” *Solid state communications*, vol. 52, no. 9, pp. 815–819, 1984. [2.4]
- [114] M. Grochol, F. Grosse, and R. Zimmermann, “Exciton wave function properties probed by diamagnetic shift in disordered quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 71, no. 12, p. 125339, 2005. [2.4]
- [115] M. Grochol, F. Grosse, and R. Zimmermann, “Exciton diamagnetic shift in realistic quantum wells,” *physica status solidi c*, vol. 3, no. 10, pp. 3492–3495, 2006. [2.4]
- [116] M. Erdmann, C. Ropers, M. Wenderoth, R. G. Ulbrich, S. Malzer, and G. H. Döhler, “Diamagnetic shift of disorder-localized excitons in narrow GaAs/AlGaAs quantum wells,” *Phys. Rev. B*, vol. 74, p. 125412, Sep 2006. [2.4]
- [117] J. Wilkes and E. A. Muljarov, “Exciton effective mass enhancement in coupled quantum wells in electric and magnetic fields,” *New Journal of Physics*, vol. 18, no. 2, p. 023032, 2016. [2.4, 5.2]
- [118] Y. Kuznetsova, C. Dorow, E. Calman, L. Butov, J. Wilkes, E. A. Muljarov, K. Campman, and A. Gossard, “Transport of indirect excitons in high magnetic fields,” *Physical Review B*, vol. 95, no. 12, p. 125304, 2017. [2.4, 5.2, 5.2, 5.6]
- [119] B. Gil, *III-Nitride Semiconductors and their Modern Devices*. Springer Cham Heidelberg New York Dordrecht London, 2014. [3.1.1, 3.3]
- [120] N. Baron, *Optimisation de l'épitaxie sous jets moléculaires d'hétérostructures à base de GaN : application aux transistors à haute mobilité d'électrons sur substrat silicium*. PhD thesis, 2009. [3.1.2, 6.1.3]
- [121] O. Ambacher, J. Smart, J. R. Shealy, N. G. Weimann, K. Chu, M. Murphy, W. J. Schaff, L. F. Eastman, R. Dimitrov, L. Wittmer, M. Stutzmann, W. Rieger, and J. Hilsenbeck, “Two-dimensional electron gases induced by spontaneous and



- piezoelectric polarization charges in N- and Ga-face AlGa_N/Ga_N heterostructures,” *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 6, pp. 3222–3233, 1999. [3.1.2]
- [122] O. Ambacher, B. Foutz, J. Smart, J. R. Shealy, N. G. Weimann, K. Chu, M. Murphy, A. J. Sierakowski, W. J. Schaff, L. F. Eastman, R. Dimitrov, A. Mitchell, and M. Stutzmann, “Two dimensional electron gases induced by spontaneous and piezoelectric polarization in undoped and doped AlGa_N/Ga_N heterostructures,” *Journal of Applied Physics*, vol. 87, no. 1, pp. 334–344, 2000. [3.1.2]
- [123] N. Thierry-Jebali, *Caractérisations et modélisations physiques de contacts entre phases métalliques et Nitrure de Gallium semi-conducteur*. PhD thesis, Université Claude Bernard, Lyon 1, 2011. sous la direction de Christian Brylinski. [3.1.2, 3.1.3, 6.1, 6.1.2, 6.1.2]
- [124] J. Bardeen, “Surface states and rectification at a metal semi-conductor contact,” *Phys. Rev.*, vol. 71, pp. 717–727, May 1947. [3.1.2]
- [125] A. C. Schmitz, A. T. Ping, M. A. Khan, Q. Chen, J. W. Yang, and I. Adesida, “Schottky barrier properties of various metals on n-type Ga_N,” *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 11, pp. 1464–1467, Oct. 1996. [3.1.3]
- [126] K. A. Rickert, A. B. Ellis, J. K. Kim, J.-L. Lee, F. J. Himpsel, F. Dwikusuma, and T. F. Kuech, “X-ray photoemission determination of the Schottky barrier height of metal contacts to n-Ga_N and p-Ga_N,” *J. Appl. Phys.*, vol. 92, pp. 6671–6678, Nov. 2002. [3.1.3]
- [127] E. Deleporte, J. Berroir, G. Bastard, C. Delalande, J. Hong, and L. Chang, “Magnetic field-induced type i -> type ii transition in a semimagnetic cdtecd0.93mn0.07te superlattice,” *Superlattices and Microstructures*, vol. 8, no. 2, pp. 171 – 174, 1990. [3.3]
- [128] A. Bellabchara, *Développement d’un calcul numérique flexible des excitons dans tout type d’hétérostructure semiconductrice*. PhD thesis, Université de Montpellier 2, 1997. sous la direction de Henry Mathieu. [3.3]
- [129] P. Bigenwald, P. Lefebvre, T. Bretagnon, and B. GilBigenwald, “Confined Excitons in Ga_N–AlGa_N Quantum Wells,” *physica status solidi (b)*, vol. 216, no. 1, pp. 371–374, 1999. [3.3, 3.3.3]
- [130] D. Dugdale, S. Brand, and R. Abram, “Direct calculation of k.p parameters for wurtzite Al_N, Ga_N, and In_N,” *Physical Review B*, vol. 61, no. 19, p. 12933, 2000. [3.4.1.3]
- [131] H. Frisch and J. Lebowitz, *The Equilibrium Theory of Classical Fluids*, vol. 1. New York : W.A. Benjamin, Inc., 1964. [3.5.1]



- [132] A. L. Ivanov, E. A. Muljarov, L. Mouchliadis, and R. Zimmermann, “Comment on “photoluminescence ring formation in coupled quantum wells : Excitonic versus ambipolar diffusion”,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, p. 179701, Apr 2010. [3.5.2]
- [133] K. H. Kingdon and I. Langmuir, “The removal of thorium from the surface of a thoriated tungsten filament by positive ion bombardment,” *Phys. Rev.*, vol. 22, pp. 148–160, Aug 1923. [3.6.1]
- [134] M. N. S. D.Sc., “Liii. ionization in the solar chromosphere,” *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, vol. 40, no. 238, pp. 472–488, 1920. [3.6.1]
- [135] J. Collet and T. Amand, “Electron-hole interaction in the presence of excitons,” *Solid state communications*, vol. 52, no. 1, pp. 53–56, 1984. [3]
- [136] C. R. Smith, “Bound states in a debye-hückel potential,” *Phys. Rev.*, vol. 134, pp. A1235–A1237, Jun 1964. [3.6.3]
- [137] D. W. Snoke and J. D. Crawford, “Hysteresis in the mott transition between plasma and insulating gas,” *Phys. Rev. E*, vol. 52, pp. 5796–5799, Dec 1995. [3.6.3, 3.6.3, D]
- [138] D. Snoke, “Predicting the ionization threshold for carriers in excited semiconductors,” *Solid State Communications*, vol. 146, no. 1, pp. 73 – 77, 2008. [3.6.3, 3.6.4]
- [139] W. Liu, R. Butté, A. Dussaigne, N. Grandjean, B. Deveaud, and G. Jacopin, “Carrier-density-dependent recombination dynamics of excitons and electron-hole plasma in *m*-plane InGaN/GaN quantum wells,” *Phys. Rev. B*, vol. 94, p. 195411, Nov 2016. [3.6.3, 4.4.3.3, 5.5]
- [140] S. A. Moskalenko and D. W. Snoke, *Bose-Einstein Condensation of Excitons and Biexcitons : And Coherent Nonlinear Optics with Excitons*. Cambridge University Press, 2000. [3.6.4]
- [141] A. L. Ivanov, “Quantum diffusion of dipole-oriented indirect excitons in coupled quantum wells,” *Europhys. Letters*, vol. 59, pp. 586–591, aug 2002. [3.7, 4.4.3.3]
- [142] R. Rapaport, G. Chen, and S. H. Simon, “Nonlinear dynamics of a dense two-dimensional dipolar exciton gas,” *Phys. Rev. B*, vol. 73, p. 033319, Jan 2006. [3.7, 3.7, 4.4.2]
- [143] F. Chiaruttini, T. Guillet, C. Brimont, B. Jouault, P. Lefebvre, J. Vives, S. Chenot, Y. Cordier, B. Damilano, and M. Vladimirova, “Trapping dipolar exciton fluids in GaN/(AlGa)N nanostructures,” *Nano letters*, vol. 19, no. 8, pp. 4911–4918, 2019. [4, 4.9, 4.3.1, H]



-
- [144] P. Lefebvre, S. Kalliakos, T. Bretagnon, P. Valvin, T. Taliercio, B. Gil, N. Grandjean, and J. Massies, “Observation and modeling of the time-dependent descreening of internal electric field in a wurtzite GaN/Al_{0.15}Ga_{0.85}N quantum well after high photoexcitation,” *Phys. Rev. B*, vol. 69, p. 035307, jan 2004. [4.2.1, 4.4.3.3]
- [145] X. B. Zhang, T. Taliercio, S. Kalliakos, and P. Lefebvre, “Influence of electron-phonon interaction on the optical properties of III nitride semiconductors,” *J. Phys. : Condens. Matter*, vol. 13, pp. 7053–7074, aug 2001. [4.3.1]
- [146] L. V. Butov, A. Imamoglu, K. L. Campman, and A. C. Gossard, “Coulomb effects in spatially separated electron and hole layers in coupled quantum wells,” *J. Exp. Theor. Phys.*, vol. 92, pp. 260–266, feb 2001. [4.4.3.3]
- [147] Y. Y. Kuznetsova, F. Fedichkin, P. Andreakou, E. V. Calman, L. V. Butov, P. Lefebvre, T. Bretagnon, T. Guillet, M. Vladimirova, C. Morhain, and J. M. Chauveau, “Transport of indirect excitons in ZnO quantum wells,” *Opt. Lett.*, vol. 40, pp. 3667–3670, aug 2015. [4.4.3.3]
- [148] W. Chen, X. Wen, J. Yang, M. Latzel, R. Patterson, S. Huang, S. Shrestha, B. Jia, D. J. Moss, S. Christiansen, and G. Conibeer, “Free charges versus excitons : photoluminescence investigation of InGaN/GaN multiple quantum well nanorods and their planar counterparts,” *Nanoscale*, vol. 10, pp. 5358–5365, mar 2018. [4.4.3.3]
- [149] B. Deveaud, L. Kappei, J. Berney, F. Morier-Genoud, M. Portella-Oberli, J. Szczytko, and C. Piermarocchi, “Excitonic effects in the luminescence of quantum wells,” *Chemical physics*, vol. 318, no. 1-2, pp. 104–117, 2005. [5.1, 5.4]
- [150] G. Kiršanskė, P. Tighineanu, R. S. Daveau, J. Miguel-Sánchez, P. Lodahl, and S. Stobbe, “Observation of the exciton mott transition in the photoluminescence of coupled quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 94, no. 15, p. 155438, 2016. [5.1, 5.4]
- [151] C. Schindler and R. Zimmermann, “Analysis of the exciton-exciton interaction in semiconductor quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 78, no. 4, p. 045313, 2008. [5.2, 5.5]
- [152] Y. E. Lozovik and A. Ruvinskii, “Magnetoexciton absorption in coupled quantum wells,” *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, vol. 85, no. 5, pp. 979–988, 1997. [5.2]
- [153] L. Butov, C. Lai, D. Chemla, Y. E. Lozovik, K. Campman, and A. Gossard, “Observation of magnetically induced effective-mass enhancement of quasi-2d excitons,” *Physical review letters*, vol. 87, no. 21, p. 216804, 2001. [5.2]
-



- [154] P. Arseev and A. Dzyubenko, “Exciton magnetotransport in two-dimensional systems : weak-localization effects,” *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, vol. 87, no. 1, pp. 200–209, 1998. [5.2]
- [155] Keysight, *E4980A Precision LCR Meter, User’s Guide*. Keysight. [6.1.1]
- [156] S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of semiconductor devices*. John wiley & sons, 2006. [6.1.1.1]
- [157] N. F. Mott, “The theory of crystal rectifiers,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, vol. 171, no. 944, pp. 27–38, 1939. [6.1.1.1]
- [158] B. Sharma, *Metal-semiconductor Schottky barrier junctions and their applications*. Springer Science & Business Media, 2013. [6.1.1.1]
- [159] J. Bardeen, “Surface states and rectification at a metal semi-conductor contact,” *Physical Review*, vol. 71, no. 10, p. 717, 1947. [6.1.1.1]
- [160] N. Thierry-Jebali, *Caractérisations et modélisations physiques de contacts entre phases métalliques et Nitrure de Gallium semi-conducteur*. PhD thesis, 2011. [6.1.1.1]
- [161] S. Kurtin, T. McGill, and C. Mead, “Fundamental transition in the electronic nature of solids,” *Physical Review Letters*, vol. 22, no. 26, p. 1433, 1969. [6.1.1.1]
- [162] M. Ranade, F. Tessier, A. Navrotsky, V. Leppert, S. Risbud, F. DiSalvo, and C. Balkas, “Enthalpy of formation of gallium nitride,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 104, no. 17, pp. 4060–4063, 2000. [6.1]
- [163] F. Padovani and R. Stratton, “Field and thermionic-field emission in schottky barriers,” *Solid-State Electronics*, vol. 9, no. 7, pp. 695–707, 1966. [6.1.1.1, 6.1.1.1]
- [164] M. J. Cristea, “Capacitance-voltage profiling techniques for characterization of semiconductor materials and devices,” *arXiv preprint arXiv :1011.3463*, 2010. [6.1.1.3]
- [165] J. Hilibrand and R. Gold, “Determination of the impurity distribution in junction diodes from capacitance-voltage measurements,” *RCA review*, vol. 21, no. 2, pp. 245–252, 1960. [6.1.1.3]
- [166] F. Lu, D. Gong, J. Wang, Q. Wang, H. Sun, and X. Wang, “Capacitance-voltage characteristics of a schottky junction containing sige/si quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 53, no. 8, p. 4623, 1996. [6.1.1.3, 6.1.3]
- [167] V. Zubkov, “Simulation of capacitance-voltage characteristics of heterostructures with quantum wells using a self-consistent solution of the schrödinger and poisson equations,” *Semiconductors*, vol. 40, no. 10, pp. 1204–1208, 2006. [6.1.1.3, 6.1.3]



-
- [168] J. Wang, F. Lu, S. Zhang, B. Zhang, D. Gong, H. Sun, and X. Wang, “Analysis of capacitance-voltage characteristics of $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ quantum-well structures,” *Physical Review B*, vol. 54, no. 11, p. 7979, 1996. [6.1.1.3, 6.1.3]
- [169] K. Kreher, “Capacitance-voltage characteristics of a quantum well within a schottky layer,” *physica status solidi (a)*, vol. 135, no. 2, pp. 597–603, 1993. [6.1.1.3, 6.2, 6.1.3]
- [170] P. Brounkov, T. Benyattou, and G. Guillot, “Simulation of the capacitance–voltage characteristics of a single-quantum-well structure based on the self-consistent solution of the schrödinger and poisson equations,” *Journal of applied physics*, vol. 80, no. 2, pp. 864–871, 1996. [6.1.1.3, 6.1.3]
- [171] W.-D. Ebeling, W. Kraft and D. Kremp, *Theory of Bound States and Ionization Equilibrium in Plasmas and Solids*, vol. 1. Berlin, Akademie-Verlag, 1976. [D]
-



Titre de la thèse en français :

États collectifs et dispositifs basés sur les excitons indirects dans des puits quantiques à grand gap

Résumé de la thèse en français :

Les excitons indirects dipolaires, sont des quasi-particules bosoniques dans les semi-conducteurs, composés d'un électron et d'un trou spatialement séparés mais toujours liés par interaction coulombienne. Leur grande durée de vie radiative et leur capacité à se déplacer sur de grandes distances avant leur recombinaison en font un système unique qui peut être à la fois optiquement actif mais également électriquement contrôlable. Ce système permet l'étude des propriétés fondamentales de la lumière et de la matière, mais aussi le développement de dispositifs excitoniques conceptuellement nouveaux. Les excitons dans les puits quantiques polaires en nitrure de gallium (GaN) peuvent être considérés comme des excitons naturellement indirects, en raison du fort champ électrique intrinsèque existant dans la direction de croissance cristalline. Cette thèse est consacrée à l'étude expérimentale et une étude des excitons indirects dans des hétérostructures GaN/(Al,Ga)N, ainsi que les états collectifs, depuis la conception et la fabrication jusqu'à la spectroscopie optique de leurs états collectifs. Les principaux résultats de ce travail sont (i) la démonstration du confinement spatial dans le plan et du refroidissement des excitons indirects, lorsqu'ils sont piégés dans le potentiel électrostatique créé par des électrodes semi-transparentes de géométries diverses soigneusement conçues et déposées sur la surface de l'échantillon, qui est une condition préalable à l'étude du diagramme de phase complexe de ces bosons dipolaires à basse température ; (ii) la preuve de principe du contrôle électrique des densités et des flux d'excitons indirects dans le plan du puits quantique. Cela ouvre des perspectives intéressantes pour la réalisation de dispositifs excitoniques ; (iii) les premiers points sur le diagramme de phase des bosons dipolaires, fournissant une première mise en évidence non seulement de l'existence d'une phase fortement corrélée résultant des corrélations induites à forte densité (phase de liquide dipolaire) mais aussi la dissociation (transition de Mott) de ces excitons indirects dans les hétérostructures GaN/(Al,Ga)N.

Mots clés en français :

Exciton indirect, États quantiques collectifs, GaN, Dispositif excitonique, Plasma électron-trou, Transport excitonique



Titre de la thèse en anglais :

Collective states and devices based on indirect excitons in wide-bandgap semiconductor quantum wells

Résumé de la thèse en anglais :

Indirect, or dipolar excitons are bosonic quasi-particles in semiconductors composed of spatially separated but still Coulomb-bound electron and hole. They have long lifetime and can travel over large distances before recombination, offering a unique system that can be both optically active and electrically controllable. It is suitable for studies of fundamental properties of light and matter and for the development of conceptually new excitonic devices. Excitons in polar GaN quantum wells can be considered as naturally indirect excitons, because of the strong built-in electric field in the growth direction. This dissertation describes an experimental realization and investigation of indirect excitons engineered in GaN/(Al,Ga)N heterostructures, and the collective states that these can form. The main results of this work are (i) the demonstration of the in-plane confinement and cooling of indirect excitons, when trapped in the electrostatic potential created by semitransparent electrodes of various shapes carefully designed and deposited on the sample surface, this is a prerequisite for studies of the complex phase diagram of these dipolar bosons at low temperatures; (ii) The proof-of-principle for electrical control of the indirect exciton densities and fluxes in the plane of the heterostructure, which opens attractive prospects for realization of excitonic devices; (iii) the first points on the dipolar boson phase diagram, providing first evidence of the density-induced correlated state (dipolar liquid) and dissociation (Mott transition) of the indirect excitons in GaN/(Al,Ga)N heterostructures.

Mots clés en anglais :

Indirect exciton, many-body physics, GaN, Excitonic device, Electron-hole plasma, Excitonic transport

