

Université de Montréal

**Étude des fuites excitoniques dans des familles de boîtes quantiques d'InAs/InP
par PLRT par addition de fréquences**

par
Alexandre Favron

Département de physique
Faculté des arts et des sciences

Mémoire présenté à la Faculté des études supérieures
en vue de l'obtention du grade de Maître ès sciences (M.Sc.)
en physique

Avril, 2012

© Alexandre Favron, 2012.

Université de Montréal
Faculté des études supérieures

Ce mémoire intitulé:

**Étude des fuites excitoniques dans des familles de boîtes quantiques d'InAs/InP
par PLRT par addition de fréquences**

présenté par:

Alexandre Favron

a été évalué par un jury composé des personnes suivantes:

Carlos Silva,	président-rapporteur
Richard Leonelli,	directeur de recherche
Michel Côté,	membre du jury

Mémoire accepté le: Avril 2012

RÉSUMÉ

Ce mémoire porte sur les mécanismes de relaxation et de fuite des excitons dans des systèmes de boîtes quantiques (BQs) d'InAs/InP. Les systèmes sont composés d'un substrat volumique d'InP, appelé matrice (M), d'un puits quantique d'InAs, nommé couche de mouillage (CM), et des familles de BQs d'InAs. La distinction entre les familles est faite par le nombre de monocouche d'épaisseur des boîtes qui sont beaucoup plus larges que hautes.

Une revue de littérature retrace les principaux mécanismes de relaxation et de fuite des excitons dans les systèmes. Ensuite, différents modèles portant sur la fuite thermique des excitons des BQs sont comparés. Les types de caractérisations déjà produites et les spécifications des croissances des échantillons sont présentés. L'approche adoptée pour ce mémoire a été de caractériser temporellement la dynamique des BQs avec des mesures d'absorption transitoire et de photoluminescence résolue en temps (PLRT) par addition de fréquences.

L'expérience d'absorption transitoire n'a pas fait ressortir de résultats très probants, mais elle est expliquée en détails.

Les mesures de PLRT ont permis de suivre en température le temps de vie effectif des excitons dans des familles de BQs. Ensuite, avec un modèle de bilan détaillé, qui a été bien explicité, il a été possible d'identifier le rôle de la M et de la CM dans la relaxation et la fuite des excitons dans les BQs. Les ajustements montrent plus précisément que la fuite de porteurs dans les BQs se fait sous la forme de paires d'électrons-trous corrélées.

Mots clés: Boîte quantique, exciton, couche de mouillage, photoluminescence résolue en temps, fuite thermique.

ABSTRACT

This thesis focuses on the mechanisms of relaxation and leakage of excitons in systems of quantum dots (QDs) InAs / InP. The systems are composed of a substrate of InP volume, called matrix (M), of a quantum well of InAs, named wetting layer (CM), and of QD families of InAs. The distinction between the families can be explained by the number of monolayer-thick boxes that are wider than high.

A literature review highlights the main relaxation mechanisms and leakage of excitons in systems. Then, different models on the thermal leakage of the QD excitons are compared. Then, a presentation of the different types of characterizations already and of the specifications on the samples growths. The approach used for this thesis is to temporarily characterize the dynamic of the QDs with transient absorption and upconversion.

The transient absorption experiment's results are not very convincing, but are minutely explained.

PLRT measures were used to follow in temperature the excitons effective lifetime in the QDs families. Then, with a detailed balance model, which has been well explained, it was possible to identify the role of the M and CM in relaxation and leakage of excitons in QDs. As shown by the adjustment, the escape of carriers in the QDs is made in a correlated electron-hole pairs form.

Keywords: quantum dot, exciton, wetting layer, time resolved photoluminescence, thermal leakage,

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ	iv
ABSTRACT	v
TABLE DES MATIÈRES	vi
LISTE DES TABLEAUX	ix
LISTE DES FIGURES	x
LISTE DES SIGLES	xiii
NOTATION	xiv
DÉDICACE	xv
REMERCIEMENTS	xvi
CHAPITRE 1: INTRODUCTION	1
1.1 Avant propos	1
1.2 Systèmes confinés (3D , 2D et 0D)	2
1.2.1 Semi-conducteur volumique	2
1.2.2 Puits quantique	3
1.2.3 Boîte quantique	4
1.3 Exciton	7
1.4 Dynamique des systèmes de boîte quantique	8
1.5 Revue de littérature et introduction de la problématique	8
1.5.1 Relaxation excitonique	9
1.5.2 Fuite excitonique	9
1.6 Modèles	13
1.6.1 Modèles précédents	13

1.6.2	Objectif du présent modèle	15
1.7	Types de mesure faits sur les échantillons 148EP et 206	16
1.7.1	Photoluminescence (PL)	16
1.7.2	Photoluminescence en excitation (PLE)	17
1.7.3	Photoluminescence en température	17
1.7.4	Photoluminescence résolue dans le temps (PLRT)	18
1.8	Spécifications sur les échantillons	18
1.8.1	Échantillon 148EP	19
1.8.2	Échantillon 206	20
CHAPITRE 2: EXPÉRIENCE D'ABSORPTION TRANSITOIRE		21
2.1	Cadre théorique	21
2.1.1	Principe de l'expérience	21
2.1.2	Transition possiblement mesurable en TA	22
2.2	Montage expérimental	23
2.3	Résultats expérimentaux et analyse	25
2.4	Conclusion	27
CHAPITRE 3: EXPÉRIENCE DE PHOTOLUMINESCENCE RÉVOLUE DANS LE TEMPS PAR ADDITION DE FRÉQUENCES		28
3.1	Introduction: théorie de la PLRT par addition de fréquences	28
3.2	Montage de la upconversion	30
3.2.1	Source d'excitation	30
3.2.2	Trajet optique	32
3.2.3	Capture du signal	33
3.3	Difficultés avec le montage	33
3.4	Régime d'excitation	35
3.5	Résolution temporelle	37
CHAPITRE 4: MODÉLISATION ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX		41
4.1	Modèle du bilan détaillé	41

4.1.1	Détails du modèle	41
4.1.2	Passage à la résolution temporelle du modèle	44
4.2	Résultats expérimentaux	45
4.2.1	Échantillon 148EP	45
4.2.2	Échantillon 206	50
4.3	Application du modèle aux échantillons 148EP et 206	56
4.3.1	Analyse de l'échantillon 148EP	56
4.3.2	Analyse de l'échantillon 206	65
BIBLIOGRAPHIE		75

LISTE DES TABLEAUX

1.I	Comparaison entre différents modèles qui ont tenté de déterminer l'énergie d'activation relative ν	13
2.I	Comparaison entre les énergies de la pompe et de la sonde, les différents filtres passe-bandes et les énergies indésirables qu'il a fallu filtrer.	25
4.I	Temps de relaxation et de fuite mesurés pour chaque spectre dans l'échantillon 148E.	46
4.II	Temps de relaxation et de fuite mesurés pour chaque spectre dans l'échantillon 206.	51
4.III	Paramètres optimisés pour l'échantillon 148EP pour différents ν et l'incertitude sur le meilleur ajustement.	62
4.IV	Paramètres optimisés pour l'échantillon 206 pour différents ν et l'incertitude sur le meilleur ajustement.	69

LISTE DES FIGURES

1.1	Comparaison entre les 3 types de croissances de BQs sur substrat.	5
1.2	Diagramme de bande des excitons dans un système de boîte quantique avec les transitions $M \Rightarrow CM$, $M \Rightarrow BQ$, $CM \Rightarrow BQ$ et la recombinaison radiative.	6
1.3	Photoluminescence à basse température de BQs d'InAs/InP. . . .	7
1.4	Candidats au processus de fuite thermique des porteurs dans les BQs.	11
1.5	Spectre de PLE de l'échantillon 148EP superposé au spectre de PL à basse température.	17
1.6	Mesure de TEM et de HRTEM sur des échantillons similaires de BQs	19
2.1	Schéma des différentes transitions mesurables en absorption transitoire.	22
2.2	Schéma du Montage d'absorption transitoire.	23
2.3	Absorption transitoire de la famille 4 à 10 K de l'échantillon 148.	26
2.4	PLRT et absorption transitoire de la famille 4 à basse température de l'échantillon 148.	27
3.1	Schéma de l'expérience de PLRT par somme de fréquences. . . .	30
3.2	Trajet optique du Mira 900-P	31
3.3	Puissance qui peut être atteinte dans le Mira en fonction de la longueur d'onde.	32
3.4	Photoluminescence de l'échantillon 148EP à 14 K avec une source pulsée et non pulsée de 20 mW.	36
3.5	Dépendance en puissance de l'échantillon 148EP à 14 K.	37
3.6	Autocorrélation du laser avec la PLRT de la famille 1 de l'échantillon 148EP à 15 K.	38

3.7	La fonction de réponse du système superposée à la PLRT de la famille 1 de l'échantillon 148EP à 15 K.	39
4.1	Schéma du modèle de bilan détaillé.	41
4.2	Schéma des mesures de PLRT qui ont été produites sur l'échantillon 148EP.	45
4.3	PLRT de la famille 1 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.	47
4.4	PLRT de la famille 3 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.	48
4.5	PLRT de la famille 1 + la famille 3 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.	48
4.6	PLRT de la famille 4 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.	49
4.7	Schéma des mesures de PLRT qui ont été produites sur l'échantillon 206.	50
4.8	PLRT de la famille 2 de l'échantillon 206 en fonction de la température.	52
4.9	PLRT de la famille 3 de l'échantillon 206 en fonction de la température.	53
4.10	PLRT de la famille 4 de l'échantillon 206 en fonction de la température.	54
4.11	PLRT de la famille 5 de l'échantillon 206 en fonction de la température.	55
4.12	Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 148EP avec $\nu=0,35$	57
4.13	Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 148EP avec $\nu=0,50$	58
4.14	Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 148EP avec $\nu=1,00$	59

4.15	Ajustement à l'échantillon 148EP provenant de mesures de PL résolues en température.	60
4.16	Minimisation du χ^2 en fonction du paramètre ν ajusté aux mesures de l'échantillon 148EP.	64
4.17	Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 206 avec $\nu=0,35$	66
4.18	Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 206 avec $\nu=0,50$	67
4.19	Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 206 avec $\nu=1,00$	68
4.20	Minimisation du χ^2 en fonction du paramètre ν ajusté aux mesures de l'échantillon 206.	71

LISTE DES SIGLES

a_b	Rayon de Bohr effectif
BQ	Boite quantique
CM	Couche de mouillage
M	Matrice
MC	Monocouche
PL	Photoluminescence
PLMH	Pleine largeur à mi-hauteur
PLE	Photoluminescence excitée
PLRT	Photoluminescence résolue en temps
PQ	Puits quantique
R_y^*	Rydberg effectif
SC	Semi-conducteur
SK	Stranski-Krastanow
TA	Absorption transitoire

NOTATION

gap	Bande interdite
upconversion	Photoluminescence résolue en temps par addition de fréquence
ν	Coefficient de fuite thermique

À celle qui me fait rêver...

REMERCIEMENTS

Contrairement à sa demande, j'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de recherche Richard Leonelli pour m'avoir permis de poursuivre mes études. J'ai beaucoup apprécié sa rigueur et son approche désinvolte de la recherche expérimentale, ce qui m'a poussé à toujours vouloir en faire plus sans pour autant rendre la chose désagréable.

Je veux également remercier le professeur Carlos Silva pour m'avoir ouvert les portes de son laboratoire. Merci aussi au laconique, mais généreux Maciej Sakowicz d'avoir eu la patience de m'expliquer tout les fins détails de son laboratoire.

Merci aux personnes de mon bureau d'avoir supporté mes cris! Le soutien de ce groupe était stimulant et on a bien déconné sur tout et sur rien. J'aimerais remercier plus particulièrement Colin-Nadeau Brosseau pour l'espace zen qu'il sait créer chez les autres et Guillaume Gélinas, bon pédagogue, à qui j'ai donné l'obligation de tout m'expliquer les détails de son mémoire et qui a répondu. Il m'a parrainé d'une certaine façon.

Je veux remercier ma famille qui n'a toujours pas compris que j'étais un être humain, mais qui m'aime quand même!

Je veux remercier le hasard qui m'a permis de ne pas briser mes échantillons ou mon portable, qui m'a fait trouver 100 \$ un soir que j'étais dépité, qui m'a permis d'obtenir mon signal de upconversion pour la 1^{ère} fois et fourni tous ces repas gratuits que je n'espérais même pas !

Par coïncidence, durant ma maîtrise j'ai cohabité avec 2 personnes formidables, Jason Éthier et Merlin Delaval-Lebel, et j'aimerais les remercier de m'avoir épaulé au jour le jour et paradoxalement de m'avoir permis de connaître une vie retirée.

Finalement je tiens à remercier Marilyn Savard. Ces deux années ont été les plus belles de ma vie et grâce à elle le poids de ces longues heures dans le lab a été bien léger à porter croyez-moi!

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

1.1 Avant propos

Les boîtes quantiques (BQs) sont des atomes artificiels de tailles mésoscopiques avec une densité d'états de forme delta de Dirac.

But ultime dans la réduction de la dimensionnalité des hétérostructures quantiques, les BQs ont été proposées pour remplacer les puits quantiques comme couche active de beaucoup de dispositifs optiques et électro-optiques. Alferov, dans son discours lors de sa remise du prix Nobel de physique en 2001 [1], faisait état que le seuil d'activation des amplificateurs optiques à base de BQ était plus bas que ceux atteints par d'autres hétérostructures, ce qui en fait un objet à la fine pointe de la technologie. Parmi les applications actuelles, on compte des lasers femto-seconde dans l'infrarouge [27].

Vu selon un autre angle, la nature quantique des BQs et le long temps de vie des porteurs à température ambiante les rendent intéressantes pour des applications prochaines en informatique quantique [21].

Les BQs les plus étudiées sont des systèmes InAs/GaAs, mais étant donné que l'énergie centrale d'émission des systèmes d'InAs/InP est près du $1,55 \mu\text{m}$ des fibres optiques, on a vu naître un certain engouement pour cette sorte de BQ. Les différences théoriques entre les 2 systèmes, voir [6, 13], et le manque de modélisation des systèmes d'InAs/InP justifient donc à eux seuls cette recherche.

Lorsque l'on excite un système contenant des boîtes quantiques, il y a création d'excitons qui relaxent vers les BQs où se produit la recombinaison radiative de l'électron et du trou. Cependant, en fonction de la température, l'intensité d'émission des BQs baisse et cela est attribué à la fuite thermique de la paire d'électrons-trous vers des états de plus hautes énergies: ce qu'on appelle la fuite des porteurs. Il est à mentionner qu'à température ambiante, l'énergie thermique $k_b T$ est de l'ordre de 25 meV, alors que l'énergie de confinement dans les BQs est supérieure à 100 meV, ce qui laisse une place

prédominante à l'efficacité des processus de fuites qui seront simulés.

Bien que des dispositifs à température ambiante existent déjà, la compréhension des processus de fuite des porteurs dans les BQs n'est pas parfaite, ce qui en limite les applications. En effet, il n'y a pas encore de consensus à savoir si les paires d'électrons-trous dans les BQs arrivent à fuir comme des excitons, des porteurs indépendants ou des porteurs corrélés. Le but de ce mémoire consiste donc à caractériser temporellement des systèmes d'InAs/InP et à bien modéliser les processus de capture et de fuite.

1.2 Systèmes confinés (3D , 2D et 0D)

1.2.1 Semi-conducteur volumique

Les semi-conducteurs (SC) *III/V* sont, depuis des décennies, au coeur des avancées technologiques de la physique de la matière condensée. L'avancée dans l'art d'avoir des échantillons de plus en plus purs [37] et la grande capacité à intermixer différents SCs ensembles permettent d'obtenir des structures de bande très accordables. De plus, comme on peut avoir des échantillons de qualité, un bon contrôle du dopage est possible et permet de produire des dispositifs à faible seuil d'activation et à grande mobilité comme le transistor pour ne citer que lui [2].

On peut définir un SC selon bien des conventions, toutefois, elles s'entendent toutes pour dire qu'il doit y avoir:

1. Une résistivité se situant entre 10^{-2} et 10^9 ohm·cm ;
2. Une bande interdite absolue (gap) qui sépare la bande de valence et de conduction est typiquement entre $0 < E_g \leq 4$ eV.;
3. Des charges qui se déplacent dans la bande de conduction (électrons) et de valence (trous);
4. Un dopage qui change significativement ses propriétés électroniques.

Dans le cas général d'un SC, on définit la densité conjointe d'état de la bande de

valance vers la bande de conduction par (voir [37]):

$$D(E_{CV}) = \frac{1}{4\pi^3} \int \frac{dS_{\vec{k}}}{|\nabla_{\vec{k}}(E_{cv}(\vec{k}))|}, \quad (1.1)$$

où $E_{cv}(\vec{k})$ est l'énergie que l'électron, dans la bande de conduction, a par rapport au maximum de la bande de valence en fonction du vecteur d'onde \vec{k} et $S_{\vec{k}}$ est la surface définie par $E_{cv}(\vec{k}) = 0$. Si l'on considère les électrons dans un SC volumique, on peut calculer la densité d'états des électrons dans la bande de conduction ainsi:

$$D_{vol}(E) = \begin{cases} [2^{1/2} m_e^{3/2} / (\pi^2 \hbar^3)] (E_{cv} - E_g)^{1/2} & \text{si } E_{cv} > E_g, \\ 0 & \text{si } E_{cv} < E_g. \end{cases} \quad (1.2)$$

où D est la densité d'états des électrons dans la bande de conduction et m_e est la masse effective de l'électron. Dans les faits, en faisant l'approximation de la masse effective, l'équation 1.2 reste bonne pour des excitons en tenant compte d'une masse effective de l'exciton, ce qui sera utile au chapitre 4.1. On calcule ainsi aisément le nombre d'états de porteurs, par tranche d'énergie, qui pourront peupler le SC volumique. On définit le semi-conducteur volumique comme étant la Matrice (M) ou la barrière.

1.2.2 Puits quantique

Un puits quantique (PQ) est un puits de potentiel en une dimension. On obtient conventionnellement un puits quantique en faisant croître une fine couche, d'une épaisseur telle que des effets de confinement puissent être observable, d'un matériau A entre 2 couches volumiques qui ont un gap plus élevé. Ce faisant on obtient des états confinés.

En tenant compte de l'équation 1.1, on peut déduire que la densité d'états d'un PQ est une fonction marche (voir [37]):

$$D_{PQ}(E) = \frac{m_e}{\hbar^2 \pi} \sum \Theta(E - E_n), \quad (1.3)$$

où m_e est la masse effective de l'électron et $\Theta(E - E_n)$ est la fonction marche. Comme

expliqué à la section précédente, cette densité s'applique également à des excitons.

Dans le cas des systèmes d'InAs/InP, il s'agit d'un PQ de 1 ou 2 monocouches (MC) d'épaisseurs d'InAs. Ce qui implique que la densité d'états du PQ sera dans les faits constante:

$$D_{PQ}(E) = \frac{m_e}{\hbar^2 \pi}. \quad (1.4)$$

La raison est qu'en tenant compte d'un puits quantique fini avec une méthode $K \cdot \vec{P}$ ou Tight Binding (TB), voir [23], on obtient que pour un puits quantique très mince, seul un état électronique est confiné et les états de trou-lourd et trou-léger, ce qui fait que la densité d'états reste constant. Pour cette étude, les BQs ont été crues sur un petit PQ d'une MC de type I. Il est conventionnel de l'appeler couche de mouillage (CM).

1.2.3 Boîte quantique

Une boîte quantique (BQ) est un puits de potentiel en trois dimensions, de petit volume (nm × nm × nm). On distingue différentes sortes de BQs:

1. Colloïdale: des BQs sphériques dans un solvant.
2. Sur substrat :

(a) Frank-Van der Merve : $\frac{\partial \mu}{\partial n} < 0$

(b) Volmer Weber : $\frac{\partial \mu}{\partial n} > 0$

(c) Stranski-Krastanow (SK) : $\frac{\partial \mu}{\partial n} > 0$ si $n < 1$ et $\frac{\partial \mu}{\partial n} < 0$ si $n > 1$

où $\frac{\partial \mu}{\partial n}$ est la dérivée du potentiel chimique μ de la molécule déposée en fonction du nombre de couches déjà déposées sur le substrat (n). Comme le montre la figure 1.1 , le mode Frank-Van Merve est caractérisé par une absence de CM et le mode Volmer Weber par une absence d'agglutinement du PQ en BQs compactes. Dans le cas des systèmes d'InAs/InP étudiés ici, les systèmes de BQs sont de type SK composés d'une CM et de BQs de quelques MCs d'épaisseur.

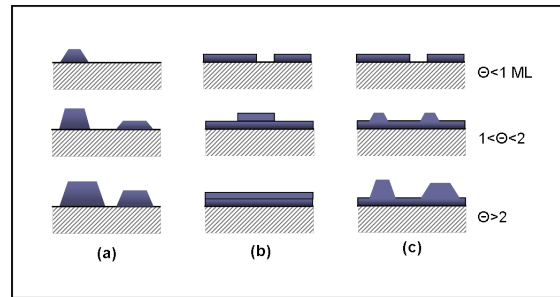


Figure 1.1 – Le (a) représente le mode Frank-Van der Merve où il n’y a pas de CM, le (b) le mode Volmer Weber où l’agglutinement des BQs ne se forme pas avec plus d’une MC et où la CM est dominante et le (c) le mode Stranski-Kastanow où dépassant une hauteur limite il y a formation de BQs tout en gardant une CM.

Les systèmes d’InAs/GaAs ont été largement étudiés et ont été privilégiés à la base des recherches portant sur les mécanismes de captures et de fuites des porteurs [17, 33, 36]. Les propriétés électroniques des BQs d’InAs sur GaAs ou sur InP ne sont pas exactement les mêmes, bien que similaires qualitativement, comme on peut le constater dans des études qui se sont attardées sur le sujet [6, 13]. Cela se reflète dans le comportement des trous qui sont plus confinés dans les BQs d’InAs sur InP. Ainsi, dans la littérature on observe que l’énergie des BQs se situe entre 1 eV et 1,3 eV pour les BQs sur GaAs et entre 0,7 eV et 1 eV pour ceux sur InP.

Physiquement, on peut se les représenter comme un pseudo-atome, avec un état neutre (sans exciton), excité selon différents niveaux, dépendamment si l’électron est dans un état excité (ee_1, ee_2 , etc.) ou si l’on observe un trou lourd (hh_1), trou léger (lh_1) ou un trou plus excité (hh_2, lh_3 , etc.), comme on le voit décrit sur un diagramme de bande à la figure 1.2. Dans son état de plus basse énergie, une BQ émettra toujours à la même longueur d’onde. Vu autrement, cela revient à dire qu’il a une densité d’états de forme delta de Dirac.

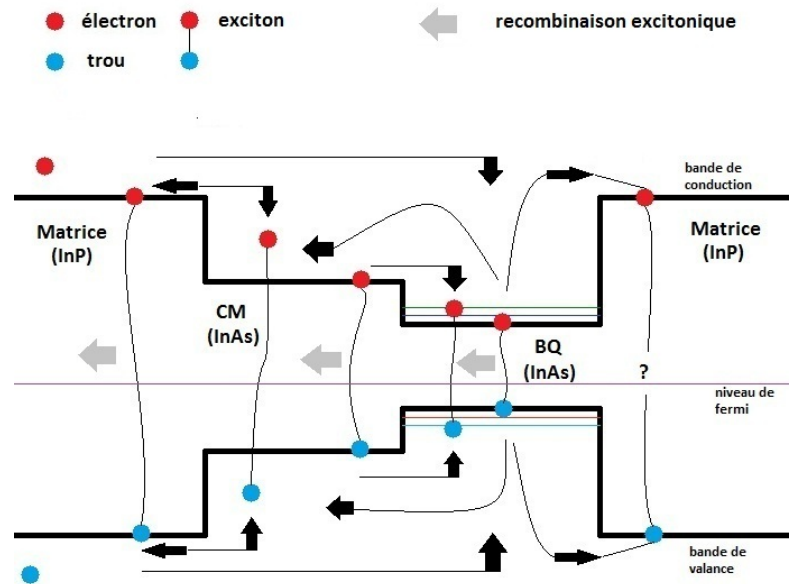


Figure 1.2 – Diagramme de bande des excitons dans un système de boîte quantique avec les transitions $M \Rightarrow CM$, $M \Rightarrow BQ$, $CM \Rightarrow BQ$ et la recombinaison radiative.

Ils peuvent être de formes assez variées: cubique, pyramidale, pyramidale tronquée ou étirée et sphérique [15], ce qui explique la diversité intrinsèque des différentes études sur la fonction d'onde des trous et des électrons dans la boîte. Cette disparité pourrait rendre très ardu l'identification des BQs par leur spectre d'énergie [7], mais dans le cas des échantillons étudiés, les BQs sont très larges en comparaison de leur hauteur, ce qui permet de les regrouper en familles. Chaque famille est composée de BQs ayant le même nombre de MC d'épaisseur [28] et la distribution des largeurs peut être bien modélisée par une gaussienne, comme le montre la figure 1.3.

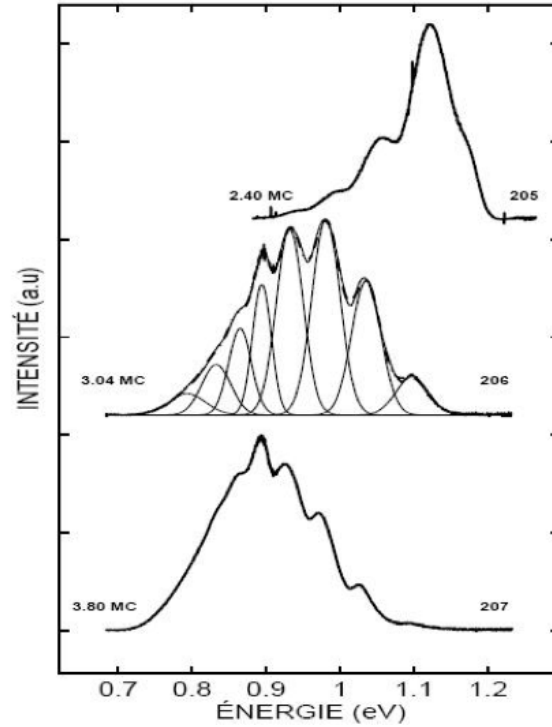


Figure 1.3 – Photoluminescence à basse température de BQs d’InAs/InP, tirée de [23].

1.3 Exciton

Un exciton est une quasi-particule composée de la liaison coulombienne d’un électron et d’un trou. Il y a une distinction entre 2 types d’excitons, en fonction de leurs énergies de liaison, le Rydberg effectif (R_y^*), et du rayon de Bohr effectif (a_b). Ainsi, nous avons des excitons de Wannier-Mott si:

$$1\text{meV} \leq R_y^* \leq 200\text{meV} \ll E_g, \quad (1.5)$$

$$50\text{nm} \geq a_b \geq 1\text{nm} > a_{\text{réseau}}, \quad (1.6)$$

et des excitons de Frenkel si:

$$R_y^* \gg 200\text{meV}, \quad (1.7)$$

$$a_b \sim a_{\text{réseau}}. \quad (1.8)$$

Les 2 conditions sur chaque type étant liées par le fait que plus l'énergie de liaison est forte plus la fonction d'onde de l'électron et du trou se recourent et vice-versa. Dans le cas de semiconducteurs inorganiques, et donc a fortiori des systèmes de BQs d'InAs/InP, nous serons en présence d'excitons de Wannier-Mott. Avec l'approximation de la masse effective, on peut se représenter l'exciton dans la théorie des bandes comme étant un atome hydrogénoïde avec des niveaux discretisés (basse énergie) et continus (haute énergie). Les excitons étant de nature instable, ils auront tendance à relaxer vers des états de plus basse énergie et à se recombiner. Dans les systèmes de BQs, les BQs possèdent les niveaux de plus basse énergie ce qui les rendent favorables à la capture d'excitons.

1.4 Dynamique des systèmes de boîte quantique

La dynamique des excitons dans les systèmes de BQs est assez bien comprise. Il est communément admis que les excitons sont plus efficacement créés dans la matrice [26], ensuite il y a relaxation par divers processus, qui seront explicités plus loin, vers les BQs ou vers la CM qui piègeront les excitons et favoriseront la relaxation vers les BQs. Là, les excitons vont se recombiner dans les BQs. Où il n'y a plus consensus, découle de la mauvaise compréhension du comportement en température des excitons piégés. En effet, peu de modèles tiennent compte de toutes les fuites thermiques possibles et la détection de processus non radiatif est assez complexe pour qu'on ne puisse pas toujours les détecter et en tenir compte.

1.5 Revue de littérature et introduction de la problématique

L'étude des propriétés optiques des systèmes d'InAs/GaAs, développée lors des années 1990 et 2000, a été focalisée sur plusieurs aspects, dont 2 orientations que l'on peut regrouper comme suit :

1. La relaxation des excitons vers les BQs.
2. La fuite excitonique par voies radiatives et non radiatives.

1.5.1 Relaxation excitonique

Une des grandes réussites dans la compréhension des systèmes de BQs vient de l'étude des différents processus de relaxation. Historiquement, il a été prédit par Bockelmann et Bastard [3] que l'absorption phononique des excitons vers les BQs avait des spectres discrets de sorte que hors résonance il y aurait un fort ralentissement du temps de relaxation (de l'ordre de centaine de ps), ce que plusieurs ont appelé le goulot d'étranglement "phonon bottleneck". Mais rapidement, on s'est aperçu que les temps de relaxation pouvaient atteindre l'ordre de la ps. Bockelmann et Egeler [4] ont prouvé que théoriquement les processus Auger occulteraient le goulot d'étranglement à haute densité d'excitation. Heitz et coll. [17] et Steer et coll. [33] ont constaté en PLE que la relaxation multiphononique (2 à 4 phonons) contribuait principalement à la relaxation des porteurs. Verzele et coll. [35] ont calculés que les polarons excitoniques devaient aussi aider à la perte d'énergie des excitons, ce qui a été mesuré en photo-absorbtion induite (PIA) par Fossard [9].

1.5.2 Fuite excitonique

1.5.2.1 Fuite radiative

Évidemment, les fuites radiatives ont été amplement discutées. Lorsque les excitons relaxent vers les BQs, ils émettent un photon selon un taux de recombinaison, voir [7]:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2n\pi e^2 f_{osc}}{3\lambda_{PL}^2 \epsilon_0 c m_0} \quad \text{où} \quad f_{osc} = \frac{|\langle \psi_e | \psi_h \rangle|^2 E_p}{2E_{PL}}, \quad (1.9)$$

où n est l'indice de réfraction de la matrice, λ_{PL} la longueur d'onde de la PL, f_{osc} est la force de l'oscillateur, $\psi_{e,h}$ la fonction d'onde de l'électron (trou), E_p est l'énergie de Kane et E_{PL} l'énergie de la PL. En estimant la forme des BQs, Grundmann et coll. [14] sont arrivés à bien calculer les fonctions d'onde des électrons et des trous. Il n'est néanmoins pas possible de produire des BQs de façon uniforme, ce qui rend caduque cette forme d'analyse lorsqu'on est à grande échelle. Dans la plupart des cas, la distribution spectrale des BQs apparaîtra sous la forme d'une gaussienne. Une façon de contrôler la taille

(et donc la prédictibilité) consiste à les séparer en familles de BQs constituées de 1 MC d'épaisseur de séparation [18]. Il est connu que les excitons ont des temps de vie relativement constants pour de petits changements en énergie [7, 19], et qu'il y a une nette augmentation lorsqu'on accroît la taille des BQs. Comme les BQs à l'étude sont beaucoup plus larges que hautes [28], on peut approximer que les temps de vie au sein d'une même famille sont constants et qu'on peut caractériser temporellement le système en étudiant la résolution en température des temps de vie des familles. Par ailleurs, Le Ru et coll. [24] et Torchynska et coll. [34] ont estimé que si la pleine largeur à mi-hauteur des pics de PL était beaucoup plus petite que les énergies d'activation, alors on pouvait simplifier la fonction de distribution à un delta de Dirac, qui sera dans les faits la PL intégrée de l'ajustement gaussien d'une famille.

1.5.2.2 Fuites non radiatives

Les processus de fuites non radiatives, vu leur nature sombre, ont été moins étudiés. Les défauts profonds aux abords de la BQ ont été proposés comme processus de fuite non radiative. En comparant la population du plus bas niveau en énergie et de son 1^{er} état excité en fonction de la température, Gurioli et coll. [16] ont montré que dans certains cas, des états excités sombres ralentissent la recombinaison à température intermédiaire. Mais ces résultats doivent être pris avec précautions, car ils sont loin d'être universellement observés et dépendent de bien des paramètres qui ne sont pas bien documentés. Dans le cas d'un modèle qui cherche à comprendre le comportement général, ces processus ne sont pas tenus en compte.

1.5.2.3 Fuites thermiques

Rapidement identifié comme le principal processus de fuite non radiative, les fuites thermiques sont modélisées par des énergies d'activation avec lesquelles les BQs peuvent fuir vers la CM ou la M. Il est admis que les transferts entre les BQs soient virtuellement interdits parce que la distance moyenne entre elles est trop grande comparativement au régime de haut confinement des excitons [5]. Un exciton dans un état A peut fuir

thermiquement vers un état B, si $E_A < E_B$, avec une probabilité de:

$$P_{A \rightarrow B} = P_{B \rightarrow A} e^{\frac{-\Delta E}{k_B T}}, \text{ où } \Delta E = E_{CM} - E_{BQ}, \quad (1.10)$$

où ΔE est l'énergie d'activation, E_{CM} et E_{BQ} est l'énergie d'un exciton dans le 1^{er} état de la CM et de la BQ. Mais outre cela, il n'y a aucune restriction pour qu'un exciton dans un état quelconque puisse aller vers un autre, comme on peut se le représenter sur la figure 1.2 .

Un sujet de controverse provient de la nature de la fuite thermique de la paire d'électrons-trous dans les BQs. En effet, il n'est pas évident si la paire d'électrons-trous arrive à garder son lien excitonique dans un matériau si confiné qui sépare spatialement l'électron et le trou. Ainsi dépendamment de la façon dont le lien est conservé, il est possible de distinguer trois types de fuites possibles: sous forme d'exciton, comme des porteurs indépendants ou comme une paire d'électrons-trous corrélées.

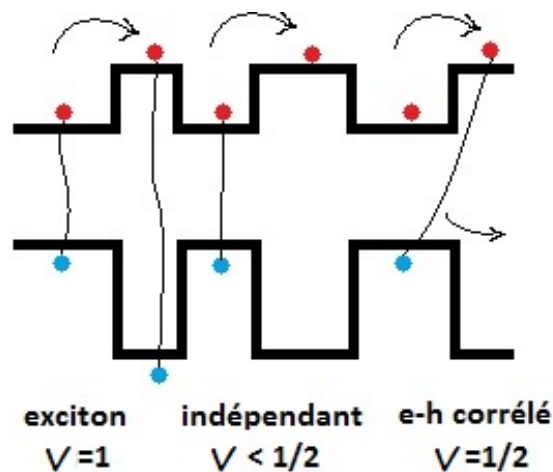


Figure 1.4 – Candidats au processus de fuite thermique des porteurs dans les BQs.

Historiquement, il a été naturel de penser que les excitons fuiraient des BQs sans que le lien excitonique ne se brise, mais comme on le voit à l'équation 1.10, ce genre de fuite devait être bien reproductible en température, ce qui n'a pas été vérifié par tous. Dans ce cas l'énergie d'activation, E_X^a est la même que la différence d'énergie entre l'état de la

boîte et l'état vers lequel il se transfère:

$$\Delta E = E_X = E_{CM} - E_{BQ}. \quad (1.11)$$

Une seconde possibilité de fuite thermique proviendrait d'une cassure du lien coulombien, dû aux contraintes des BQs, qui localiserait les électrons et les trous dans des régions précises de la boîte, voir [13], ce qui impliquerait que la fuite des électrons et des trous se fasse de façon indépendante. Ceci a pour conséquence une énergie d'activation, E_{ind}^a , égale à celle du porteur le moins contraint et donc que:

$$\Delta E = E_{ind} = \min(E_{trou}, E_{\text{électron}}) < \frac{E_X}{2}, \quad (1.12)$$

où E_{trou}^a et $E_{\text{électron}}^a$ sont respectivement l'énergie de confinement du trou et de l'électron.

Yang et coll. [36] ont proposé que la fuite thermique pourrait venir d'une paire d'électrons-trous corrélées, c'est-à-dire que si un électron ou un trou arrive à sortir, le lien coulombien attirera l'autre porteur dans sa fuite.

Physiquement, cette fuite s'explique avec la loi d'action de masse:

$$n_c p_v = C e^{\frac{-E_{gap}}{k_b T}} \quad (1.13)$$

où n_c est le nombre d'électron, p_v est le nombre de trou, E_{gap} l'énergie du gap et C une constante qui ne dépend pas de la température dans le cas des BQs dû au fait que sa densité d'états est de la forme d'un delta de Dirac. Comme il y a autant d'électrons et de trous, on pose que $n_c(T) = p_v(T)$.

Concrètement, lorsque en considérant des populations d'excitons, la loi d'action de masse se reflète dans une énergie d'activation, E_{cor}^a , qui est la moitié de celle d'un exciton:

$$\Delta E = E_{cor} = \frac{E_X}{2}. \quad (1.14)$$

On distingue ces 3 processus par ce qu'on appellera le coefficient de fuite thermique:

$$\nu = \frac{\Delta E}{E_X}. \quad (1.15)$$

Le tout est résumé à la figure 1.4. Le principal objectif de ce mémoire sera d'estimer ce paramètre ν .

1.6 Modèles

1.6.1 Modèles précédents

Tableau 1.I – Comparaison entre différents modèles qui ont tenté de déterminer l'énergie d'activation relative ν . Les hypothèses avec des tirets représentent les transitions assumées, celles avec un r en indice sont les états radiatifs et p en indice sont l'état dans lequel les excitons sont pompés. Voir la figure 1.2 pour se visualiser les transitions possibles.

Auteurs	Suppositions	ν	Remarques
Yang [36]	$\nu = \text{var}, \text{CM-BQ}, \text{CM-M}, \text{CM}_r, \text{CM}_p,$	1/2	Pompe la CM
Sanguinetti [31]	$\nu = 1, \text{M-CM}, \text{CM-BQ},$ $\text{BQ}_r, \text{CM}_r, \text{M}_p$	1	Segmentations du pic gaussien et simulation de la PLMH
Dawson [8]	$\nu < 1/2$ ou $= 1, \text{M-BQ}, \text{BQ}_r, \text{M}_r$	$< 1/2$	Ils supposent une capture des porteurs indépendants
Sanguinetti [30]	$\nu = \text{var}, \text{BQ}_p, \text{BQ}_r$	$\leq 1/2$	Dépendance en température de la dépendance en puissance
Le Ru [24]	$\nu = 1, \text{M-CM}, \text{CM-BQ}, \text{BQ}_r,$ $\text{CM}_r, \text{M}_r, \text{M}_p$	$< 1/2$	Dépendance en température de la dépendance en puissance
Gélinas [11]	$\nu = \text{var}, \text{M-CM}, \text{CM-BQ}, \text{M-BQ},$ $\text{CM}_r, \text{M}_r, \text{BQ}_r, \text{M}_p$	1/2	Suivi sur des familles de BQs

Excepté pour le modèle de Gélinas, toutes les mesures ont été produites sur des systèmes d'InAs/GaAs, comparativement à des systèmes d'InAs/InP, pour Gélinas et coll.

Dans l'expérience de Yang et coll., des mesures de PLRT suivies en température sur différents emplacements du pic de PL ont été ajustées avec un modèle d'équation de bilan détaillé tenant compte de la CM et des BQs uniquement. Il est à noter que les

températures utilisées allaient de 10 à 140 K et que la CM était directement pompée, ce qui leur a permis de réduire le système à résoudre. Sans supposer de paramètre ν implicitement, ils ont conclu qu'il devait s'agir de paires d'électrons-trous corrélées $\nu = 0,5$.

Sanguinetti et coll., voir la référence [31], ont fait des mesures de PL résolues en température en ajustant sur une équation de bilan détaillé en incluant la matrice et la CM, en excluant les transferts M-BQ. Ce qu'il y a de particulier avec leur modèle provient de la capacité à prévoir la pleine largeur à mi-hauteur (PLMH) du pic de PL, ce qui exploite totalement le plein potentiel (en suivant l'intensité intégrée et la position en énergie) de la PL résolue en température. Ils assumaient que les porteurs fuyaient des BQs comme des excitons et en reproduisant bien l'énergie de la CM, qui était un paramètre libre, ils en ont conclu que $\nu = 1$. Il est à noter que la densité d'états de la CM est un paramètre libre de la simulation, même s'il aurait pu être un paramètre fixé a priori [37].

L'expérience de Dawson et coll. ressemble assez à celle réalisée par Sanguinetti, sauf que les hypothèses utilisées sont tout autres. Ils supposent que les électrons et les trous sont décorrélés. Ils les injectent dans la matrice et suppose qu'ils relaxent indépendamment (sans tenir compte de la CM) vers les BQs. En comparant ce modèle avec un autre où les électrons et les trous forment des excitons, ils obtiennent que les fuites indépendantes des porteurs s'accordent mieux avec leurs mesures. Outre la supposition originale qu'ils font de la relaxation indépendante des porteurs, leur modèle reste le plus simpliste, en terme du nombre d'états accessibles par les porteurs, pour expliquer la relaxation des excitons, mais il ne possède pas de paramètre libre.

La seconde expérience de Sanguinetti et coll., voir la référence [30], n'est pas basée sur une équation de bilan détaillé. Ils se contentent de suivre la dépendance en puissance en PL résonnante en température et arrivent à conclure que si les porteurs sortaient indépendamment, ils auraient dû avoir à haute température une dépendance quadratique en excitation. Ils affirment également que leur expérience démontre manifestement que les électrons et les trous sont corrélés lors de la relaxation. Ils dénotent aussi que l'énergie de liaison des excitons est de ~ 20 meV et qu'à haute température, parler d'exciton n'est plus adapté pour décrire les porteurs dans les BQs.

Le Ru et coll. présentent une équation de bilan détaillé ajusté sur des mesures de PL intégrée résolues en température et de dépendance en puissance. Leur modèle ne tient pas compte des densités d'état dans la CM et la matrice, ils vont plutôt tout voir comme des taux de transferts entre l'état BQ, CM et la M, ce qui simplifie grandement la solution analytique qu'ils obtiennent. Ils concluent que les porteurs fuient comme des porteurs indépendants à cause de la dépendance non linéaire en puissance. De plus, l'énergie d'activation à haute température qui est ajustée à la courbe d'Arrhenius montre que les électrons et les trous sortent séparément des BQs.

Gélinas et coll., dans leur modèle, suivent la PL résolue en température un peu comme le modèle de Sanguinetti, sauf qu'au lieu de segmenter la gaussienne obtenue en PL, ils suivent des familles de BQs d'InAs/InP. En tenant compte que les porteurs relaxent comme des excitons, ils utilisent une équation de bilan détaillé assez complète et en assumant des densités d'état de la CM et de la matrice. Il est à noter que la dynamique complexe de la courbe d'Arrhenius est bien ajustée aux différentes familles. Ainsi sans supposer de ν a priori ils obtiennent 1/2.

1.6.2 Objectif du présent modèle

Le but ultime de l'étude des familles de BQs d'InAs/InP est de cerner la valeur du paramètre ν si l'on tient compte de tous les types de fuites thermiques possibles et donc en utilisant le modèle de Gélinas et coll. [11]. Il serait possible de critiquer le modèle de Gélinas et coll. à cause du trop grand nombre de paramètres ajustables (7) et c'est dans cette optique que des mesures indépendantes résolues temporellement devraient donner plus de robustesse au paramètre ν obtenu. De plus, les modèles sauf celui de Yang et coll. supposent des temps de vie uniformes pour toutes les BQs, ce qui n'est pas nécessairement le cas, surtout pour des familles de BQs qui sont de petites tailles. Il sera aussi intéressant de pouvoir suivre la progression de la PL en température de familles dont l'intensité intégrée reste relativement constante. Les détails du modèle seront présentés à la section 4.1 .

1.7 Types de mesure faits sur les échantillons 148EP et 206

Conçu à un moment où les familles de BQs commençaient à faire surface, l'échantillon 206 a d'abord été un sujet d'étude doctorale (Ali Lanacer [23]) avec des mesures de PL, PLE, PL résolue en température et de diffusion Raman. Par la suite, Guillaume Gélinas [12] a fortement caractérisé le 206 et le 148EP en PL résolue en température et en PLE. Voici un résumé des types de mesures utilisées et la connaissance de ces systèmes d'InAs/InP que l'on peut en tirer.

1.7.1 Photoluminescence (PL)

Lorsqu'on excite un matériau avec un photon d'énergie supérieur au gap, un électron est excité et crée un exciton qui relaxera vers un état de plus basse énergie et se recombinera en émettant un photon. Le spectre d'émission est appelé photoluminescence (PL). Il existe plusieurs types d'expérience de PL: la PL, la PL résolue en température, la PL résolue en excitation (PLE), la PL résolue en temps (PLRT); mais bien d'autres où le but de l'expérience consiste à faire varier un paramètre qui influe sur le système telle une dépendance en puissance d'excitation, en fréquence d'excitation, ou avec un champ électrique ou magnétique appliqué etc.

Dans le cas particulier des systèmes de BQs d'InAs/InP, la PL mesurée à basse excitation indique le plus bas niveau excitonique. Comme mentionné plus haut, il est possible de séparer les BQs en différentes familles, la PL nous permet d'identifier ces familles et leurs populations respectives. Dans la littérature, la PLMH des pics de PL est interprétée comme un indicateur de l'uniformité de la forme des BQs. Comme la PL sonde de l'ordre du million de BQs, on peut se visualiser à quoi une BQ avec une énergie entre E et $E + \Delta E$ ressemble physiquement. Une famille de n MCs d'épaisseurs est associée à un étalement gaussien en énergie où les basses énergies sont associées à des BQs plus élargies, alors que les hautes dénotent un plus grand confinement quantique et donc des BQs minces. Ainsi avec cette simple mesure de PL, Gélinas et Lanacer [12, 23] ont pu identifier que les échantillons 148EP et 206 ont respectivement 7 et 8 familles.

1.7.2 Photoluminescence en excitation (PLE)

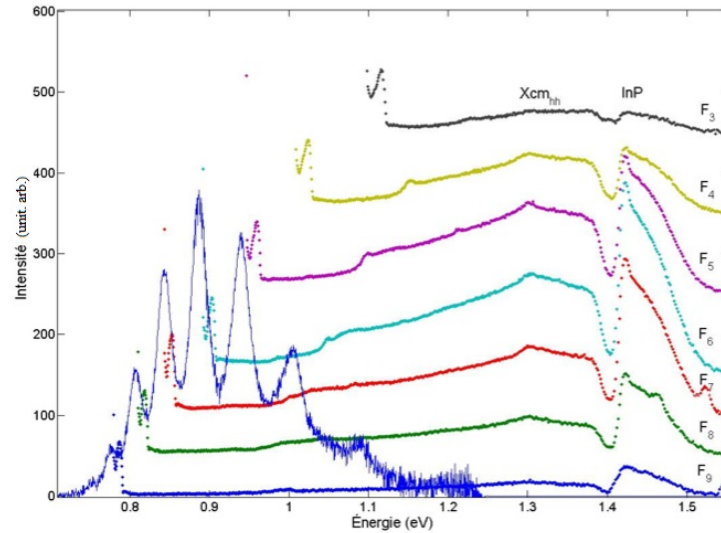


Figure 1.5 – Spectre de PLE de l'échantillon 148EP superposé au spectre de PL à basse température, tiré de [11].

La PLE consiste à détecter de la PL en faisant varier l'énergie d'excitation et en mesurant à une énergie fixe où la PL est active. Cette expérience s'apparente à de l'absorption à cela près que la PLE permet d'observer des systèmes qui absorbent peu, mais desquels les états sont bien délimités en énergie.

Dans le cas de familles de BQs, la PLE permet d'identifier les états excités de BQs, la CM et potentiellement les processus de relaxation active dans notre système. Gélinas [12] a ainsi pu identifier l'énergie d'activation de la CM pour les échantillons 148EP et 206 à 1,30eV et 1,19 eV respectivement. On peut aussi voir sur la figure 1.5 une résonance associée à l'état Xhl-ee1 des familles 3 à 7.

1.7.3 Photoluminescence en température

La photoluminescence en température consiste à produire des spectres de PL présent à différentes températures. Pour tout semi-conducteur volumique, il a été observé empiriquement qu'il y avait un décalage vers les basses énergies, ce qui se voit également dans les BQs en mode SK. De plus, il est bien connu que les excitons ont tendance à fuir

plus facilement des petites boîtes quantiques et de peupler par l'intermédiaire de la CM les BQs de plus grandes tailles. Il apparaîtra donc que l'énergie centrale des familles de BQs suivra une courbe de Varshni (typique d'un semi-conducteur volumique), avec une torsion en forme de S.

De façon générale, les BQs et la CM ont des énergies d'activation quantifiable en température. Il est donc possible, en suivant les populations en équilibre, de pouvoir simuler les taux de transferts et d'émissions des états du système. Ainsi en acquérant une grande précision sur les positions en énergie et l'intensité intégrée de chaque famille en fonction de la température, Gélinas [11] arriva à bien expliquer la courbe des familles de BQs.

1.7.4 Photoluminescence résolue dans le temps (PLRT)

La PLRT consiste à exciter un échantillon avec un laser pulsé et d'observer à quel taux la photoluminescence décroît à une énergie d'émission donnée. Contrairement aux autres types de mesures précédents, la PLRT ne se produit pas en état d'équilibre, il y a toujours des précautions à prendre pour que la fluence ne soit pas trop élevée.

Conventionnellement, la PLRT est résolue en température ou à différentes énergies de détection. Dans le cadre de ce mémoire, la dynamique des porteurs a été mesurée suivant le pic maximal d'intensité de quelques familles de l'échantillon 148EP et 206 à différentes températures, ce qui a permis de connaître le temps de relaxation et les temps de vie dans les BQs et de suivre la dynamique au fur et à mesure que certains états de fuite devenaient accessibles. Par la suite les courbes obtenues ont été ajustées au modèle tel qu'il est décrit à la section 4.1.

1.8 Spécifications sur les échantillons

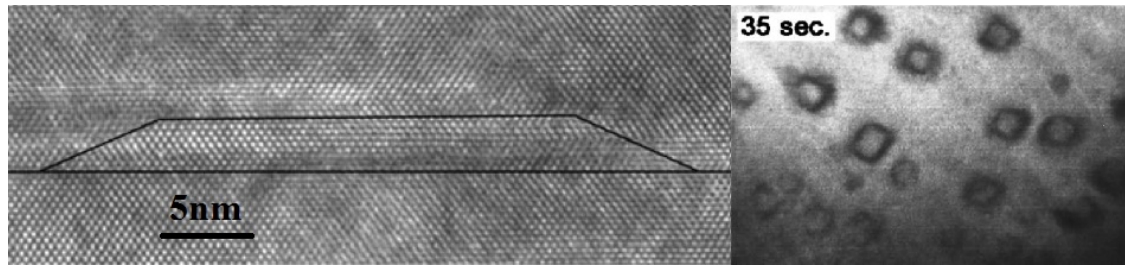


Figure 1.6 – Dans la figure de gauche, une mesure prise en HRTEM d'une BQ formée dans les mêmes conditions que l'échantillon 148EP, on remarque que la BQ est beaucoup plus large que haute, la figure est tirée de [28]. Dans la figure de droite, une mesure prise en TEM dans les conditions qui ont servi à l'échantillon 206, le 35 s se réfère au temps de formation des BQs lors de la croissance, la figure est tirée de [25].

1.8.1 Échantillon 148EP

L'échantillon 148EP, EP provenant de «edge piece», a crû sur un substrat tampon d'InP selon l'orientation (100) par épitaxie par faisceaux chimiques (CBE) ayant comme source du triméthylindium (TMI), du trihydrure d'arsenic (AsH_3) et de la phosphine (PH_3). Le AsH_3 et le PH_3 ont été dissociés à 850°C en alternant rapidement les injecteurs pour produire du As_2 et du P_2 majoritairement. Le substrat d'InP a crû à un taux de 0,56 MC/s pour les 100^{er} nm et à 0,33 MC/s pour un autre 50nm. Après une pause de 10 s, le AsH_3 et le TMI ont été injectés pour avoir 2,2 MCs d'InAs. Ensuite une pause de 30 s a été prise pour laisser à l'InAs le temps de s'agglutiner en BQ. A suivi une encapsulation lente d'InP de 27,5 nm à 0,15 MC/s et a été complétée par une croissance rapide de 82,5 nm d'InP à 0,86 MC/s. Pour avoir plus de détail, la recette provient de l'article de Robertson et coll. [28]. Plus spécifiquement, l'échantillon 148EP a été produit par Philip Poole au CNRC.

Huit familles de BQs ont été distinguées en PL, comme on peut le voir sur la figure 1.5. Il est à noter que les irrégularités de surface ont embrouillé la 1^{re} et la 2^e famille de sorte que l'on n'observe que la famille 1. La CM de 1 MC d'épaisseur a été identifiée en PLE à 1,30 eV pour l'état ee1-hh1 et 1,37 eV pour l'état ee1-lh1.

1.8.2 Échantillon 206

L'échantillon 206 a été fabriqué par épitaxie en vapeur aux organométalliques (MOVPE) avec du TMI, du butylarsine (TBA) et du tertiarybutylphosphine (TBP) comme précurseur et du palladium purifié au H₂ comme gaz porteur. Sur un substrat d'InP dopé au Fe selon l'axe (001), à une pression de 160 torr et à 600 °C, une couche tampon 100 nm d'InP a été déposée avec du TMI, du TBA et du TBP avec un taux respectif de 0,05 $\mu\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}$, 0,95 $\mu\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}$ et 3,5 $\mu\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}$. La température a été abaissée à 500 °C, pendant 90 s, puis 2,4 MCs d'InAs ont été crû entre ~ 20 MCs d'InP. Après être revenu à 600 °C, 30 nm d'InP a été ajoutés pour encapsuler le système. Il est à noter qu'un délai de 4 s a été respecté avant de laisser croître l'InP sur l'InAs afin de permettre aux BQs de se former. L'échantillon a été produit par Remo Masut à l'École Polytechnique. Pour plus de détails, on se réfère à l'article de Frankland et coll. [10].

Tout comme le 148EP, le 206 a 8 familles discernables en PL, comme on peut le voir à la figure 1.3. Dans le cas de l'échantillon 206, les familles sont moins bien contrastées que pour le 148EP. Toutefois ce n'est pas étonnant, puisque Lanacer et coll. [22] ont démontré, en se basant sur le modèle $\vec{k} \cdot \vec{p}$ et le modèle tight-binding, que dans cet échantillon il y avait de l'intermixage entre l'As et le P, ce qui a pour conséquence que l'on devrait plutôt parler de BQs d'InAs_{0,88}P_{0,12} dans le cas du 206. Les effets de ces impuretés dans le système se reflètent dans la position en énergie des BQs et de la CM, mais également dans le changement en température de ses états. La CM a été identifiée en PLE à 1,19 eV pour l'état ee1-hh1 et 1,31 eV pour l'état ee1-lh1, ce qui correspond à une épaisseur de 2 MC d'InAs.

CHAPITRE 2

EXPÉRIENCE D'ABSORPTION TRANSITOIRE

2.1 Cadre théorique

2.1.1 Principe de l'expérience

L'absorption transitoire (TA) est une expérience résolue en temps de type pompe-sonde consistant à sonder des états dans un matériau avec un laser à impulsion ultrabrève qui ont été préalablement excités par un laser pompe. Ce qui est obtenu lors des mesures est le signal transmis de la sonde avec et sans excitation de la pompe. La TA est donc un outil très puissant pour étudier des états bien précis ou l'ensemble des niveaux d'énergie si la sonde a un spectre continu.

Le but est d'étudier l'influence de pomper à une énergie fixe et de décrire le spectre d'absorption. Il est implicite que la sonde ne doit être qu'une perturbation et donc qu'il ne modifie pas à lui seul la dynamique d'émission du système. Ainsi, on relie l'absorption d'un matériau avec la transmission de la sonde avec la loi de Beer-Lambert:

$$A_\lambda = -\ln \frac{T}{T_0}, \quad (2.1)$$

où T est la transmission avec excitation, T_0 est la transmission sans excitation et A_λ est l'absorption du système. On peut aussi réécrire l'équation 2.1 par :

$$A_\lambda = -\ln\left(1 + \frac{\Delta T}{T}\right) \approx \frac{\Delta T}{T}, \quad \Delta T = T - T_0. \quad (2.2)$$

L'approximation est bonne dans la limite où $\Delta T / T < 10\%$. Il est démontrable que si les impulsions laser utilisées sont ultrabrève et que $\Delta T / T < 10\%$:

$$\frac{\Delta T}{T} \approx -\sum_{k,j} \sigma_{k,j} D \Delta N_k(t), \quad (2.3)$$

où $\sigma_{k,j}$ est la section efficace pour une transition du niveau $k \rightarrow j$, D est l'épaisseur de

l'échantillon et $\Delta N_k(t)$ est la différence de population d'un état k en fonction du temps entre la pompe et la sonde. Il est donc possible, en mesurant le signal avec et sans pompe, d'étudier la population des états en fonction du temps et de l'énergie d'excitation.

2.1.2 Transition possiblement mesurable en TA

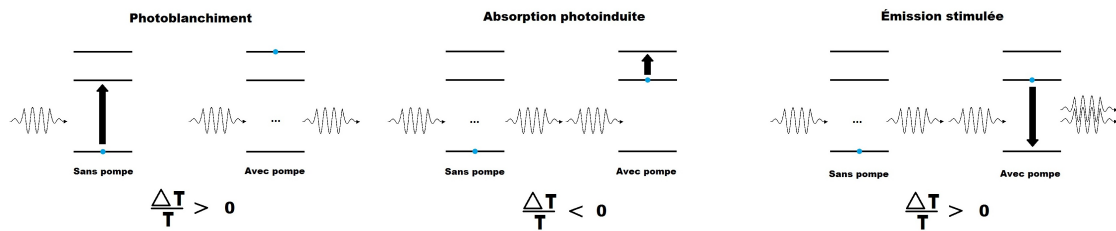


Figure 2.1 – Schéma des différentes transitions mesurables en absorption transitoire.

Avec des impulsions femtosecondes, trois types de processus peuvent être mesurés comme on le voit à la figure 2.1:

1. Le photoblanchiment provient de l'échantillon qui absorbe la sonde et la pompe va occulter cette transition, ce qui donne $\frac{\Delta T}{T} > 0$.
2. L'absorption photo-induite consiste à stimuler des états excités vers des états de plus hautes énergies et correspond à un $\frac{\Delta T}{T} < 0$.
3. L'émission stimulée est un accroissement de la sonde par l'émission stimulée d'état occupée par la pompe de même énergie, et donc $\frac{\Delta T}{T} > 0$.

Le cas des BQs d'InAs/InP a beaucoup de potentiel pour ce que la TA peut mesurer. Le taux de recombinaison de la CM, le taux de transfert de la CM vers les BQs, le taux de recombinaison des BQs et une étude complète des états excités des BQs (dépassant le cadre de ce mémoire) pourraient être envisagé comme expérience possible. Cependant les limites pratiques posées par le système proviennent des énergies de la sonde qui

peuvent être captées par les détecteurs Si et d'InGaAs (200 nm-2200 nm), ce qui limite la possibilité de mesurer les états excités des BQs qui sont séparés d'une centaine de meV des états de plus basse énergie. Il y a aussi la contrainte qui provient de la faible intensité des transitions qui oblige un peu à sonder les transitions les plus probables avant d'aller plus loin et donc les temps de vie des excitons dans les BQs

2.2 Montage expérimental

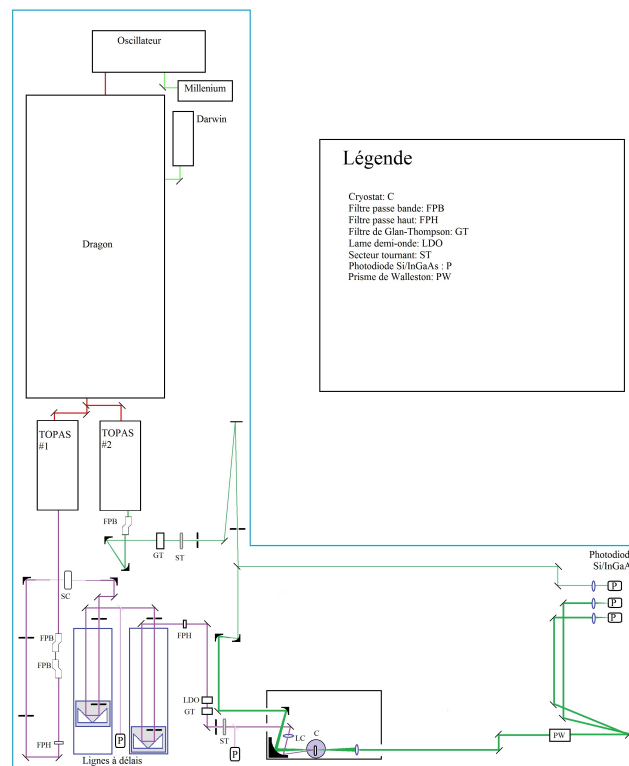


Figure 2.2 – Schéma du Montage d'absorption transitoire.

L'oscillateur est un laser Ti-saphir femtoseconde basé sur l'asservissement de phase «mode-locking» en mode passif. Il est pompé par un laser Nd:YVO₄ à 532 nm en continu (Millenium de Spectra Physics). À la sortie, on obtient des impulsions de 4 nJ de 10 à 30 fs à une fréquence de 90 MHz. Ensuite, le faisceau passe dans un amplifi-

icateur de signal (Dragon de KMLabs). Dans l'amplificateur, les impulsions sont étirées temporellement, puis une cellule de pockels sélectionne une impulsion par milliseconde (1KHz). Le laser passera 13 fois dans un cristal Ti-saphir pompé par un laser Nd:YLF à diode (Darwin de Quantronix) avec des impulsions de 15 mJ, de 150 ns synchronisées à 1 KHz, ce qui cause une inversion de population et donc une amplification du signal. Les impulsions sont ensuite recompressées pour obtenir à la sortie une puissance de 2W à un taux de 1KHz et une durée de 40 fs .

De ce faisceau, 80 % du signal sert à la pompe et 20 % à la sonde. Pour générer de bonnes longueurs d'onde, la pompe et la sonde passent dans un amplificateur paramétrique optique (Topas de Light Conversion). À l'intérieur, le laser passera dans un cristal non linéaire qui produit de la superfluorescence qui génère selon l'angle du cristal, 2 impulsions avec un accord de phase, qui seront amplifiées par plusieurs trajets. Ensuite avec du mixage constructif et destructif des 3 signaux, on obtient une large étendue de longueur d'onde. À la sortie du Topas, bien des énergies devront être filtrées, celle qui a la plus grande puissance est celle avec un accord de phase avec le faisceau, notée L_2 , et devra être filtrées dans le trajet.

Le faisceau pompe, à une énergie résonnante avec une famille de BQs, passera par une ligne à délai de 4 ns et plusieurs filtres passe-bandes. Le faisceau sonde quand à lui est à une énergie qui n'est pas absorbée par le système, mais vers lequel des états dans les BQs pourront faire du photoblanchiment. Le tableau suivant explicite les différents filtres utilisés et les énergies de la pompe et de la sonde. Des précautions ont été prises sachant que la PLMH du laser en énergie était de ~ 30 nm, tel que limitée par sa transformée de Fourier.

À la fin du trajet, la transmission est séparée en 2 faisceaux de polarisation parallèle et perpendiculaire à la sonde et est récoltée avec une photodiode silicium. Il est à noter que le silicium a un gap indirect à 1150 nm ce qui rend inefficace l'absorption pour les plus basses énergies et donc assure que le signal est nettoyé de la pompe.

Tableau 2.I – Comparaison entre les énergies de la pompe et de la sonde, les différents filtres passe-bandes et les énergies indésirables qu'il a fallu filtrer. Les données sont fournies en (nm/eV).

Faisceau	Énergie du faisceau	Filtres passe-bandes	Énergie indésirable
Pompe	$F_3=1403(0,884)$ $F_4=1323(0,937)$	$2X1130-1600(0,774-1,10)$ $>950(<1,30)$	$L=800(1.54)$ $L_2(F_3,F_4) \geq 1861(\leq 0,666)$
Sonde	$975(1,27)$	$955-1150(1.08-1,30)$ $>900(<1,38)$	$E_{CM} \leq 953(\geq 1,30)$ $E_{BQ} \geq 1126(\leq 1.1)$

où $F_{3,4}$ est l'énergie centrale des familles 3 et 4 de l'échantillon 148EP à 8K, L est l'énergie de la fondamentale du laser Ti-saphir, $E_{CM,BQ}$ est, respectivement, l'énergie du gap de la CM et de l'énergie de la 1^{ère} famille de BQs.

2.3 Résultats expérimentaux et analyse

Le but premier des expériences de TA a été de valider la pertinence de ce type de mesure pour l'étude des systèmes de BQs. Dans cette optique, des mesures consistant à étudier la population des BQs sont bien choisies pour trancher. Les mesures ont été opérées sur l'échantillon 148EP.

Ce qui a donc été inspecté est la transition entre les excitons de la famille 4 (signal pompe) et un état dans la matrice (sondé avec une énergie se situant entre la famille 1 et la CM). La sonde étant transparente au système, il est donc attendu que le produit est de l'absorption photoinduite et que le signal suive la population des BQs comme pour une PL résonnante.

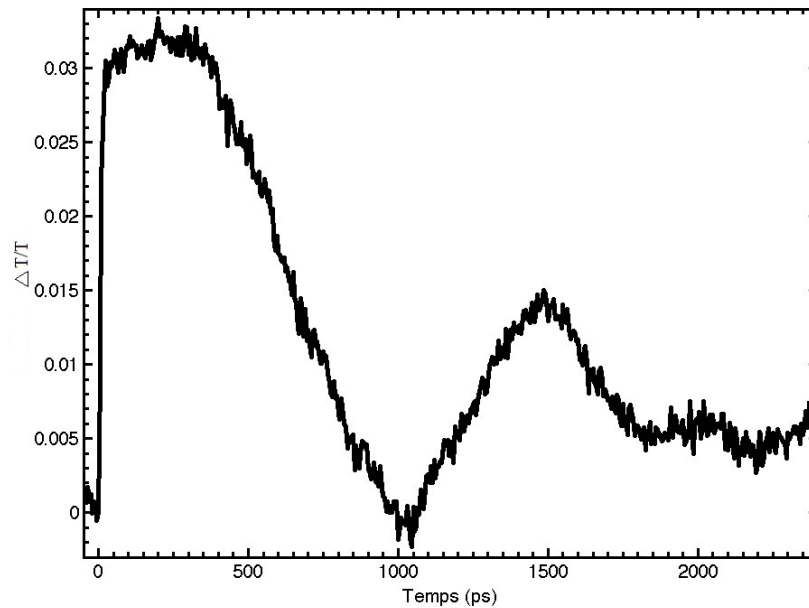


Figure 2.3 – Absorption transitoire de la famille 4 à 10 K de l'échantillon 148, où $\lambda_{pompe}=0,884$ eV et $\lambda_{sonde}= 1,27$ eV.

On observe à la figure 2.3 une des mesures typiques qui a été obtenue. Les oscillations sont identifiées comme étant un artéfact associé principalement à l'instabilité du laser Ti-saphir. La puissance à la sortie du Dragon aurait dû avoir une puissance de 2 W et n'en avait que 1.3 W. Conséquemment, il a aussi été identifié que le TOPAS utilisé pour la sonde était à la limite de son seuil de puissance ce qui jouait sur la stabilité du signal. Un défaut dans l'alignement des lignes à délais aurait pu provoquer ce genre de fluctuation, mais si l'on scrute de plus près, la deuxième ligne à délai ne bougeant pas avant 1500 ps après le T_0 , la dynamique montée-descente-montée dans cet intervalle ne peut être justifiée par un simple désalignement. Il a quand même été possible d'obtenir une série de mesures où les oscillations étaient partiellement occultées. La figure 2.4 nous permet de comparer qualitativement la TA de la famille 4 à basse température avec celle qui a été vue ultérieurement en PLRT. De façon générale, il n'a cependant pas été possible de répéter l'expérience.

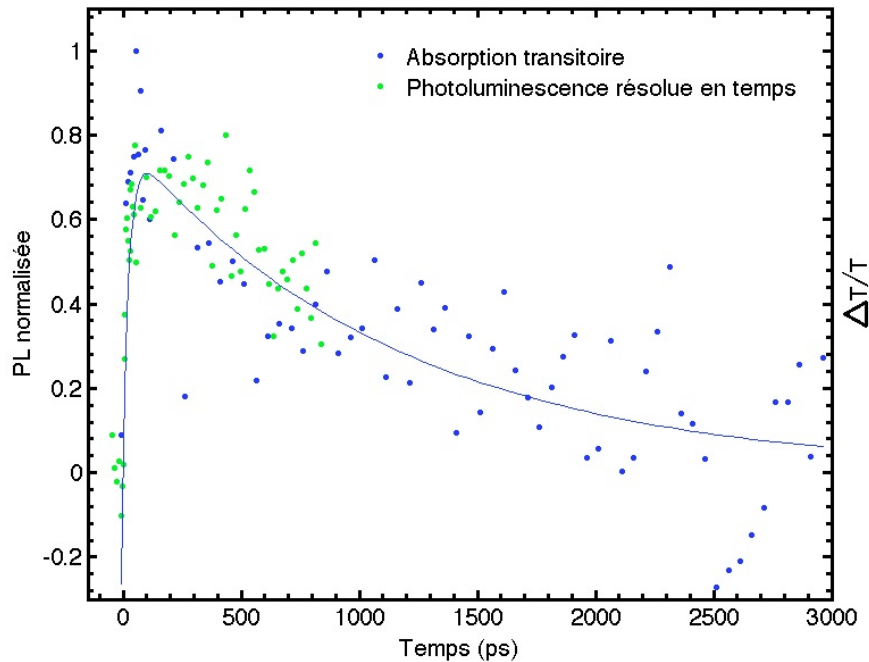


Figure 2.4 – PLRT et absorption transitoire de la famille 4 à basse température de l'échantillon 148.

2.4 Conclusion

Les mesures de TA n'ont pas eu le succès escompté. Le signal était au rendez-vous, mais l'instabilité du montage a empêché la poursuite d'une étude systématique des familles de BQs. Il serait intéressant d'envisager des mesures plus spécifiques tel le taux de transfert de la CM vers les BQs qui ne demanderaient à toute fin pratique qu'une seule mesure qui serait répétée et moyennée dans le temps pour enlever les oscillations. De plus, il n'est pas exclu qu'un système plus stable aurait fourni des spectres fiables. Conséquemment, la TA a été laissée de côté au profit de la PLRT, ce qui est l'objet du prochain chapitre.

CHAPITRE 3

EXPÉRIENCE DE PHOTOLUMINESCENCE RÉVOLUE DANS LE TEMPS PAR ADDITION DE FRÉQUENCES

3.1 Introduction: théorie de la PLRT par addition de fréquences

L'intérêt pour la spectroscopie en somme de fréquences a gagné dans les années 80 et 90 une forte popularité, car elle promettait d'avoir une résolution temporelle inférieure à 200 fs [32]. De plus, cette technique permet de sonder dans l'infrarouge proche où les photomultiplicateurs ne peuvent pas descendre en bas de 50 ps de résolutions et où les caméras à balayage de fente étaient limitées par le phosphore qui perd son efficacité vers 900 nm.

Mahr et coll. [20] ont été les premiers à avoir eu l'idée de faire de la photoluminescence en addition de fréquences (upconversion). Le concept se base sur le mixage de deux ondes pulsées; il y a excitation d'un échantillon avec une source pulsée et recueillement de la PL dans un cristal non linéaire qui se mixe avec une autre source pulsée pour créer, par effet non linéaire, un signal à la somme de fréquences. Ainsi, en faisant varier le retard entre le laser pompe et la PL, on obtient un signal de PLRT à haute résolution. Il doit avoir un bon recouvrement spatial et temporel, mais il n'y aura véritablement la création de la upconversion que si les 2 conditions suivantes sont remplies:

$$\nu_{PL} + \nu_{pompe} = \nu_{up} \quad (3.1)$$

$$\vec{k}_{PL} + \vec{k}_{pompe} = \vec{k}_{up} \quad (3.2)$$

L'équation 3.1 est simplement la conservation d'énergie lors de la génération de fréquences, il est donc aisé de connaître la longueur d'onde de la upconversion. L'équation 3.2 est la condition d'accord de phase et son influence est un peu moins aisée à comprendre.

Dans le cas d'un cristal non linéaire avec un axe ordinaire $n_x=n_y=n_0$ et extraordinaire $n_z=n_e$ (ce qui est le cas dans un cristal de LiIO_3) et où les deux faisceaux entrants sont coplanaires dans l'axe y , nous pouvons alors montrer que l'équation 3.2 donne une condition sur l'angle de sortie du faisceau de la upconversion par rapport à la PL. En effet, il est démontrable que l'indice de réfraction du signal sortant soit de la forme:

$$\frac{1}{n_{\lambda up}^2} = \frac{\sin^2 \theta}{n_{e,\lambda up}^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_{o,\lambda up}^2} \quad (3.3)$$

où θ est l'angle entre la PL et le laser, l'indice e et o réfère à l'axe ordinaire et extraordinaire et l'indice λup réfère à une longueur d'onde donnée de la upconversion, car l'indice de réfraction dépend de la longueur d'onde. On bâtit ainsi le vecteur d'onde de la upconversion comme étant:

$$|\vec{k}_{Up}|^2 = \frac{n_{\lambda up}^2}{\lambda_{up}^2} \quad (3.4)$$

par ailleurs on peut exprimer \vec{k}_{PL} et \vec{k}_{laser} dans le cristal par:

$$\vec{k}_{PL,pompe} = \frac{n_{PL,pompe}}{\lambda_{PL,pompe}} [\cos \theta_{PL,pompe}, -\sin \theta_{PL,pompe}] \quad (3.5)$$

où ici $\theta_{PL,pompe}$ représente l'angle du signal de la PL ou de la pompe par rapport à la PL avant le cristal. Ainsi, si l'orientation entre le vecteur \vec{k}_{Up} et $\vec{k}_{PL} + \vec{k}_{pompe}$ est calculée pour être toujours la même, nous avons donc alors accord de phase selon l'équation 3.2 si:

$$y(\theta) = \left| |\vec{k}_{up}|^2 - |\vec{k}_{PL} + \vec{k}_{pompe}|^2 \right| \text{ est minimum} \quad (3.6)$$

où $y(\theta)_{min}$ dépend finalement de la longueur d'onde de la PL et de l'orientation du cristal par rapport à la PL. Au final, avec une longueur d'onde de la pompe et un angle entre la PL et la pompe fixe, l'accord de phase implique qu'il y a une bijection entre la longueur d'onde de la PL et l'angle de sortie de la upconversion.

3.2 Montage de la upconversion

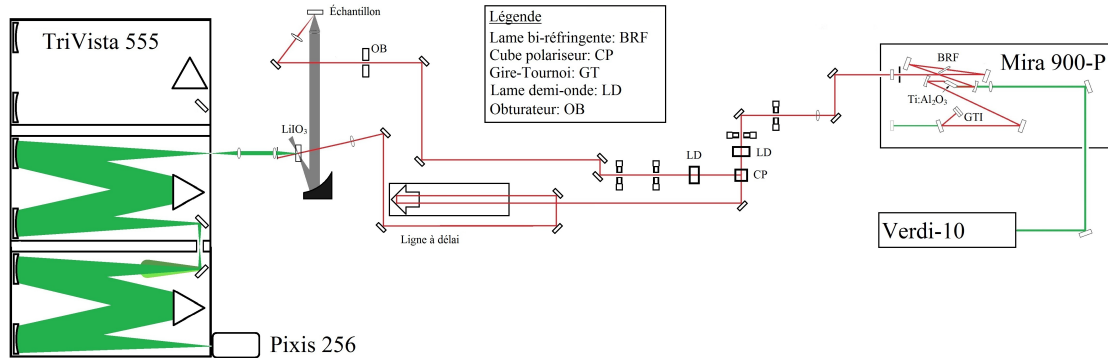


Figure 3.1 – Schéma de l'expérience de PLRT par somme de fréquences.

3.2.1 Source d'excitation

L'excitation des échantillons s'est faite avec un laser Ti-saphir (Mira 900-P de Coherent) pompé par un laser de Nd:YVO₄ (Verdi-10 de Coherent).

Techniquement, la puissance nominale du Verdi est de 10 W, mais comme les diodes à l'intérieur du laser étaient en fin de vie, il a fallu l'utiliser à 9.8 W et minimiser les variations d'intensité de courant.

Mira Optima 900-P

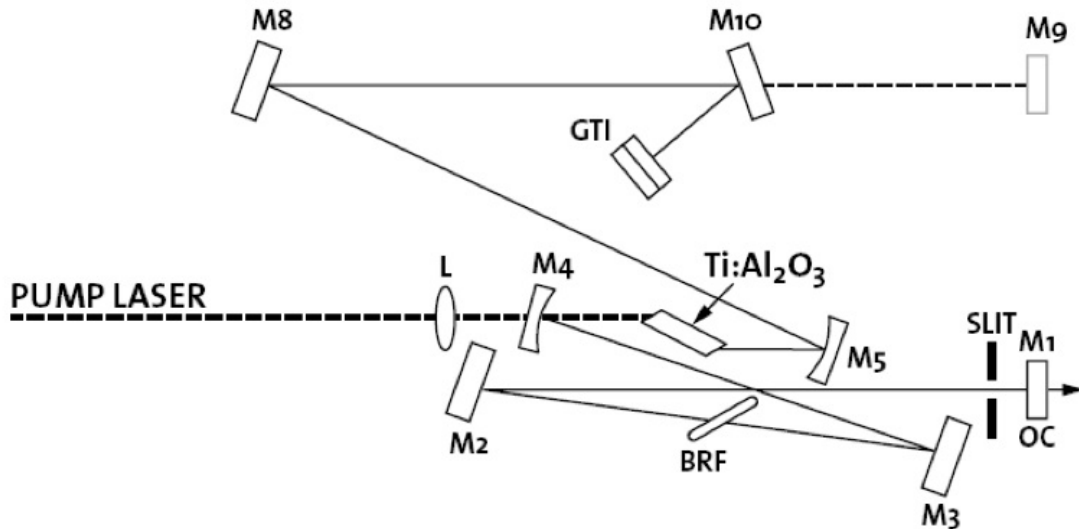


Figure 3.2 – Trajet optique du Mira 900-P, fourni par Coherent.

Le Mira 900-P est un laser Ti-saphir qui peut être utilisé en mode pulsé (avec une durée de 2 picosecondes) en utilisant l'asservissement de phase. La figure 3.2 fournie par Coherent montre le trajet optique. Il se base sur un interféromètre Gires-Tournois avec une lame biréfringente permettant de sélectionner une longueur d'onde centrale du laser. On peut ainsi utiliser le laser en mode continu avec une puissance allant jusqu'à 2 W. Ajuster la fente de sortie stimule l'effet Kerr qui se produit dans le Ti-saphir et le Gires-Tournoi compense la dispersion temporelle des impulsions, ce qui a pour conséquence l'asservissement de phase du laser en mode passif. De plus, un cristal papillon, lorsqu'agit, agrandit la longueur effective de la cavité ce qui stimule activement l'asservissement de phase (mode-locking). Il est également possible de le mettre en mode β -lock. Dans ce cas-ci le Gires-Tournoi reçoit une rétroaction et ajuste le miroir en début de cavité en continu pour garder le mode pulsé et compenser les légères agitations du laser, voir même quand on change la longueur d'onde de sortie.

La figure 3.3 montre la dépendance en puissance des énergies atteignables en bougeant la lame biréfringente en mode pulsé. Il est aussi utile de mentionner que la polarisation de sortie est horizontale, le taux de répétition est de 76 Mhz (période de ~ 13 ns) et le di-

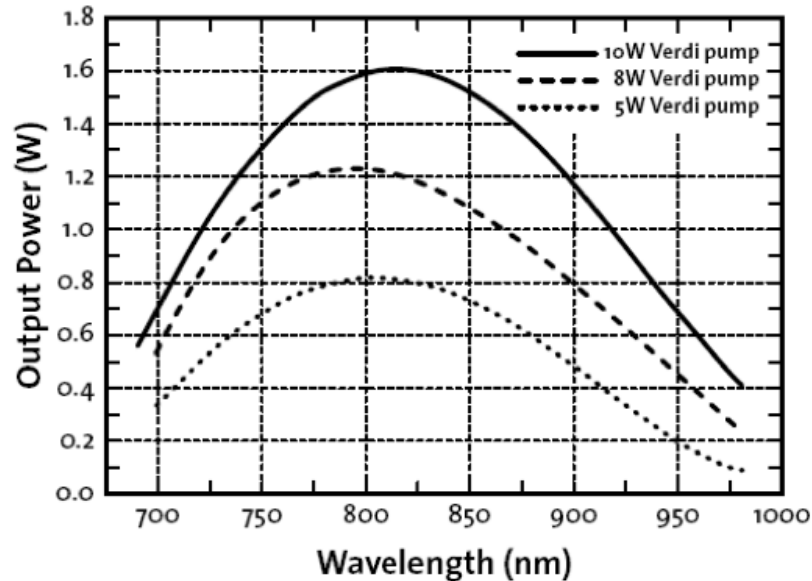


Figure 3.3 – Puissance qui peut être atteinte dans le Mira en fonction de la longueur d’onde, fournie par Coherent.

amètre de faisceau est de $0,8 \pm 0,1$ mm. Comme les temps de vie des excitons dans les BQs sont de l’ordre de la nanoseconde, il n’a pas été nécessaire d’employer le sélecteur d’impulsion.

3.2.2 Trajet optique

En sortant du Mira, la polarisation du laser était tournée et c’est là que le contrôle de la puissance d’excitation de la PL est fait . Le faisceau a ensuite passé par un cube polariseur qui a séparé la partie verticale pour pomper le cristal non linéaire et horizontale pour exciter l’échantillon.

Ensuite, le faisceau sonde a été envoyé sur l’échantillon et la PL a été focalisée sur un point focal de $\sim 50 \mu\text{m}$ de diamètre sur un cristal non linéaire de LiIO_3 . Le faisceau pompe a été quant à lui envoyé dans une ligne à retard de 1 ns et était focalisé sur le cristal avec un diamètre de $\sim 200 \mu\text{m}$ en recoupant le signal de PL. Par après, la upconversion a été récoltée par un spectromètre (TriVista 555 de Princeton Instruments). Le TriVista est monté sur une structure rotative qui a permis de récolter sélectivement la upconversion

au bon angle en coupant partiellement les signaux parasites provenant de la PL et du laser Ti-saphir.

3.2.3 Capture du signal

On observe à la figure 3.1 le trajet optique à l'intérieur du spectromètre. Le TriVista a été utilisé en mode double avec une focale totale de 1 mètre. 2 réseaux de 600 traits/mm ont été sélectionnés pour laisser passer respectivement au 3^e et 2^e ordre. Ce qui est optimal pour laisser passer un signal avoisinant les 500 nm tout en coupant la somme des fréquences du laser à 390 nm et ses 2^e et 3^e ordres dans le spectromètre à 780 nm et 1170 nm.

Finalement, le signal a été mesuré par une caméra (Pixis 256 de Princeton Instruments) composée de 256 X 1024 pixels offrant une résolution de $\sim 0,023$ nm par pixel. Seule une section efficace de 75 pixels de largeur a été sommée (ou 1,73 nm) pour chaque mesure, principalement pour optimiser le rapport signal/bruit.

3.3 Difficultés avec le montage

Contrairement à une simple mesure de PLRT, la spectroscopie par somme de fréquences est une expérience quantiquement inefficace. Voici donc une énumération des différents problèmes qu'il a fallu résoudre pour obtenir des spectres de upconversion.

- D'abord, on sait que théoriquement un cristal de LiIO_3 de 1 mm d'épaisseur a une efficacité de conversion de $\sim 1 \cdot 10^{-3}$ pour des signaux dans l'infrarouge .
- Chaque mesure est la convolution de la PLRT avec une impulsion de 2 ps à un temps fixe. Pour un temps de vie de 1 ns nous avons donc une réduction d'un facteur 500 du signal de la PLRT par rapport à la PL.
- Il faut se visualiser que le cristal est efficace sur une fenêtre de ~ 2 nm, ce qui assure un bon contrôle sur les énergies mesurées, mais réduit le signal effectif. Les familles de BQs ayant une largeur d'au moins 30 nm, on peut considérer un autre facteur 10 d'atténuation.

- Les mesures ont tous été produites avec et sans obturateur pour filtrer les fluctuations lentes du laser.

Il y a donc 7 ordres de grandeurs par rapport à une simple mesure de PL qui ont été perdus avant même d'envisager le montage.

D'autre part, il y a eu des contraintes techniques qu'il a fallu identifier et optimiser avant même de pouvoir observer autre chose que l'autocorrélation du laser avec lui-même.

- Tout le travail de bien coordonner la ligne à retardement, l'orientation du cristal, l'obturateur et le spectromètre a été très instructif et a permis de minimiser le plus possible de bruit.
- Aligner à la limite fournie par la largeur des faisceaux de la PL et du laser pompe, le cristal non linéaire pour qu'il soit dans l'axe de rotation du TriVista et du centre de rotation du cristal a demandé de l'ingéniosité. En effet, si des précautions n'étaient pas prises, l'alignement de collection de la upconversion se perdait lorsque l'angle du cristal changeait, car la focale de la PL et de la pompe ne se recoupaient plus dans le cristal d' LiIO_3 .
- Une lame demi-onde a été insérée à la collection pour compenser le TriVista qui transmet préférentiellement en polarisation verticale.
- Il a aussi fallu compenser le TriVista qui avait tendance à abaisser verticalement le signal vers la Pixis.

Avec tous ces arrangements, il a été possible d'obtenir dans de bonnes conditions de 10-30 comptes par seconde avec un bruit de ~ 10 comptes par seconde. Le bruit étant estimé à $\sqrt{\text{signal}_{\text{sans obturateur}}}$, il y avait donc ~ 6500 comptes de bruit blanc et de 1000 à 6000 comptes suite à la diffusion du laser. Une grande attention a été portée à bloquer cette dernière, car elle amenait parfois un billet qui faussait la upconversion mesurée.

Par ailleurs, la rétro-diffusion du laser sur l'échantillon a beaucoup éprouvée la stabilité de l'asservissement de phase du Ti-saphir, ce qui a limité la puissance d'excitation

de la PL. Il a aussi été noté que l'angle entre la PL et la normale du cristal non linéaire était critique ce qui imposait une limitation de ~ 200 nm sur la largeur de bande qui pouvait être sondée. Il a été possible d'optimiser cette contrainte en choisissant la longueur d'onde du laser à 780 nm où la upconversion est optimale à 1,01 eV comparée à 1,05 eV si le Mira avait été sélectionné à 800 nm, là où la puissance de sortie est maximale.

3.4 Régime d'excitation

Le but premier de l'expérience a été de mesurer le temps de vie des excitons dans les familles d'InAs/InP en fonction de la température, mais pour ce faire il a fallu s'assurer que le modèle restait valide et que l'on était dans un régime où il y a moins d'un exciton par BQ en moyenne. Cette condition est retrouvée si la PL est linéaire en fonction de la densité d'excitation.

Pour l'échantillon 148EP, il a été assumé qu'une puissance de 20 mW sur une focale de 200 μm de diamètre en continu était en régime linéaire, ce qui donne une fluence de $\sim 64 \text{ J}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$. Ensuite en le comparant avec des mesures où le laser est en mode pulsé, à une fréquence de 76 Mhz, ce qui implique une fluence de $\sim 0,8 \mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ par impulsion, on constate à la figure 3.4 qu'il n'y a pas eu de différence appréciable entre les 2 régimes. On en conclut donc qu'il n'y a pas eu de peuplement significatif de BQs avec plus d'un exciton, dû au caractère pulsé du laser.

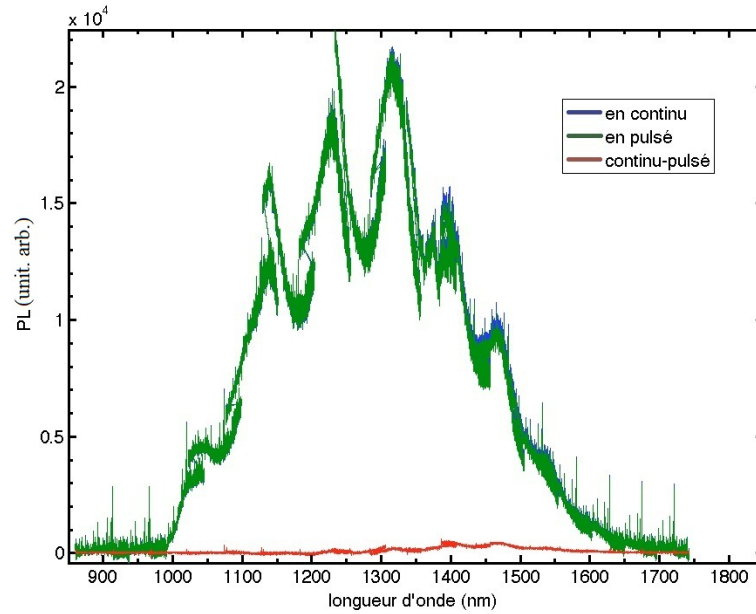


Figure 3.4 – Photoluminescence de l'échantillon 148EP à 14 K avec une source pulsée et non pulsée de 20 mW.

Par la suite, une dépendance en puissance d'excitation a été faite sur la famille 3 à 15 K. On observe sur la figure 3.5 qu'il y a deux régimes : linéaire et sous-linéaire. Les mesures ont été moyennées au maximum de la PLRT en somme de fréquences. L'excitation de la PLRT a donc été fixée à ~ 20 mW.

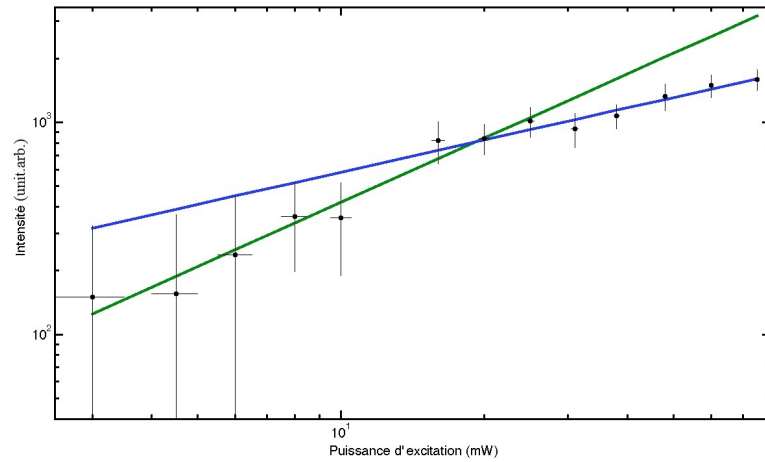


Figure 3.5 – Dépendance en puissance de l'échantillon 148EP à 14 K, la droite en vert a une pente de 1,00, ce qui équivaut à un régime linéaire et la droite en bleu a une pente de $\sim 0,5$ ce qui représente un régime sous-linéaire.

Pour l'échantillon 206, on se réfère à [23] où jusqu'à au moins $400\text{W}/\text{cm}^2$ la PL était en régime linéaire. Supposant que le régime pulsé n'apportait pas de changement à la dynamique, les 20 mW de puissance d'excitation semblent être encore une fois dans un régime linéaire.

3.5 Résolution temporelle

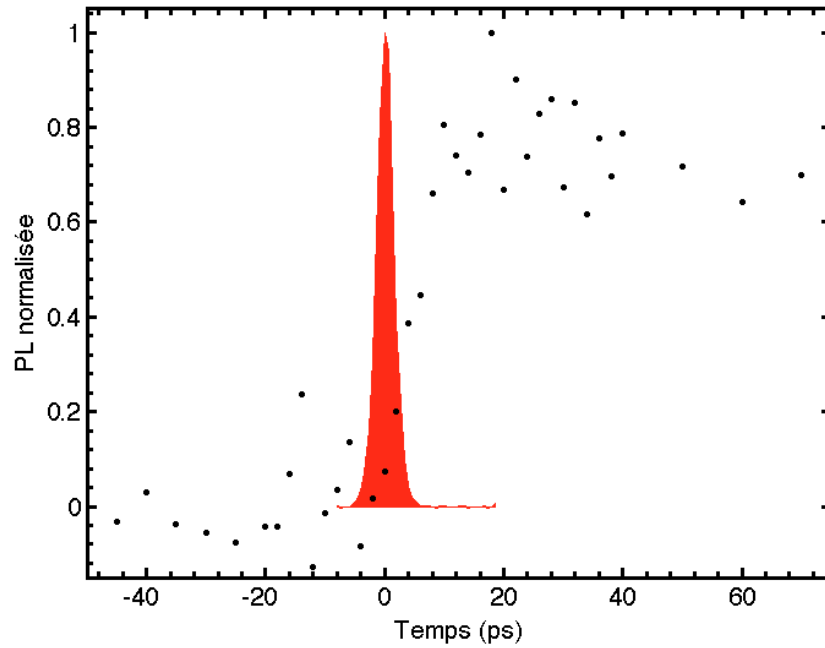


Figure 3.6 – La courbe avec des points est la PLRT de la famille 1 de l'échantillon 148EP à 15 K et la courbe pleine est l'autocorrélation du laser.

Afin de potentiellement tirer des conclusions du temps de relaxation des excitons vers les BQs, il est important de connaître la résolution temporelle du système. Lors de l'installation du montage de la upconversion, plusieurs mesures d'autocorrélation du laser ont été produites. D'après les spécifications de Coherent, la durée des impulsions est de ~ 2 ps, mais comme le voit à la figure 3.6, la PLMH de l'autocorrélation du laser était en upconversion de $\sim 3,3$ ps.

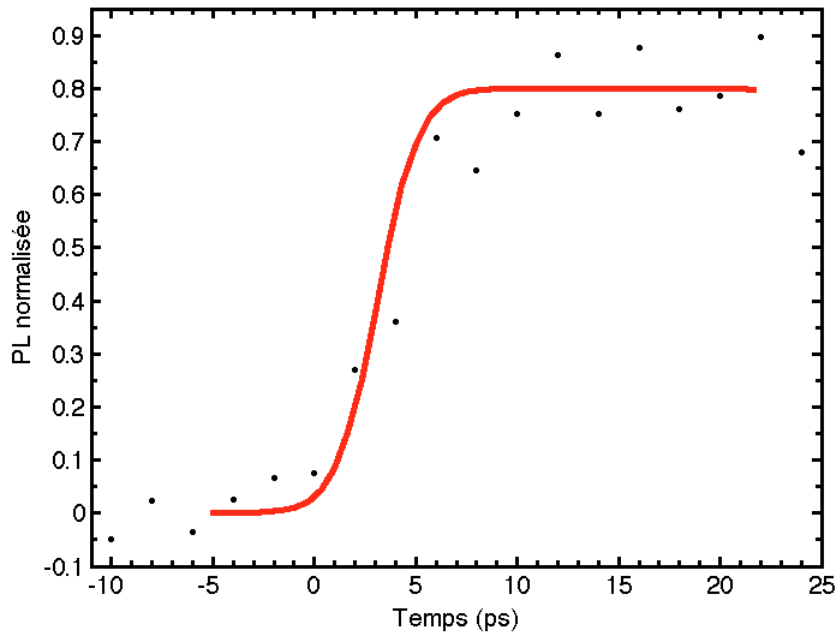


Figure 3.7 – La courbe avec des points est la PLRT de la famille 1 de l'échantillon 148EP à 15 K et la courbe pleine est la fonction de réponse du système, provenant de l'autocorrélation du laser ajustée pour l'amincissement consécutive à la convolution des signaux.

Mais cette mesure n'est pas directement la durée temporelle du laser. Sala et coll. [29] ont calculé que, pour des impulsions gaussiennes, il y avait un amincissement d'un facteur $1/\sqrt{2}$, ce qui correspondrait à un temps de 4,7 ps. Comme on le voit à la figure 3.7, les plus courts temps de montée sont de l'ordre de la résolution du système, ce qui ne rend pas pertinent l'ajustement sur la montée sur les basses familles. Pour les familles plus élevées, le temps variant de 7 à 12 ps, une déconvolution serait pertinente, mais n'a pas été fait pour ce mémoire. Dans les faits, les temps de montée ont été ajustés pour toutes les spectres, en supposant une excitation instantanée à $t=0$. Cette approximation est donc une source d'erreur, mais est limitée par le fait que l'influence de la résolution temporelle sur la déconvolution sera, dans l'espace de Fourier, comme le carré des temps de vies, ce qui fait que pour un temps de monté de 7 ps, après la déconvolution on aurait un temps de $\sqrt{7^2 - 5^2} \approx 5$ ps. Ce qui est acceptable, puisqu'il n'y a pas beaucoup de points pris à court temps, mais ceci empêche une étude systématique des temps de

montée.

CHAPITRE 4

MODÉLISATION ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

4.1 Modèle du bilan détaillé

4.1.1 Détails du modèle

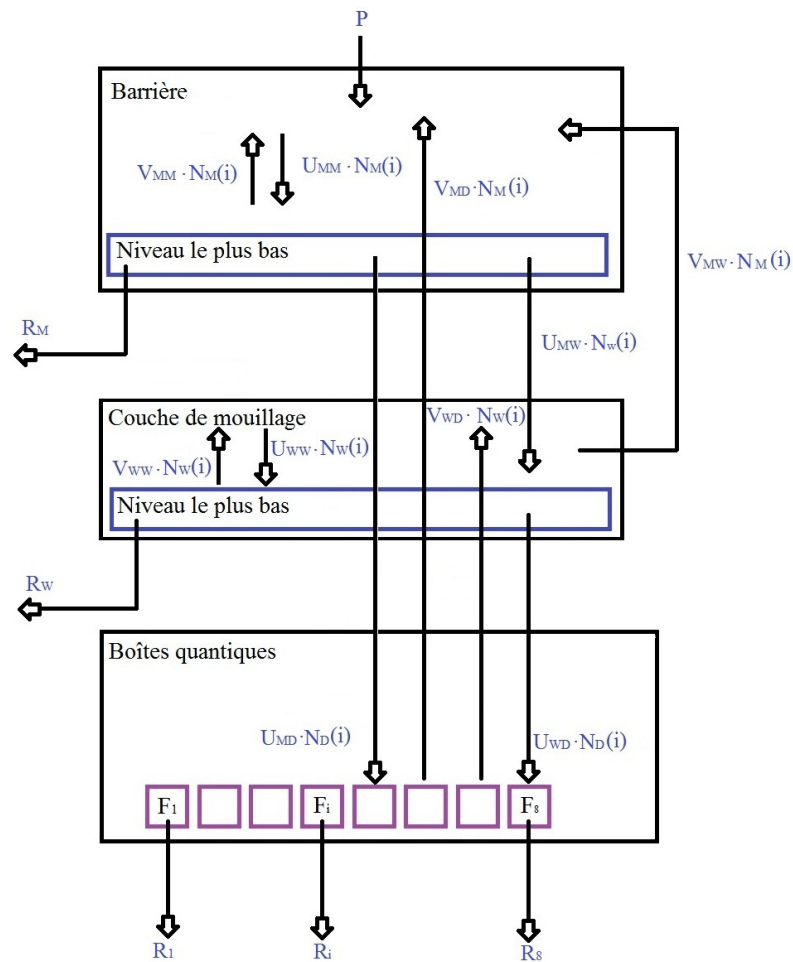


Figure 4.1 – Schéma du modèle de bilan détaillé.

À l'image de bien des modèles sur la dynamique de système de BQ, le modèle utilisé se base sur les équations du bilan détaillé. En posant des conditions hors équilibre, il est possible de reproduire l'état des familles résolues dans le temps. On voit à la figure

4.1 un schéma qui résume les transitions possibles dans le modèle. L'équation de bilan détaillé régissant le modèle est:

$$-n_i(t)R_i - n_i(t) \sum_{j \neq i} N_j U_{ij} + N_i \sum_{j \neq i} n_j(t) U_{ij} + P_i = \frac{dn_i(t)}{dt}, \quad (4.1)$$

où n_i est la population d'un état i à un temps t , R_i est le taux de recombinaison de cet état, N_i est le nombre d'état i accessible par unité de surface, U_{ij} est la section efficace de transfert d'un état i vers un état j , P_i est la génération de porteurs. Dans la figure 4.1, les fuites thermiques sont explicitement décrites par V_{ij} , où $V_{ij}=U_{ji}$, qui est donc la section efficace de fuite thermique d'un état j vers un état i et est relié à U_{ij} par:

$$U_{ji} = U_{ij} e^{V_j \frac{E_j - E_i}{kT}} \quad \text{si } E_j < E_i, \quad (4.2)$$

ce qui est typique d'une fuite thermique.

Les densités d'états pour une BQ étant un delta de Dirac, la densité de BQ est estimée à 10^{10} BQs/cm² et le nombre d'états disponibles, N_{Fi} est distribué à chacune des familles selon leurs intensités intégrées à basse température. Pour la CM, la densité d'états étant celle d'un puits quantique est de $D_w(E) = \frac{m_X^* \ln A_s}{\hbar^2 \pi}$ tel que défini dans la section 1.2.2 et donc le nombre d'états disponibles est de $N_{CM}(E, E+\Delta E) = D_w(E) \Delta E$. Pour la matrice composée d'une densité volumique d'InP, la densité d'états est telle qu'à l'équation 1.2 et donc le nombre d'états entre une énergie E_i et $E_i + \Delta E$ est l'intégrale de $D(E)$:

$$N_M(E_i, E_i + \Delta E) = \frac{2^{3/2} m_X^{InP \frac{3}{2}} l_m}{\pi^2 \hbar^3} [(E_i + \Delta E_M - E_{gap}^M)^{3/2} - (E_i - E_{gap}^M)^{3/2}], \quad (4.3)$$

où l_m est l'épaisseur de la matrice, E_{gap}^{InP} est l'énergie du gap de l'InP et m_X^{InP} est la masse effective des excitons dans l'InP. Afin de simplifier le modèle sans perdre d'information, les paramètres ajustables ont été définis tels que mentionnés dans [11]:

$$R_i = \begin{cases} R_{D_{Fi}} \text{ est le temps mesuré des familles de BQ à basse température,} \\ R_W \text{ pour le plus bas segment de la CM,} \\ R_M \text{ pour le plus bas segment de la M,} \\ 0 \text{ pour les autres états,} \end{cases} \quad (4.4)$$

$$v_i = \begin{cases} v_D \text{ pour les familles de BQs,} \\ 1 \text{ pour les autres états,} \end{cases} \quad (4.5)$$

$$P_i = \begin{cases} \delta(t_0) \text{ pour le } 1^{er} \text{ segment de la matrice} \end{cases} \quad (4.6)$$

$$U_{ij} = \begin{cases} 0 \text{ si } i \text{ et } j \in \text{familles de BQs} \\ U_{WD} \text{ si } i \in \text{CM et } j \in \text{familles de BQs} \\ U_{MD} \text{ si } i \in \text{Matrice et } j \in \text{familles de BQs} \\ U_{MW} \text{ si } i \in \text{Matrice et } j \in \text{CM} \\ U_{WW} \text{ si } i \text{ et } j \in \text{CM} \\ U_{MM} \text{ si } i \text{ et } j \in \text{Matrice} \end{cases} \quad (4.7)$$

Il a aussi été pris en compte que l'énergie du gap de la matrice et de la CM suivait une dépendance de Varshni. Le temps de vie radiatif des BQs a été directement mesuré en prenant un spectre de PLRT à l'énergie centrale du pic gaussien de la famille et il a été posé que les éléments U_{WW} et U_{MM} étaient très rapides avec un taux de transfert de 500 Ghz. Ainsi, le modèle se retrouve avec 6 paramètres libres: $U_{MD} \cdot N_D$, $U_{MW} \cdot N_W$, $U_{WD} \cdot N_D$, R_W , R_M et v . Il est d'ailleurs implicite que $R_W = R_{W_{\text{radiatif}}} + R_{W_{\text{nonradiatif}}}$ et $R_M = R_{M_{\text{radiatif}}} + R_{M_{\text{nonradiatif}}}$ et que les fuites non radiatives ne changent pas significativement en température de sorte qu'on les considère comme constantes. On suppose également que les temps de vie radiatifs des BQs sont constants en température, ce qui est une bonne approximation puisqu'on s'attendrait à ce que les changements provenant des fuites thermiques soient grandement dominants. Enfin, la relaxation intra-BQ est

supposée très rapide et ne devrait pas influencer sur le système.

4.1.2 Passage à la résolution temporelle du modèle

Essentiellement, pour connaître de façon résolue dans le temps les états du système de BQs, on doit résoudre une équation de type:

$$-\vec{p}(t, T) \overleftarrow{M}(T) = \frac{\delta \vec{p}(t, T)}{\delta t}, \quad (4.8)$$

où \vec{p}_i est la population de tout les états en fonction du temps (t) et de la température (T) et $\overleftarrow{M}(T)$ est la matrice de transfert contenant tous les éléments de l'équation 4.1. Nous pouvons donc affirmer que pour des temps arbitrairement courts:

$$\begin{aligned} \vec{p}(t_0 + \Delta t, T) &\approx \vec{p}(t_0, T) \left(1 + \frac{\delta \vec{p}(t_0, T)}{\delta t} \Delta t\right) \\ &= \vec{p}(t_0, T) (1 - \overleftarrow{M}(T) \Delta t) \end{aligned} \quad (4.9)$$

Par ailleurs, on peut montrer par induction que si $n \in \mathbb{N}$:

$$\begin{aligned} \vec{p}(t_0 + n\Delta t, T) &\approx \vec{p}(t_0, T) (1 - \overleftarrow{M}(T) \Delta t)^n \\ &= \vec{p}(t_0, T) \left(1 - \frac{\overleftarrow{M}(T) \Delta t n}{n}\right)^n \end{aligned} \quad (4.10)$$

Si on pose $n = \frac{t}{\Delta t}$ et on passe à la limite où $n \rightarrow \infty$ l'équation 4.10 peut se réécrire:

$$\vec{p}(t_0 + t, T) = \vec{p}(t_0, T) e^{-\overleftarrow{M}(T)t}, \quad \text{où } \vec{p}(t_0, T) = [P^X 0 \dots 0], \quad (4.11)$$

où P^X est la population initiale d'excitons injectés. Ainsi sans faire d'approximation sur le pas de temps, on peut, avec une matrice de transfert bien définie, connaître tout le système résolu en temps et en température.

4.2 Résultats expérimentaux

4.2.1 Échantillon 148EP

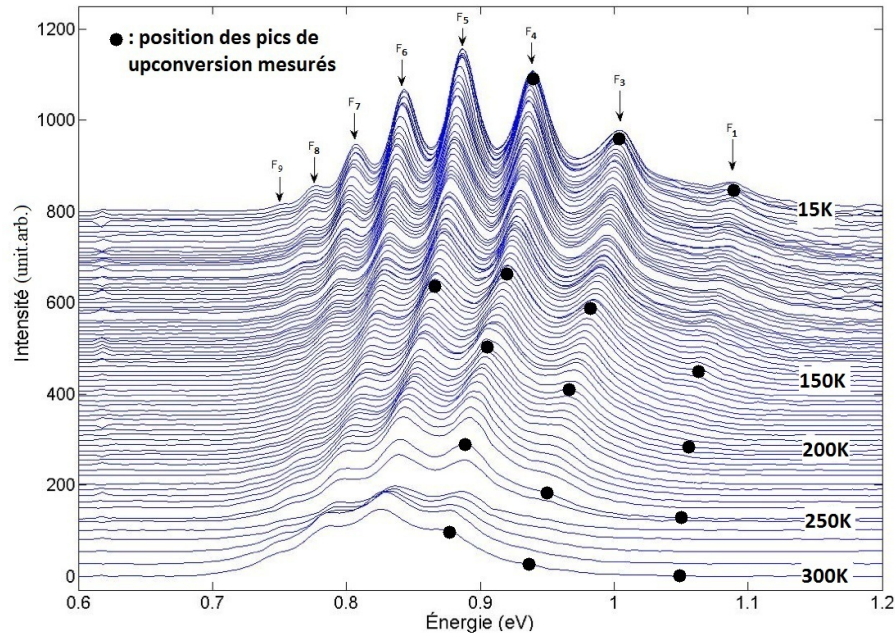


Figure 4.2 – Schéma des mesures de PLRT qui ont été produites sur l'échantillon 148EP. Les points représentent à quelles températures les familles de BQs ont été mesurées en PLRT et les courbes sont la PL résolue en température, tiré de [12].

Pour l'échantillon 148EP, tel qu'on peut le voir sur la figure 4.2, la PL résolue en température a été suivie en PLRT sur les familles 1, 3 et 4 de 15 K à 300 K. Comme il a été expliqué plus haut, il y avait une gamme spectrale atteignable en somme de fréquence avec le cristal de LiIO_3 , ce qui a empêché de pouvoir sonder les plus basses énergies.

Il est à noter que chacun des spectres a été mesuré sur 20 heures et selon une efficacité quantique (attribuable au cristal non linéaire) non constante. Il a donc fallu normaliser les intensités intégrées des mesures de PLRT avec celles faites avec un ajustement gaussien des pics en fonction de la température et des familles de BQ [11]. Ainsi, si l'on somme l'intensité intégrée de toutes les familles à 10 K nous obtenons 1, ce qui facilite grandement la simulation, car les fuites thermiques sont virtuellement inhibées à cette température.

Pour calculer l'intensité intégrée, un modèle empirique multiexponentiel a été appliqué à chacun des spectres selon cette équation:

$$PL_{Fi,T}^0(t) = (1 - e^{-t/\tau_1})(Ae^{-t/\tau_2} + Be^{-t/\tau_3}). \quad (4.12)$$

L'ajustement avec une exponentielle de descente était excellent pour toutes les familles de l'échantillon 148EP et 206, excepté pour la famille 1 du 148EP à 15 K, 150 K où 2 exponentielles reproduisaient mieux les courbes de PLRT. Ensuite, les spectres ont été normalisés par:

$$PL_{Fi,T}^0(t) = \frac{PL_{Fi,T}^0(t)}{\int_0^\infty PL_{Fi,T}^0(t) dt} \cdot C_{Fi,T}, \quad (4.13)$$

où $C_{Fi,T}$ représente l'intensité intégrée pour la famille i à une température T . Il est à noter que la normalisation suppose une excitation instantanée, mais comme l'ajustement est bon pour chaque spectre et que la PL à un temps t est toujours proportionnelle à la population de cet état, on est certain que l'intensité intégrée est en accord avec ce qui a été obtenu par Gélinas [12].

Dans le tableau 4.I on voit les temps de relaxation et de fuite qui ont été ajustés aux différents spectres pour renormaliser les pics. Les 3 prochaines figures montrent les spectres de PLRT.

Tableau 4.I – Temps de relaxation et de fuite mesurés pour chaque spectre dans l'échantillon 148EP, les temps inscrits ($\tau_2, \tau_3/\tau_1$) (ps) proviennent de l'équation 4.12.

Famille de BQ	15 K	150 K	200 K	250 K	300 K
Famille 1	668,68/5	347,71/7	114/10	123/10	100/5
	$\pm(2)$	$\pm(2)$	$\pm(14/2)$	$\pm(14/2)$	$\pm(14,2)$
Famille 3	520/5	440/7	410/7	440/7	390/6
	$\pm(100/2)$	$\pm(40/2)$	$\pm(30/2)$	$\pm(50/2)$	$\pm(50/2)$
Famille 4	1500/10	1170/6	900/10	670/7	552/8
	$\pm(900/5)$	$\pm(150/2)$	$\pm(110/2)$	$\pm(120/3)$	$\pm(160/5)$
Famille 5	———	1350/6	———	———	———
		$\pm(300/3)$			

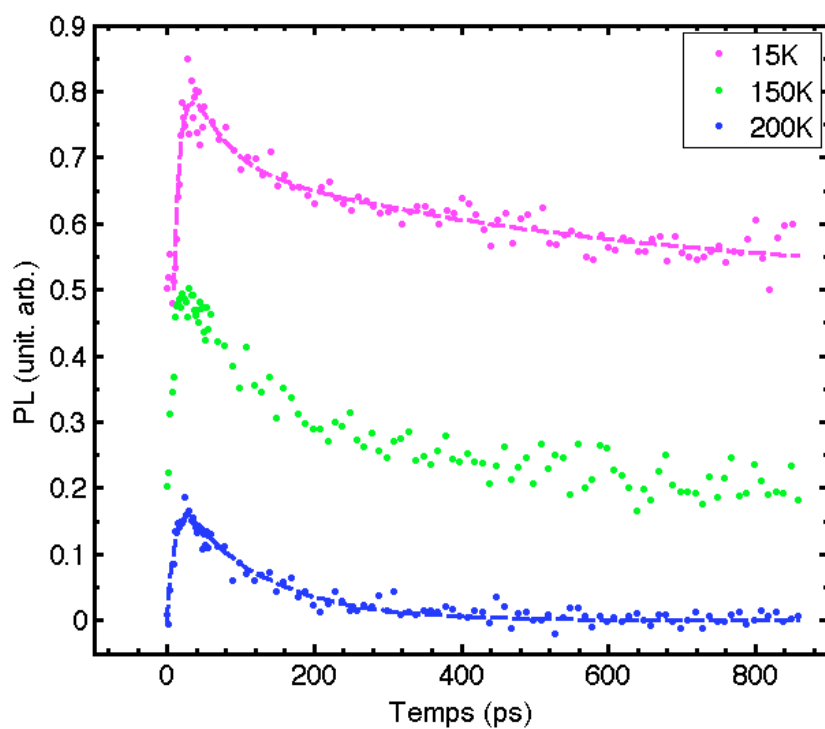


Figure 4.3 – PLRT de la famille 1 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.

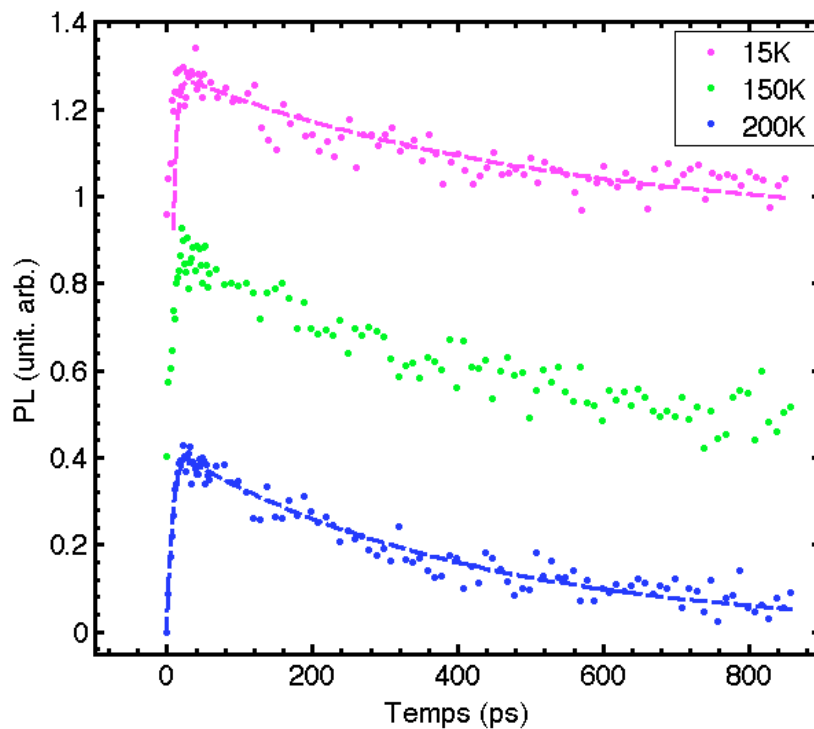


Figure 4.4 – PLRT de la famille 3 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.

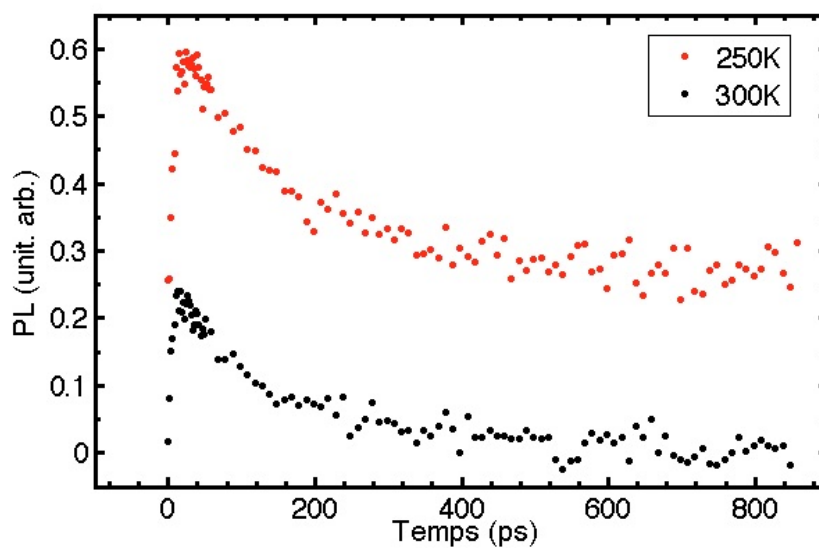


Figure 4.5 – PLRT de la famille 1 + la famille 3 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.

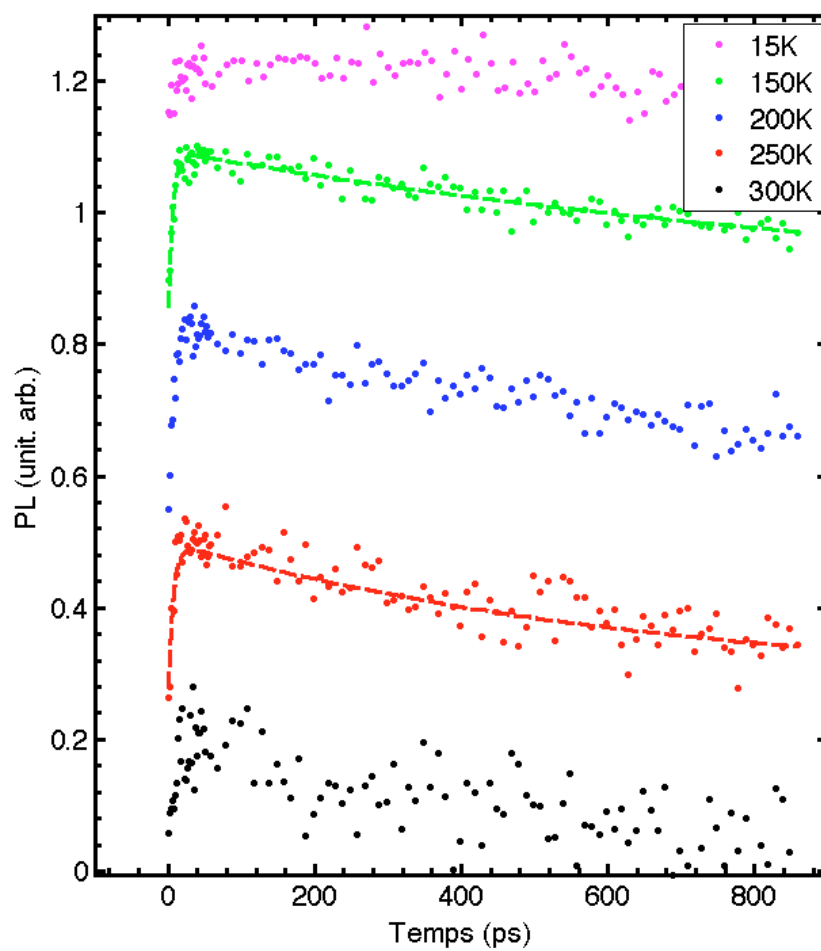


Figure 4.6 – PLRT de la famille 4 de l'échantillon 148EP en fonction de la température.

Dans les faits, à 250 K et 300 K l'ajustement gaussien fait par G elinas [11] sur la famille 3 inclut  galement celui fait sur la famille 1, qui elle n'a pas  t  ajust e en raison de sa faible intensit  int gr e. Cependant, une faible intensit  int gr e est compatible avec un haut signal ayant un court temps de vie, ce qui est observ . Des pr cautions ont  t  prises pour que les mesures de la famille 1 et 3 soit produites sans r aligner le syst me entre les 2 prises de mesures et le signal a  t  stable durant les 2 journ es que cela a dur . Comme les intensit s int gr es de la famille 1 sont inconnues, elles ont  t  pr sent es   la figure 4.5 directement somm es   la famille 3.

4.2.2  chantillon 206

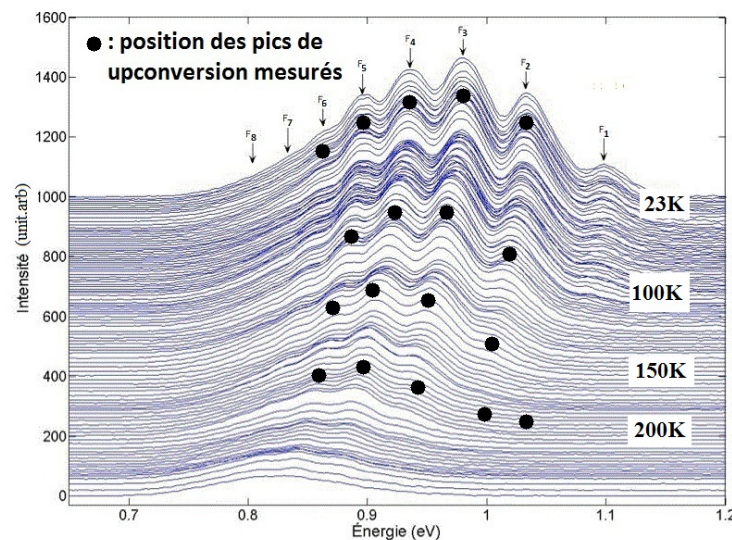


Figure 4.7 – Sch ma des mesures de PLRT qui ont  t  produites sur l' chantillon 206. Les points repr sentent   quelles temp ratures les familles de BQs ont  t  mesur es en PLRT et les courbes sont la PL r solue en temp rature, tir  de [12].

Pour l' chantillon 206, 4 familles ont pu  tre suivies sur 4 temp ratures, telles que montr es   la figure 4.7. Comme l' nergie de la CM a  t  identifi    1,19 eV, contrairement   1,30 eV pour le 148EP, il a  t  inspect  que la dynamique allait  tre grandement r v l e   moyenne temp rature. Les 4 figures suivantes montrent les spectres des familles 2   5 en fonction de la temp rature. Pour cet  chantillon, il y a aussi eu une

renormalisation des pics intégrés avec les intensités telles que mesurées en PL résolue en température. Cette renormalisation étant fait sur des pics moins bien définis que pour le 148EP, il ne faut pas perdre en tête qu'il y a des erreurs systématiques provoquées par les intensités calculées dans la référence [12].

Il est à noter que la famille 6 à 23 K et la famille 1 à 200 K ont aussi été mesurées, mais n'ont pas été incluses dans le modèle vu le manque de suivi possible en température. La famille 6 étant incorporée au modèle en tant que R_{F6} et était de facto ajustée à toutes les mesures. La famille 1 n'ayant plus d'intensité intégrée à cette température, il était inutile d'ajouter cette mesure de « bruit » aux ajustements. Finalement, la mesure à 23 K de la famille 2, a été rejetée des ajustements parce que la qualité de la mesure était médiocre, ce qui provoquait un bruit avant le temps zéro qui était trop grand pour bien ajuster l'intensité de la PL.

Tout comme pour l'échantillon 148EP, le tableau suivant présente les taux de relaxation et de fuite des BQs mesurés pour le 206.

Tableau 4.II – Temps de relaxation et de fuite mesurés pour chaque spectre dans l'échantillon 206, les temps inscrits (τ_2, τ_1) (ps) et proviennent de l'équation 4.12

Famille de BQ	23 K	100 K	150 K	200 K
Famille 1	—	—	—	250/5 $\pm(30/2)$
Famille 2	—	700/16 $\pm(130/5)$	510/10 $\pm(40/2)$	350/8 $\pm(20/2)$
Famille 3	690/12 $\pm(30/1)$	580/6 $\pm(40/1)$	740/5 $\pm(45/1)$	662/6 $\pm(30/1)$
Famille 4	1020/7 $\pm(70/2)$	740/5 $\pm(70/2)$	530/20 $\pm(80/2)$	500/10 $\pm(80/2)$
Famille 5	730/10 $\pm(60/2)$	660/6 $\pm(80/2)$	740/10 $\pm(110/2)$	820/6 $\pm(200/3)$
Famille 6	1170/7 $\pm(140/2)$	—	—	—

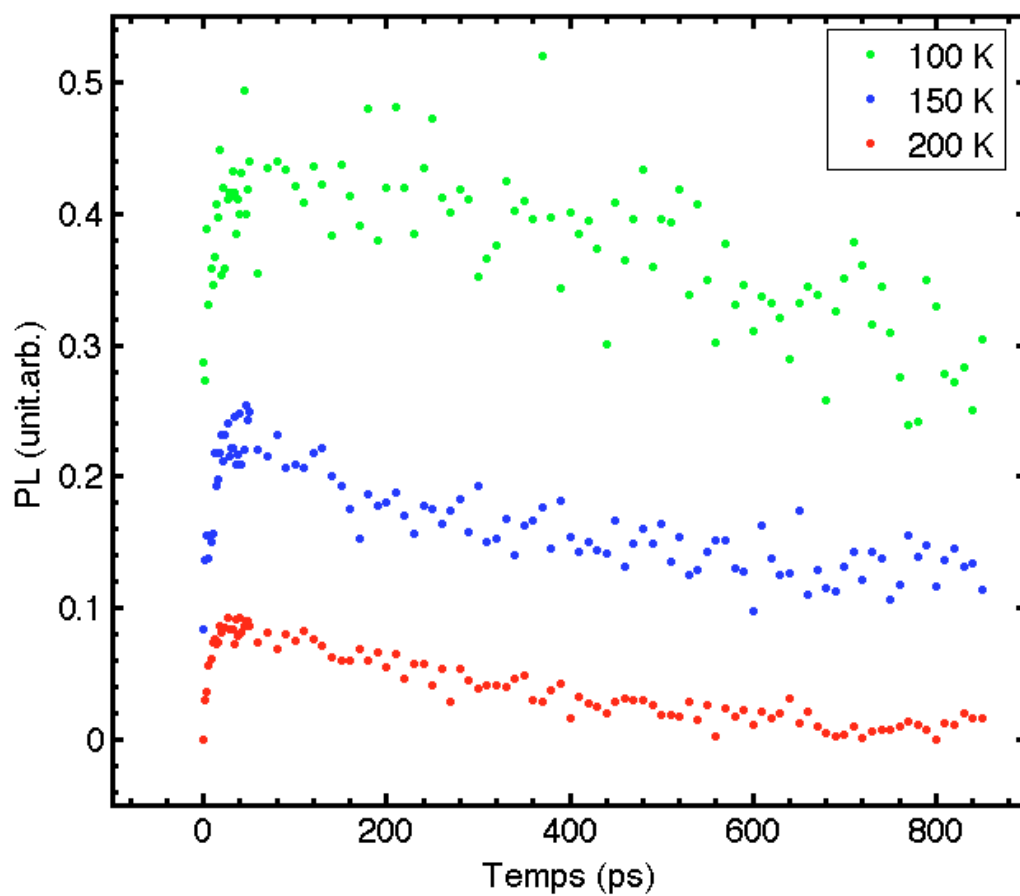


Figure 4.8 – PLRT de la famille 2 de l'échantillon 206 en fonction de la température.

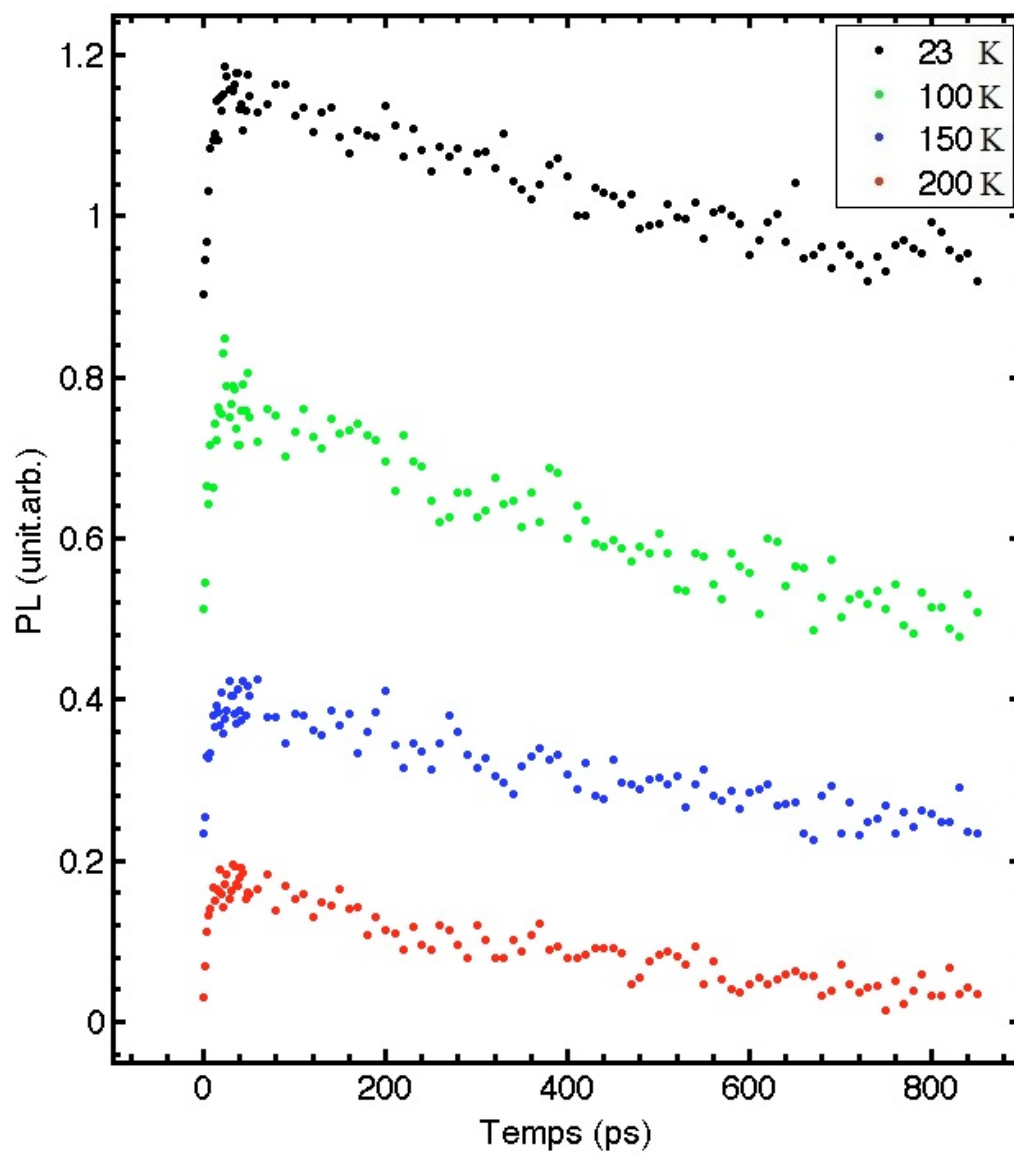


Figure 4.9 – PLRT de la famille 3 de l'échantillon 206 en fonction de la température.

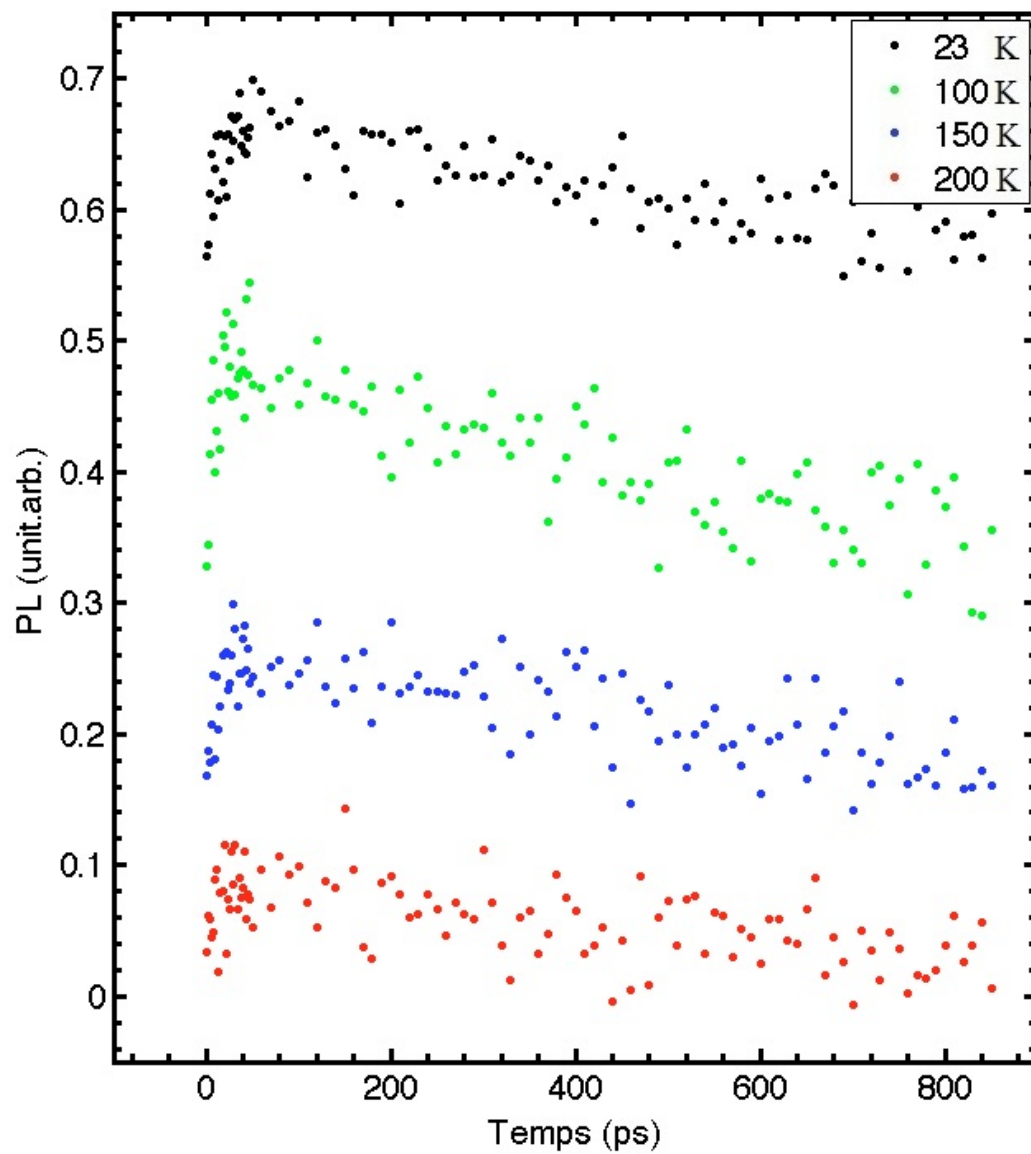


Figure 4.10 – PLRT de la famille 4 de l'échantillon 206 en fonction de la température.

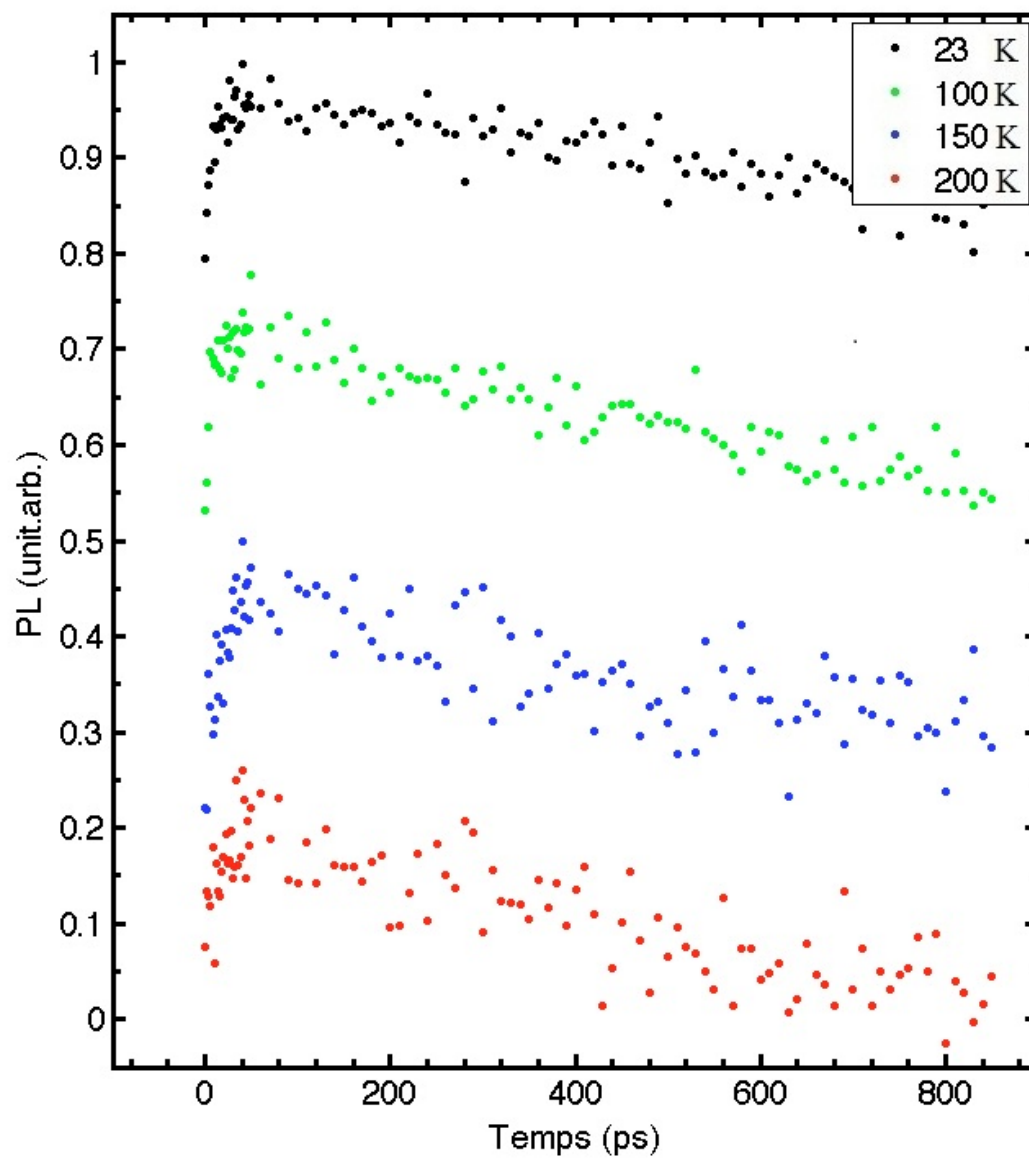


Figure 4.11 – PLRT de la famille 5 de l'échantillon 206 en fonction de la température.

4.3 Application du modèle aux échantillons 148EP et 206

4.3.1 Analyse de l'échantillon 148EP

Les mesures étant produites sur un petit échantillonnage de température, il n'a pas été possible de déterminer avec la même précision les paramètres $R_W, R_M, U_{MD} \cdot N_D, U_{MW} \cdot N_W$ et $U_{WD} \cdot N_D$ dans la référence [11]. Ce n'est pas que le modèle est simplement inefficace, mais plusieurs mécanismes de relaxation peuvent s'ajuster pour compenser de façon à obtenir une même intensité intégrée.

Ainsi, un $U_{MW} \cdot N_W$ très faible laisserait au paramètre $U_{MD} \cdot N_D$ le rôle de remplir les BQs et le paramètre $U_{WD} \cdot N_D$ la possibilité de fuir en haussant la température. Par contre, si le paramètre $U_{MW} \cdot N_W$ est actif, on doit avoir un paramètre $U_{WD} \cdot N_D$ qui compense pour la relaxation et un $U_{MD} \cdot N_D$, actif dans les fuites à haute température. De plus, à tout cela R_M et R_W ont à être ajustés pour que les transferts entre les familles s'agencent bien avec la baisse en intensité intégrée de la somme des familles, qui est posée à 1 à 0 K, car essentiellement toutes les pertes en intensité intégrée des BQs proviennent de ses 2 paramètres.

Énumérer les différents scénarios seraient long et inutile, mais si l'on comprend bien l'équation 4.1, ces 5 paramètres, s'ils reflètent bien les courbes à basses températures et gardent les plus hautes familles stables en intensité (c'est à dire sans avoir trop de fuite ne provenant pas des BQs), n'ont pas trop d'influence sur le changement en température des temps de vie des plus basses familles et c'est là que le paramètre ν va s'avérer le plus critique.

L'optimisation a été faite en minimisant le χ^2 entre les courbes théoriques et les spectres de PLRT tels que présentés à la section 4.2.1. Afin de mieux suivre l'influence sur le χ^2 du paramètre ν , l'optimisation a d'abord été faite en variant les 6 paramètres avec des contraintes réalistes, par exemple avec le taux radiatif de la CM, R_W , inférieur à 10000 GHz. Ensuite partant de ce minimum global, le minimum a été suivi en optimisant pour un paramètre ν fixé allant de 0,30 à 1,00 par pas de 0,01. Ce faisant, les optimisations décrivent une translation d'une dynamique vers une autre de façon continue. Il ne sera pas montré explicitement, mais entre les ajustements obtenus allant de

ν fixé à 0,30 jusqu'à ν fixé à 1, les paramètres changent tous de façon monotone, et ce, pour l'échantillon 148EP et le 206.

Les 4 prochaines figures présentent le meilleur ajustement obtenu en fixant le paramètre ν à 0,35, 0,5 et 1 et selon les paramètres fournis par les ajustements sur les spectres de PL en continu résolu en température provenant de l'article de Gélinas et coll. [11].

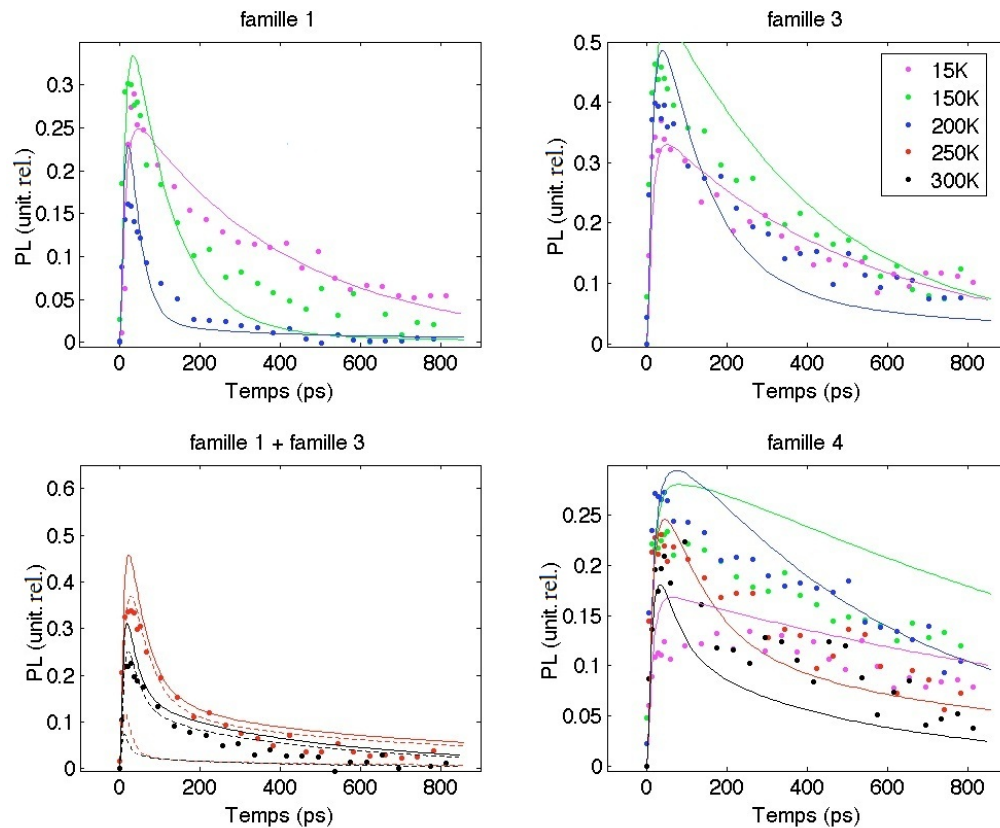


Figure 4.12 – Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 148EP avec $\nu=0,35$. Les courbes en pointillé représentent les ajustements pour la famille 1 et 3 séparément.

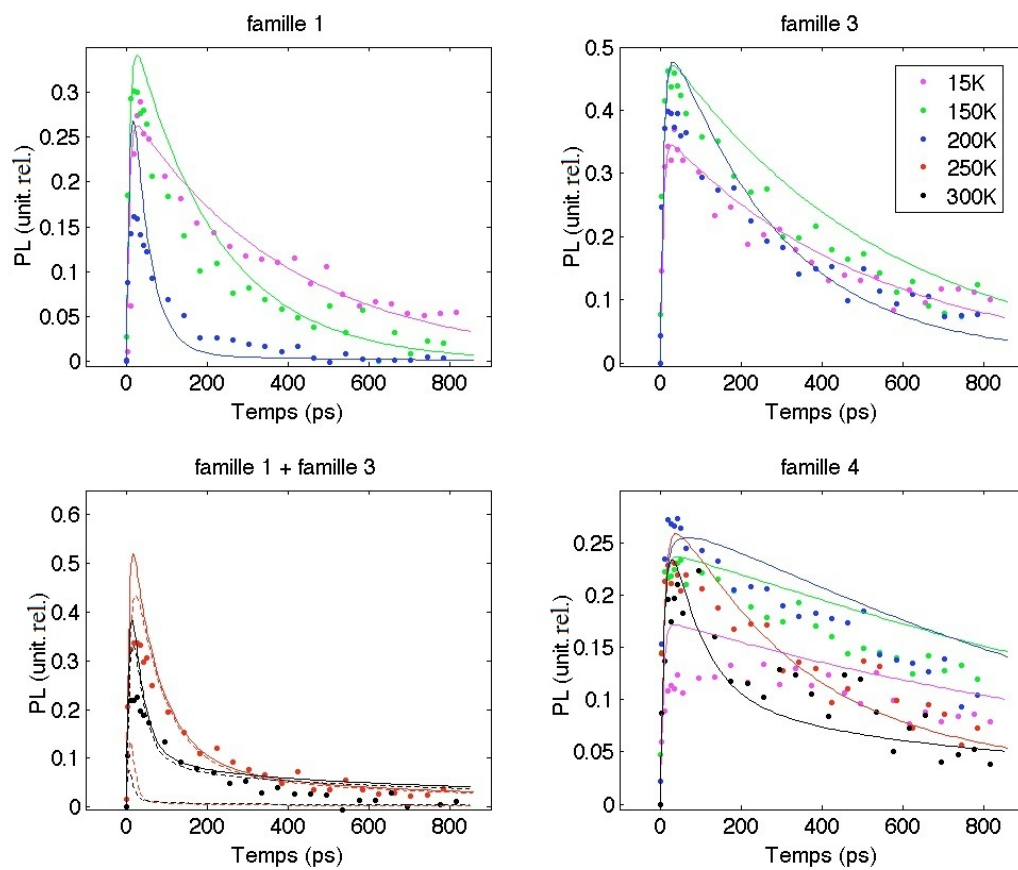


Figure 4.13 – Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 148EP avec $\nu=0,50$. Les courbes en pointillé représentent les ajustements pour la famille 1 et 3 séparément.

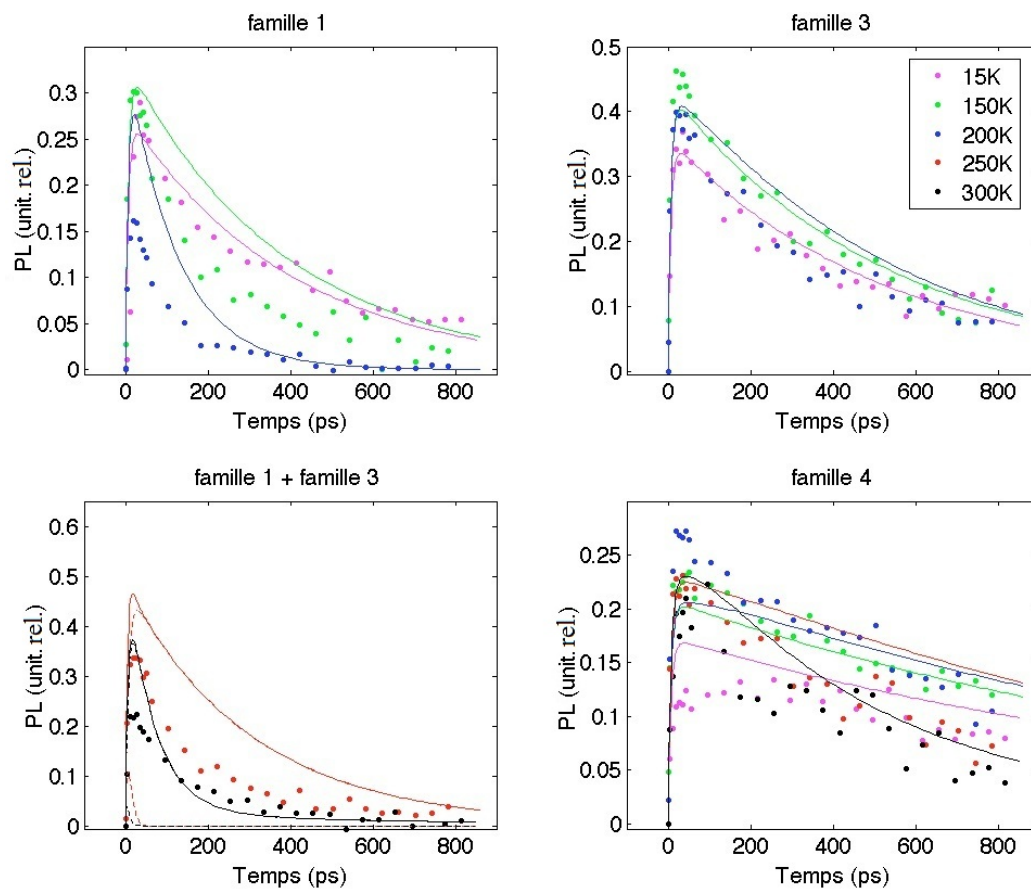


Figure 4.14 – Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 148EP avec $\nu=1,00$. Les courbes en pointillé représentent les ajustements pour la famille 1 et 3 séparément.

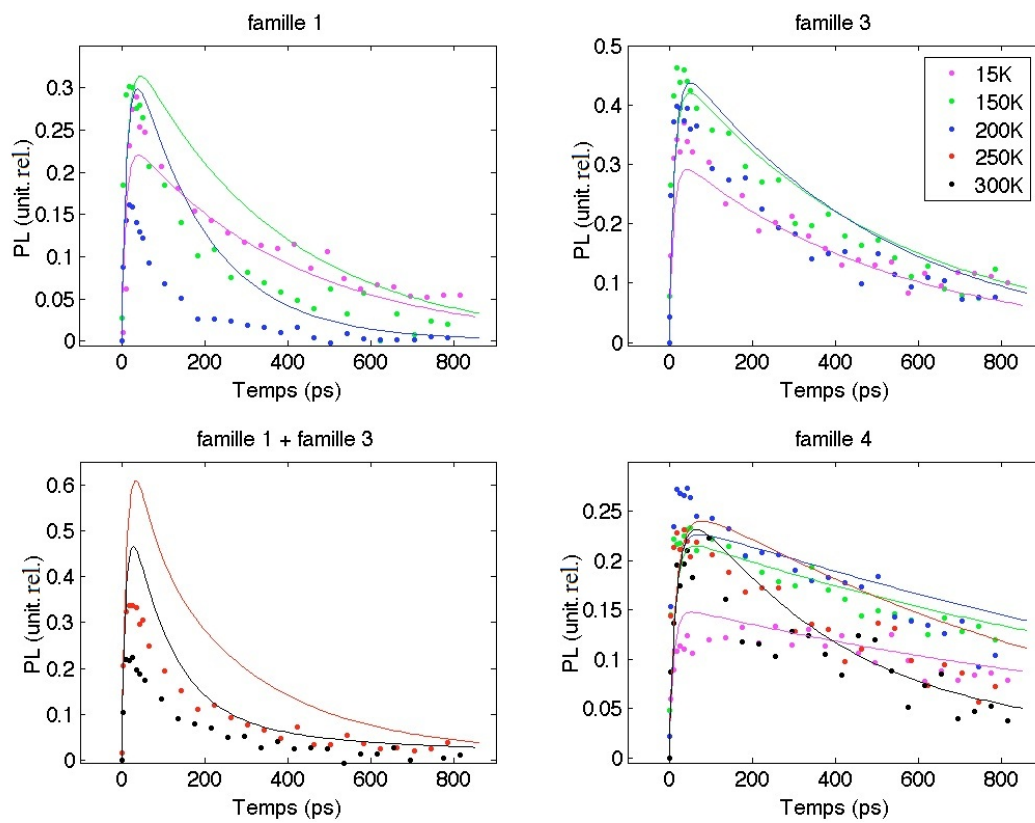


Figure 4.15 – Ajustement à l'échantillon 148EP provenant de mesures de PL résolues en température, voir [11].

Le cas où $\nu = 0,35$ correspondrait approximativement à un régime où la paire d'électrons-trous fuiraient des BQs comme des porteurs indépendants. En fait dans le cas de porteurs indépendants, déterminer un ν précis ne serait pas possible puisqu'il est défini par l'équation 1.12, ce qui change d'une famille à l'autre. On devrait quand même s'attendre à ce que dans cette région l'ajustement aurait été meilleur si la fuite provenait de porteurs indépendants. Pour la famille 1, la fuite des porteurs indépendants est trop lente, ce qui se reflète également dans les familles 3 et 4. Cependant, pour les 2 dernières familles, une forte dynamique dans la CM et la M aurait ralenti la fuite et prédisait un comportement non exponentiel qui n'est pas reproduit dans les mesures.

Si on fixe $\nu=0,5$, les familles 1, 3 et 4 s'ajustent très bien au modèle, si ce n'est que la famille 4 semble avoir une descente un peu plus prononcée à 300 K que ce que le modèle prédit. Ce ν -ci indique que les porteurs fuiraient les BQs comme des porteurs corrélés.

$\nu=1$ correspondrait au cas où la paire d'électrons-trous sortiraient des BQs comme des excitons. L'ajustement sur la famille 1 implique que jusqu'à 150 K, il n'y aurait aucun changement dans la dynamique, ce qui n'est pas le cas. D'ailleurs, pour que l'ajustement ait réussi à s'optimiser, il aurait fallu que le comportement temporel de la famille «1+3» change radicalement entre 250 K et 300 K et que le transfert d'excitons des basses vers les plus hautes familles soit plus élevé.

Les ajustements produits avec les données en continues ont été adaptés selon les temps de vie radiatif déterminée avec la upconversion. Des pertes radiatives dans la CM entraînent une sous-évaluation pour les familles 3 et la 4. L'ajustement de la famille 1, assez similaire à celle obtenue avec le paramètre $\nu=1$, est insuffisant à reproduire la dynamique en supposant une remontée entre 15 et 150 K et une fuite trop tardive. La température où les transitions ont lieu est cependant respectée.

Le tableau suivant résume les paramètres ajustés pour les figures 4.12, 4.13, 4.14 et 4.15.

En faisant un suivi plus précis de chacun des paramètres, on remarque tout d'abord que R_W est inactif et R_M influence peu le système. Mais il ne faut pas se leurrer, des fuites hors du système ne provenant pas des BQs sont à l'oeuvre, les mesures de PL résolue en

Tableau 4.III – Paramètres optimisés pour l'échantillon 148EP pour différents ν et l'incertitude sur le meilleur ajustement. Suivent les paramètres ajustés en PL résolue en température, tirés de [11]. Les unités sont en GHz, excepté pour le paramètre ν qui est sans unité.

ν	R_W	R_M	$U_{WD} \cdot N_D$	$U_{MD} \cdot N_D$	$U_{MW} \cdot N_W$
0,35	0	28	0,2	4	0
0,50	0	7	330	89	0
$0,56 \pm 0,11$	$0 \pm \text{ind.}$	5 ± 50	930 ± 900	90 ± 60	$0 \pm 0,5$
1	50	0	>10000	95	0
$0,51 \pm 0,04$	36 ± 2	20 ± 10	51 ± 2	20 ± 140	9000 ± 9000

température ont démontré que seul 42% de l'intensité intégrée était conservé à 300 K. Il y a donc des porteurs qui ont explicitement été simulés comme fuyant vers des plus hautes familles au lieu de recombinaison dans la matrice ou la CM. Il est d'ailleurs possible d'avoir de bons ajustements en simulant avec des fuites radiatives plus actives, en réduisant les taux de transferts de $U_{MD} \cdot N_D$ et $U_{WD} \cdot N_D$, mais il y a une limite à le faire, car avec des taux radiatifs trop grands il y a un rapide dépeuplement qui n'est pas reproduit par la PLRT. Pouvoir mesurer la PLRT pour les plus hautes familles permettrait de préciser ces deux paramètres.

Évidemment le paramètre $U_{MD} \cdot N_D$, en l'absence d'un $U_{MW} \cdot N_D$ actif, est responsable de la relaxation des excitons vers les BQs. Quand on active trop $U_{MD} \cdot N_D$, cela surévalue les fuites thermiques à haute température pour toutes les familles.

Le paramètre $U_{WD} \cdot N_D$, avec une énergie d'activation plus basse que celle associée au paramètre $U_{MD} \cdot N_D$, est assez critique pour la fuite à moyenne température. Si on l'inhibe, la famille 1 ne commence pas à se vider avant 250 K. À l'inverse si le paramètre est sur-évalué, la famille 1 se vide au complet très rapidement et les familles 3 et 4 suivent une courbe biexponentielle composée d'une fuite rapide (qu'il faut voir comme un retransfert vers les hautes familles) suivi d'une fuite lente.

L'influence du paramètre $U_{MW} \cdot N_W$ joue uniquement sur le temps de relaxation des porteurs. On aura donc que l'intensité maximale de la famille 1,3 et 4 reste la même en température.

Il a été suggéré que d'enlever la matrice du modèle n'influencerait pas vraiment l'ajustement

et il a été possible de retrouver un ajustement très bon avec seulement 2 paramètres, en posant que les porteurs étaient créés dans la CM: $U_{WD} \cdot N_D = 100 \pm 60$ et $\nu = 0,43 \pm 0,10$.

De façon plus générale, il est clair que pour que les excitons puissent atteindre les BQs, ils doivent transiter par la CM et qu'il y a un transfert des porteurs entre les familles par l'intermédiaire de la CM. Les conclusions des mesures en continu et en pulsé concordent sur la dynamique à l'oeuvre dans l'échantillon 148EP et plus particulièrement sur le coefficient d'activation effective: $\nu \sim 1/2$. Ceci implique que les paires d'électrons-trous fuiraient comme des porteurs corrélés. Mais ils diffèrent en cela que résolue temporellement il n'est pas nécessaire de simuler des pertes dans la CM et la matrice pour reproduire les courbes. Cette conséquence est grandement imputable à la difficulté à discerner les processus de transferts des excitons des basses familles vers les plus hautes familles qui n'ont pas été mesurés et les pertes radiatives dû à la CM et la M.

Les optimisations du modèle se basant sur le paramètre ν , on arrive à estimer si la «phase» électrons-trous corrélés est stable. Pour connaître l'incertitude du paramètre ν , telle que présentée dans le tableau 4.III, on fait varier uniquement ce paramètre et l'on étudié son influence sur le χ^2 . Avec cette méthode on obtient que $\nu = 0,56 \pm 0,11$, où l'incertitude provient de la valeur où le χ^2 double.

Cependant en regardant de plus près, le temps de vie radiatif des familles mesuré à basse température est entré comme paramètre fixe dans le modèle, donc l'accord entre les courbes théoriques et la PLRT à 15 K est quasiment posé. Ceci justifie n'ajuster que pour 150, 200, 250 et 300 K comme il a été fait à la figure 4.16.

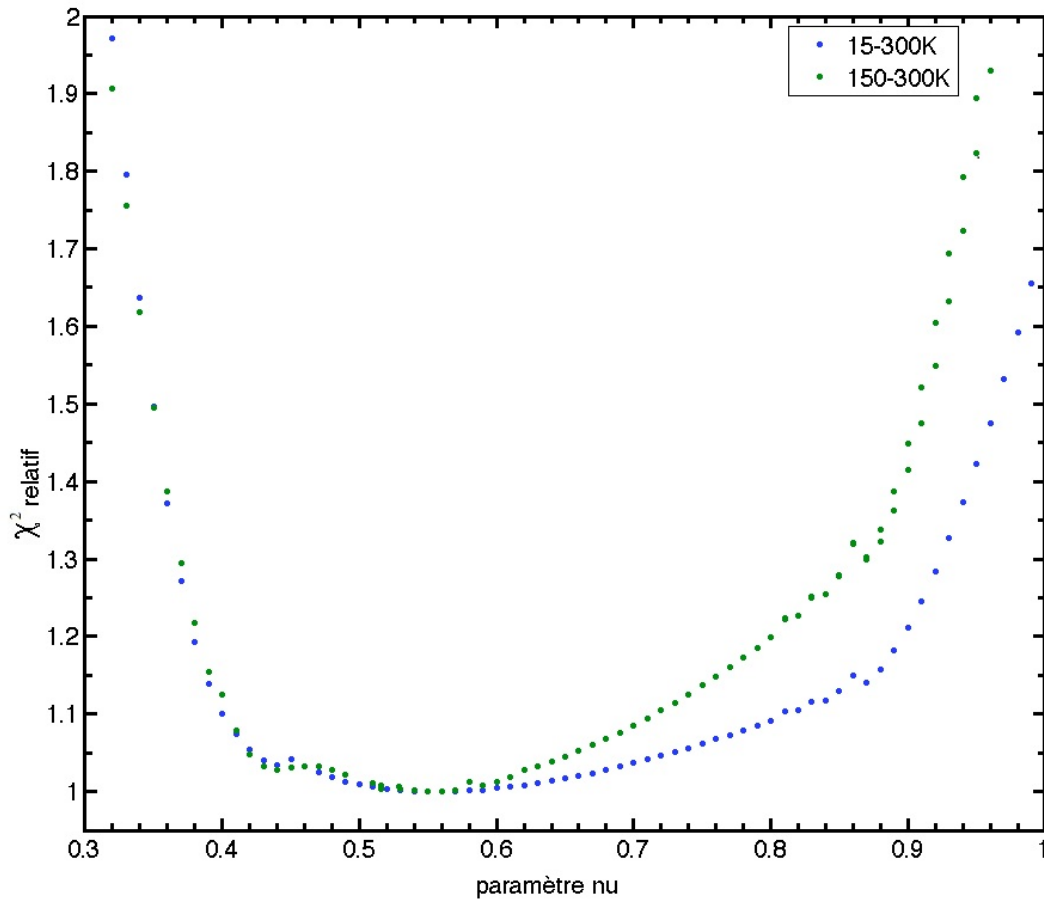


Figure 4.16 – Minimisation du χ^2 en fonction du paramètre ν ajusté aux mesures de l'échantillon 148EP à toutes les températures, mais également pour celles de 150 K et plus élevée uniquement. Les données ont été normalisées par la valeur minimale pour fin ce comparaison.

Comme on le voit à la figure 4.16, le χ^2 a été minimisé pour toutes les températures à partir de la température indiquée et ont été normalisée pour que le minimum de chaque courbe donne 1. Les courbes présentées aux figures 4.12, 4.13 et 4.14 proviennent de celle obtenue à partir de l'ajustement de 15-300 K de la figure 4.16. Cet ajustement un peu plus poussé indique que ν serait moins déterminant sur le χ^2 , mais convergerait entre 0.5 et 0.9. Il faut quand même faire attention à ce que la figure 4.16 peut signifier. D'abord, comme il a été discuté plus haut, les courbes à 15 K vont tout le temps bien s'ajuster ce qui aura pour effet d'aplatir la distribution du χ^2 . De plus, comme la relax-

ation à court temps des excitons vers les BQs n'est pas influencée par le changement du paramètre ν et sachant qu'il y a 1/4 des points pris dans les 50 premières ps, on s'attend à ce que le changement du χ^2 optimisé pour un ν posé soit sous-évalué. D'un autre côté, on remarque que le manque de dynamique temporelle dans la famille 4 inhibera la montée du χ^2 lorsqu'il monte vers 1.

Cela étant dit, la phase excitonique n'est pas dans un minimum local ou même proche de l'être, tout comme celle des porteurs indépendants, mais la possibilité persiste que la fuite provienne en partie sous forme d'exciton et sous forme de paire d'électrons-trous corrélés, comme le laissait sous-entendre Sanguinetti et coll. [30].

4.3.2 Analyse de l'échantillon 206

Contrairement à l'échantillon 148EP, le 206 n'a pas offert une dynamique temporelle très forte. En effet les temps de vie des familles 3 et 5 sont restés à peu près constants jusqu'à 200 K. On peut expliquer en partie cette différence en faisant remarquer que les familles sont moins contrastées ce qui laisserait des BQs d'autres familles contribuer au temps de vie effectif des familles. Le manque de contraste est aussi un indicateur que l'uniformité des BQs n'est pas aussi remarquable que dans le 148EP. L'ajustement de l'intensité intégrée en continu était moins constant d'une température à l'autre à cause de cela.

Les figures suivantes montrent les meilleurs ajustements obtenus en posant $\nu = 0,35$, $0,5$ et 1 .

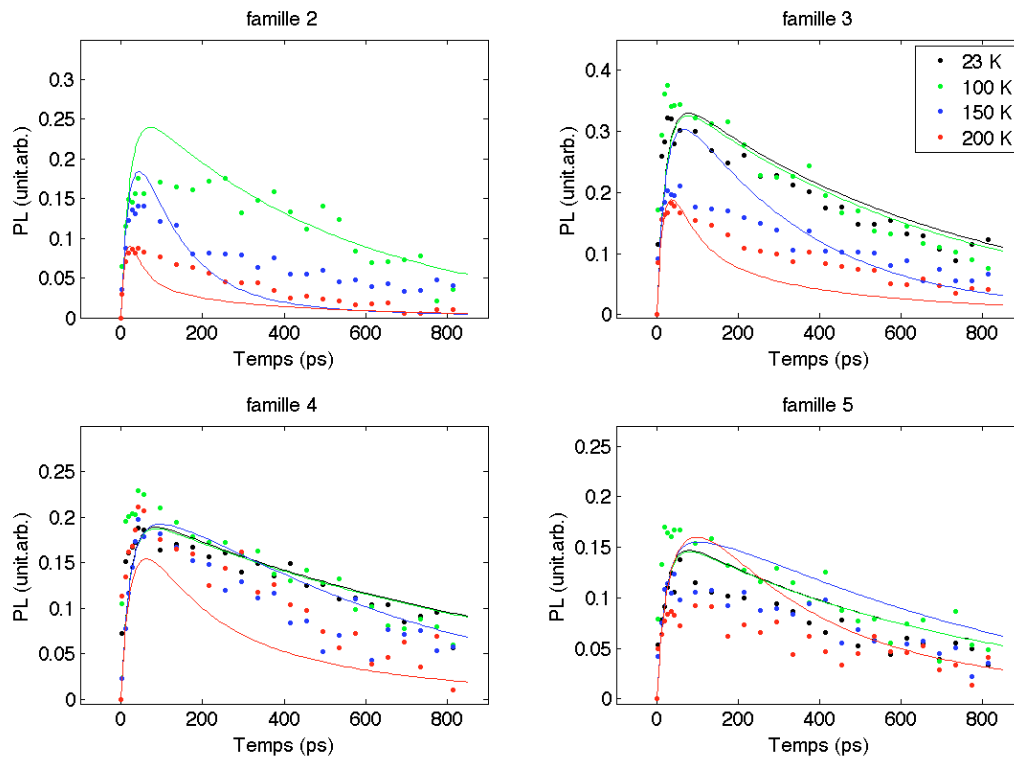


Figure 4.17 – Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 206 avec $v=0,35$.

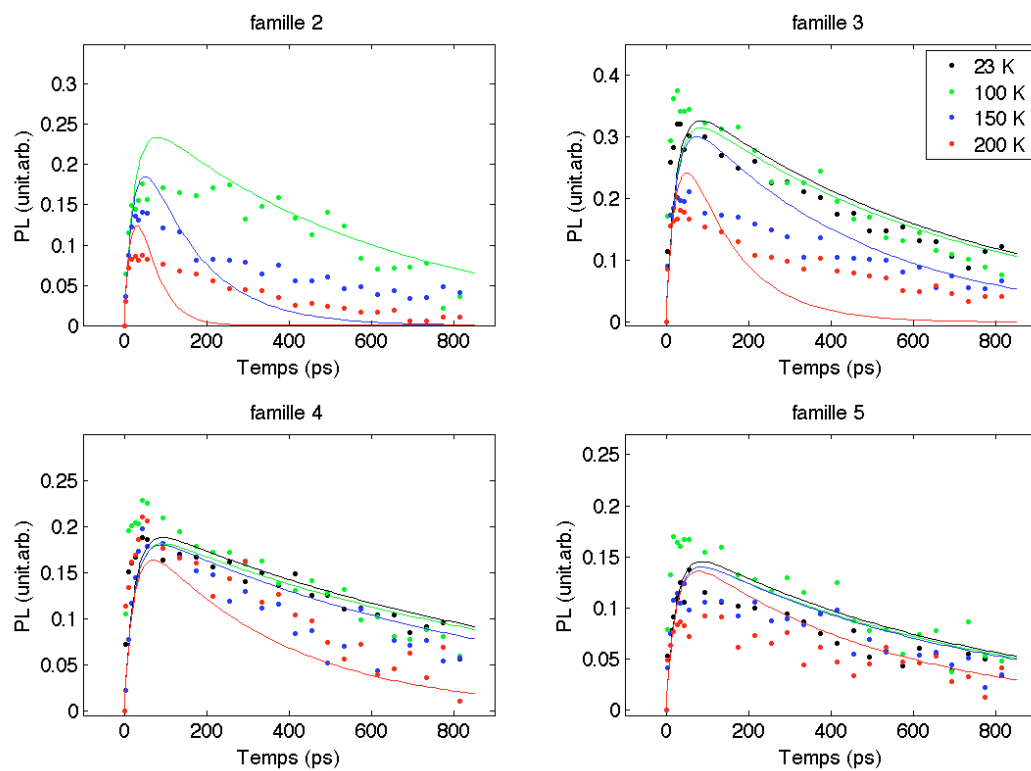


Figure 4.18 – Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 206 avec $\nu=0,50$.

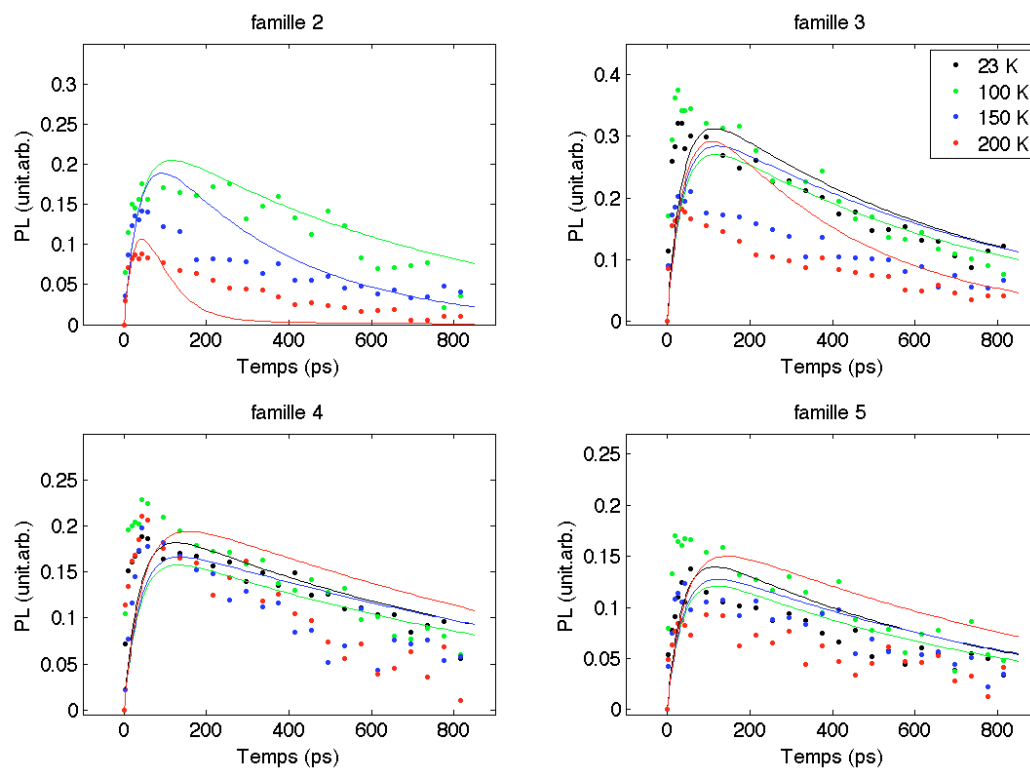


Figure 4.19 – Optimisation du modèle de bilan détaillé sur l'échantillon 206 avec $v=1,00$.

Pour $\nu=0,35$, la fuite dans l'échantillon est trop prononcée pour toutes les familles à 200 K. De plus, les transferts des plus basses vers les hautes familles ne se produisent pas à la bonne température. À 150 K les familles 3 et 4 se dépeuplent plus vite que prévu et à 200 K la famille 5 a déjà entamé sa descente, alors que le modèle suppose qu'il reçoit encore de forts transferts des petites familles.

Pour $\nu=0,5$, l'ajustement pour la famille 2 est grosso modo le même que lorsqu'on a une fuite de porteurs indépendants. Pour la famille 3 et 5, l'accord est un peu mieux, mais les mêmes remarques s'appliqueraient. La famille 4 a un meilleur ajustement, si ce n'est que la courbe à 150 a une intensité intégrée un peu plus basse que prédit par le modèle. On observe que malgré un ajustement plutôt moyen, un $\nu=0,5$ reproduit le meilleur suivi de la fuite en intensité intégrée des familles. Si elle n'est pas trop évidente quand on le compare avec $\nu=0,35$, elle l'est quand on le compare à $\nu=1$.

Avec $\nu=1$, bien que l'ajustement n'est pas si différent des 2 précédents, rend compte d'une autre dynamique. En effet, avec une fuite aussi ardue, jusqu'à 150 K la famille 2 n'a toujours pas commencé à fuir. Les fuites semblent provenir de la matrice qui a un taux de transfert vers les BQs très petit, ce qui encourage les fuites dans la matrice. D'autre part, le transfert des basses vers les hautes familles est surévalué, ce qui a pour conséquence d'avoir un changement en intensité intégrée incorrect, tout en ne modifiant pas les temps de vie effectif des familles 3 et plus hautes. Bref, à première vue les courbes ne semblent pas trop différentes de ce qui est mesuré (en comparant à ce qui a été optimisé avec $\nu=0,35$ et 0,5), mais la tendance des intensités intégrées ne concorde pas avec ce qui est observé.

Le tableau suivant montre les paramètres obtenus lors des ajustements:

Tableau 4.IV – Paramètres optimisés pour l'échantillon 206 pour différents ν et l'incertitude sur le meilleur ajustement. Les unités sont en GHz, excepté pour le paramètre ν qui est sans unité.

ν	R_W	R_M	$U_{WD} \cdot N_D$	$U_{MD} \cdot N_D$	$U_{MW} \cdot N_W$
$0,29 \pm 0,05$	$0 \pm \text{Ind.}$	0 ± 30	$0,2 \pm 2$	5 ± 60	$0 \pm \text{Ind.}$
0,35	0	14,5	6	51	0
0,50	0	28,5	57	56	0
1,00	0	48,5	2660	62	0

Le paramètre R_W étant simplement invariant et le paramètre R_M relativement faible, on peut dire que les pertes radiatives ne jouaient pas un grand rôle dans la dynamique des porteurs. Ensuite, comme les temps de vie de la famille 2 ne bougent pratiquement pas, il fallait nécessairement que $U_{WD} \cdot N_D \sim 0$ et $U_{MD} \cdot N_D$ ne soient pas élevés. On pourrait penser que cette fuite si difficile pourrait être dû à un $\nu=1$, mais même là, la famille 2 fuirait trop rapidement. La comparaison entre les paramètres ajustés dans la référence [11] ne serait pas très fructueuse, puisque les mesures résolues dans le temps ne s'accordent pas à la théorie.

Le même exercice consistant à minimiser le χ^2 et à trouver son incertitude en ne faisant varier que ce seul paramètre donne que $\nu = 0,29 \pm 0,05$. Lorsqu'on regarde l'effet sur le χ^2 , il apparaît que ν se situe entre 0,25 et 0,8. Mais comme les ajustements ne sont pas satisfaisants pour aucun ν fixe, il est dangereux de tirer des conclusions sur ce que le modèle peut signifier dans ce cas-ci.

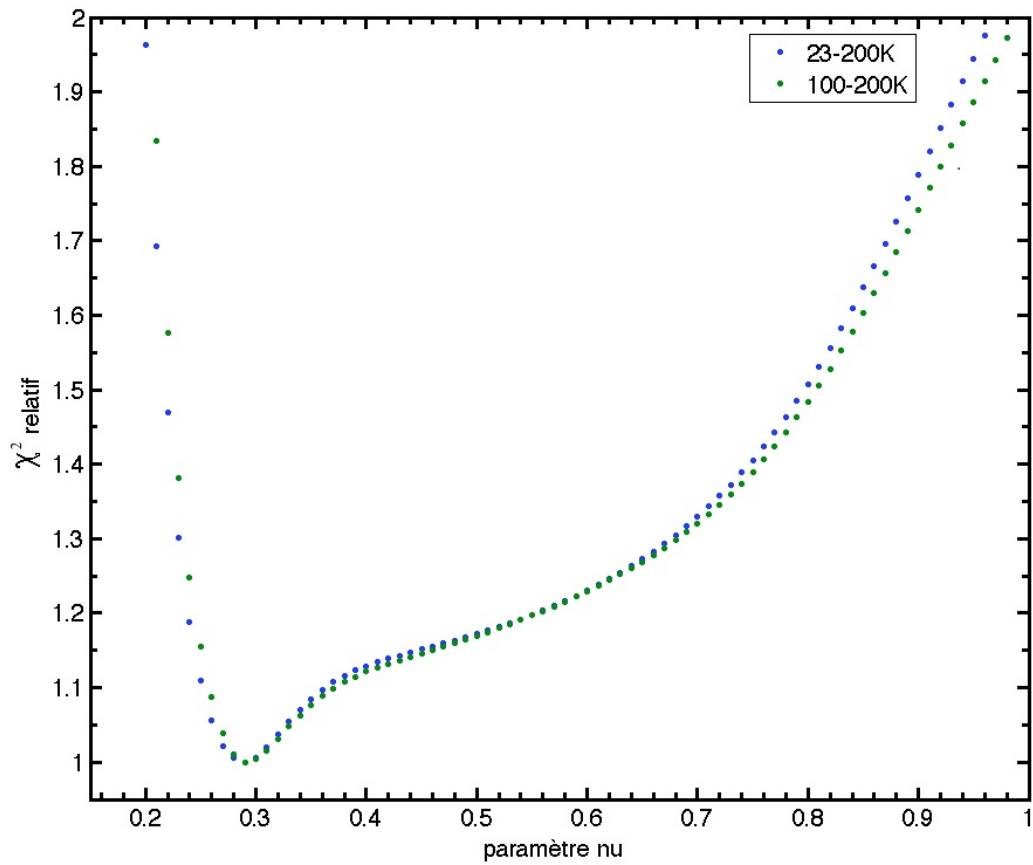


Figure 4.20 – Minimisation du χ^2 en fonction du paramètre ν ajusté aux mesures de l'échantillon 206 à toutes les températures, mais également à celle pour 100 K et plus élevé. Les données ont été normalisées par la valeur minimale pour fin de comparaison.

CONCLUSION

Les BQs sont à l'avant plan de diverses innovations technologiques des dernières années et la caractérisation de tels systèmes sont de pertinence autant théorique que pratique. Plus particulièrement, la dynamique en température est un sujet de controverse.

D'abord une approche des systèmes confinés et de leurs caractéristiques générales, primordiale pour comprendre les systèmes de BQs. Ils sont composés d'un semiconducteur volumique qui absorbe les photons à plus hautes énergies en créant des excitons, d'un puits quantique très mince, appelé couche de mouillage, vers lequel les excitons vont relaxer et des boîtes quantiques, véritable puits de potentiel en 3 dimensions qui emprisonnera la paire d'électrons-trous jusqu'à ce qu'il y ait recombinaison ou fuite thermique.

Une revue de littérature sur les différents mécanismes de relaxation et de fuites des excitons a ensuite permis de bien cerner les zones grises du problème de la dynamique des porteurs: le comportement en température de la fuite thermique des excitons dans les BQs n'est pas totalement expliqué. Plus précisément, diverses études avec leurs modèles respectifs ont été brièvement décrites [8, 11, 24, 30, 31, 36]. Ces modèles portaient sur la nature des fuites thermiques provenant des BQs: certains parlaient d'électrons et de trous sortant indépendamment l'un de l'autre, d'autres d'exciton ou encore de paires d'électrons-trous corrélés. La nuance étant faite avec le coefficient de fuite thermique ν qui caractérise une énergie d'activation effective des excitons dans les BQs.

La disparité des différents résultats a été attribuée en partie aux limitations des différents modèles et dans cette optique, Gélinas et coll. ont bâti un modèle qui tenait compte de tous les états vers lesquels les excitons pouvaient aller. Mais après avoir produit des mesures de PL en température très probants, il restait à relever le défi d'obtenir des résultats résolus dans le temps.

Une première avenue a été explorée en tentant une expérience d'absorption transitoire. Le manque de stabilité du montage a empêché d'avoir des résultats concluants.

Une expérience de PLRT par addition de fréquences a donc été entreprise et après bien des ajustements a été fonctionnelle. Il a fallu s'assurer entre autre d'être dans un

régime linéaire et d'avoir bien caractérisé la fonction de réponse du système. Après, des mesures à basses températures ont pu permettre de connaître les temps de vie radiatifs des familles de BQs. 2 échantillons ont été suivis en température: l'échantillon 148EP et l'échantillon 206.

Les 3 premières familles du 148EP ont été suivis sur 5 températures (15 K à 300 K). Une forte dynamique en température a permis d'observer une baisse du temps de vie effectif de toutes les familles en fonction de la température et d'obtenir des résultats très probants.

La relaxation excitonique se produit directement de la matrice vers les BQs sans passer par la CM. Pour ce qui est de la fuite provenant des BQs, elle se produit sous la forme de paires d'électrons-trous corrélés. Les fuites thermiques ont principalement lieu par l'intermédiaire de la CM et c'est à travers elle que les excitons passent des familles les moins confinées vers les plus hautes. Mais comme il est explicitement montré dans tous les régimes de fuites des porteurs, la matrice joue également un rôle dans la fuite des paires d'électrons-trous à plus haute température.

En comparant aux simulations faites sur des mesures de PL en température, il n'était pas nécessaire de simuler des pertes d'excitons dans la CM et dans l'InP, ce qui est attribué à un biais fourni par une surestimation des transferts vers les plus hautes familles (qui n'ont pas été mesurées). En accord avec ces simulations, il était possible de bien reproduire la dynamique en supprimant la matrice comme élément actif, car en ne tenant compte que des transferts des BQs vers la CM et en supposant que les excitons étaient créés directement dans la CM, il était possible d'obtenir des ajustements similaires.

4 familles de l'échantillon 206 ont été mesurées sur 4 températures allant de 23 K à 200 K. Contrairement à l'échantillon 148EP, il n'y a pas eu une dynamique très forte. Une forte baisse en intensité intégrée et un temps de vie effectif constant chez beaucoup de familles se sont reflétés par de faibles fuites dans la CM et dans la matrice. Les ajustements n'étant pas très bons pour cet échantillon, il a été difficile de déterminer un coefficient de fuite effective, mais le χ^2 doublait lorsque l'on considérait une fuite sous forme d'exciton.

Expérimentalement les mesures se sont bien déroulées pour les deux échantillons,

même s'il n'y avait qu'un des deux échantillons qui a permis de faire un bon suivi de la dynamique temporelle des familles en fonction de la température. La solution à cette disparité se trouve dans le faible discernement entre les familles pour l'échantillon 206. Cette disparité est un indicateur de la qualité de l'échantillon qui est moindre pour le 206. De plus, pour cet échantillon les ajustements gaussiens étaient moins précis, ce qui laissait une grande incertitude dans la normalisation des spectres de PLRT et faisait en sorte que la distinction entre les familles n'était pas très bon. Pour le 148EP, ce problème n'était pas présent à basse température, les pics étant bien distancés, et à plus haute température, 2 familles ont été sommées pour compenser le manque de discernement.

Théoriquement, il a été possible de bien comprendre les mécanismes de relaxation et de fuite à l'oeuvre dans les systèmes de BQs et de déterminer que les excitons fuyaient thermiquement des BQs sous la forme de paires d'électrons-trous corrélées. Il pourrait être intéressant de pouvoir recommencer l'expérience avec un échantillon ne contenant que quelques basses familles et où la CM pourrait être détectable en PL ce qui améliorerait grandement la précision des paramètres de fuites radiatives.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Z. I. Alferov. Nobel lecture: The double heterostructure concept and its applications in physics, electronics, and technology. *Reviews of Modern Physics*, 73(3): 767–782, 2001.
- [2] J. Bardeen et W. H. Brattain. The transistor, a semiconductor triode (reprinted from physical review, vol 74, pg 230-231, 1948). *Proceedings of the Ieee*, 86(1):29–30, 1998.
- [3] U. Bockelmann et G. Bastard. Phonon-scattering and energy relaxation in 2-dimensional, one-dimensional, and zero-dimensional electron gases. *Physical Review B*, 42(14):8947–8951, 1990.
- [4] U. Bockelmann et T. Egeler. Electron relaxation in quantum dots by means of auger processes. *Physical Review B*, 46(23):15574–15577, 1992.
- [5] M. Combescot et M. A. Dupertuis. The carrier "antibinding" in quantum dots: a charge separation effect. *European Physical Journal B*, 50(3):459–464, 2006.
- [6] C. Cornet, A. Schliwa, J. Even, F. Dore, C. Celebi, A. Letoublon, E. Mace, C. Paranthoen, A. Simon, P. M. Koenraad, N. Bertru, D. Bimberg et S. Loualiche. Electronic and optical properties of inas/inp quantum dots on inp(100) and inp(311)b substrates: Theory and experiment. *Physical Review B*, 74(3), 2006.
- [7] P. A. Dalgarno, J. M. Smith, J. McFarlane, B. D. Gerardot, K. Karrai, A. Badolato, P. M. Petroff et R. J. Warburton. Coulomb interactions in single charged self-assembled quantum dots: Radiative lifetime and recombination energy. *Physical Review B*, 77(24):–, 2008.
- [8] P. Dawson, O. Rubel, S. D. Baranovskii, K. Pierz, P. Thomas et E. O. Gobel. Temperature-dependent optical properties of inas/gaas quantum dots: Independent carrier versus exciton relaxation. *Physical Review B*, 72(23):–, 2005.

- [9] F. Fossard, A. Helman, G. Fishman, F. H. Julien, J. Brault, M. Gendry, E. Peronne, A. Alexandrou, S. E. Schacham, G. Bahir et E. Finkman. Spectroscopy of the electronic states in InAs quantum dots grown on InAlN-xAs/InP(001). *Physical Review B*, 69(15):-, 2004.
- [10] D. Frankland, R. A. Masut et R. Leonelli. Growth and characterization of InAs on (100) InP ultrathin single quantum wells using tertiarybutylarsine and tertiarybutylphosphine. *Journal of Vacuum Science & Technology a-Vacuum Surfaces and Films*, 20(3):1132–1134, 2002.
- [11] G. Gelinas, A. Lanacer, R. Leonelli, R. A. Masut et P. J. Poole. Carrier thermal escape in families of InAs/InP self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 81(23):-, 2010.
- [12] Guillaume Gélinas. Etudes des mécanismes de capture et de fuite des excitons dans les boîtes quantiques d'InAs/InP. *Université de Montréal, Mémoire de maîtrise*, 2008.
- [13] M. Gong, K. M. Duan, C. F. Li, R. Magri, G. A. Narvaez et L. X. He. Electronic structure of self-assembled InAs/InP quantum dots: Comparison with self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 77(4), 2008.
- [14] M. Grundmann, O. Stier et D. Bimberg. InAs/GaAs pyramidal quantum dots - strain distribution, optical phonons, and electronic-structure. *Physical Review B*, 52(16): 11969–11981, 1995.
- [15] Marius Grundmann. *Nano-optoelectronics : concepts, physics, and devices*. Nanoscience and technology. Springer, Berlin ; New York, 2002.
- [16] M. Gurioli, A. Vinattieri, M. Zamfirescu, M. Colocci, S. Sanguinetti et R. Notzel. Recombination kinetics of InAs quantum dots: Role of thermalization in dark states. *Physical Review B*, 73(8), 2006.

- [17] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kopev et Z. I. Alferov. Multiphonon-relaxation processes in self-organized inas/gaas quantum dots. *Applied Physics Letters*, 68(3):361–363, 1996.
- [18] R. Heitz, F. Guffarth, K. Potschke, A. Schliwa, D. Bimberg, N. D. Zakharov et P. Werner. Shell-like formation of self-organized inas/gaas quantum dots. *Physical Review B*, 71(4), 2005.
- [19] R. Heitz, A. Kalburge, Q. Xie, M. Grundmann, P. Chen, A. Hoffmann, A. Madhukar et D. Bimberg. Excited states and energy relaxation in stacked inas/gaas quantum dots. *Physical Review B*, 57(15):9050–9060, 1998.
- [20] H. Mahr Hirsch et M.D. An optical upconversion lightgate with picosecond resolution. *Opt. Commun.*, 13:96–98, 1975.
- [21] D. Kim, S. E. Economou, S. C. Badescu, M. Scheibner, A. S. Bracker, M. Bashkansky, T. L. Reinecke et D. Gammon. Optical spin initialization and nondestructive measurement in a quantum dot molecule. *Physical Review Letters*, 101(23):–, 2008.
- [22] A. Lanacer, N. Shtinkov, P. Desjardins, R. A. Masut et R. Leonelli. Optical emission from inas/inp self-assembled quantum dots: evidence for as/p intermixing. *Semiconductor Science and Technology*, 22(12):1282–1286, 2007.
- [23] Ali Lanacer. Étude des propriétés optiques de puits quantiques contraints ultra-minces d'inas/inp. *Université de Montréal*, Thèse de doctorat, 2006.
- [24] E. C. Le Ru, J. Fack et R. Murray. Temperature and excitation density dependence of the photoluminescence from annealed inas/gaas quantum dots. *Physical Review B*, 67(24):–, 2003.
- [25] J. P. McCaffrey, M. D. Robertson, P. J. Poole, B. J. Riel et S. Fafard. Interpretation and modeling of buried inas quantum dots on gaas and inp substrates. *Journal of Applied Physics*, 90(4):1784–1787, 2001.

- [26] M. Paillard, X. Marie, E. Vanelle, T. Amand, V. K. Kalevich, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov et V. M. Ustinov. Time-resolved photoluminescence in self-assembled inas/gaas quantum dots under strictly resonant excitation. *Applied Physics Letters*, 76(1):76–78, 2000.
- [27] E. U. Rafailov, M. A. Cataluna, W. Sibbett, N. D. Il'inskaya, Y. M. Zadiranov, A. E. Zhukov, V. M. Ustinov, D. A. Livshits, A. R. Kovsh et N. N. Ledentsov. High-power picosecond and femtosecond pulse generation from a two-section mode-locked quantum-dot laser. *Applied Physics Letters*, 87(8), 2005.
- [28] M. D. Robertson, J. C. Bennett, A. M. Webb, J. M. Corbett, S. Raymond et P. J. Poole. The determination of the size and shape of buried inas/inp quantum dots by transmission electron microscopy. *Ultramicroscopy*, 103(3):205–219, 2005.
- [29] K. L. Sala, G. A. Kenneywallace et G. E. Hall. Cw auto-correlation measurements of picosecond laser-pulses. *Ieee Journal of Quantum Electronics*, 16(9):990–996, 1980.
- [30] S. Sanguinetti, D. Colombo, M. Guzzi, E. Grilli, M. Gurioli, L. Seravalli, P. Frigeri et S. Franchi. Carrier thermodynamics in inas/inxgal-xas quantum dots. *Physical Review B*, 74(20):–, 2006.
- [31] S. Sanguinetti, M. Henini, M. G. Alessi et M. Capizzi. Carrier thermal escape and retrapping in self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 60(11):8276–8283, 1999.
- [32] J. Shah. Ultrafast luminescence spectroscopy using sum frequency generation. *Ieee Journal of Quantum Electronics*, 24(2):276–288, 1988.
- [33] M. J. Steer, D. J. Mowbray, W. R. Tribe, M. S. Skolnick, M. D. Sturge, M. Hopkinson, A. G. Cullis, C. R. Whitehouse et R. Murray. Electronic energy levels and energy relaxation mechanisms in self-organized inas/gaas quantum dots. *Physical Review B*, 54(24):17738–17744, 1996.

- [34] T. V. Torchynska. Some aspects of exciton thermal exchange in InAs quantum dots coupled with InGaAs/GaAs quantum wells (vol 104, art no 074315, 2008). *Journal of Applied Physics*, 104(12), 2008.
- [35] O. Verzelen, R. Ferreira et G. Bastard. Excitonic polarons in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 88(14), 2002.
- [36] W. D. Yang, R. R. LoweWebb, H. Lee et P. C. Sercel. Effect of carrier emission and retrapping on luminescence time decays in InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 56(20):13314–13320, 1997.
- [37] Peter Y. Yu et Manuel Cardona. *Fundamentals of semiconductors : physics and materials properties*. Springer, Berlin ; New York, 3rd, rev. and enlarged édition, 2001.