



**HAL**  
open science

# Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement

Angela Vasanelli

► **To cite this version:**

Angela Vasanelli. Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002. Français. NNT: . tel-00003115

**HAL Id: tel-00003115**

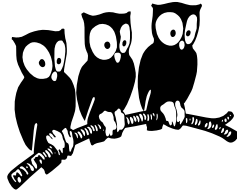
**<https://theses.hal.science/tel-00003115>**

Submitted on 10 Jul 2003

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

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

# ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Physique des solides

présentée par

Angela VASANELLI

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS VI

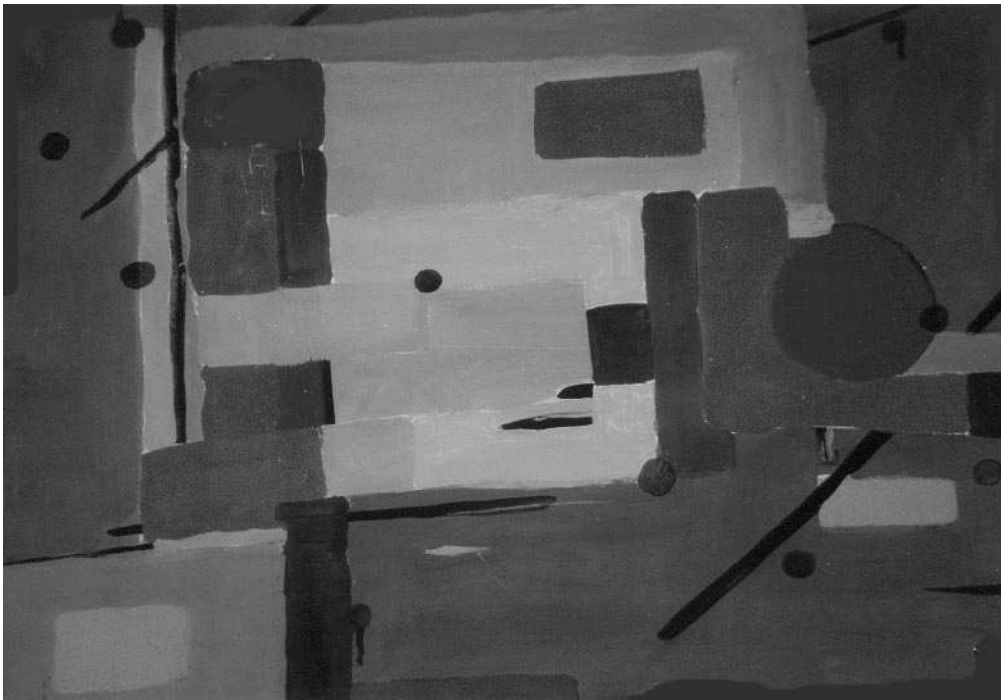
Sujet de la thèse :

**Transitions optiques interbandes et intrabandes dans  
les boîtes quantiques simples et couplées verticalement**

Soutenue le 17 juillet 2002 devant le jury composé de :

M. Gérard Bastard	Directeur de thèse
M. Roberto Cingolani	Co-Directeur de thèse
M. Claude Delalande	
M. Robson Ferreira	Co-Directeur de thèse
M. Bernard Gil	Rapporteur
M. Jean-Yves Marzin	
M. Carlo Sirtori	Rapporteur





ALF : *Boîtes quantiques*



# Remerciements

Je remercie Claude Delalande de m'avoir accueilli au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée et d'avoir accepté de participer au jury de cette thèse. Merci également à Bernard Gil, à Carlo Sirtori et à Jean-Yves Marzin de m'avoir fait l'honneur d'être dans le jury.

Je suis particulièrement reconnaissante à mes trois directeurs de thèse : Gérald Bastard, Robson Ferreira et Roberto Cingolani. Merci à Gérald, non seulement pour toute la physique que j'ai pu apprendre pendant ces trois ans, mais également pour les conversations autour d'une table ou d'une tasse de café, les visites au Louvre et aux jardins de Versailles, les conversations sur la peinture ou la musique. Merci Robson pour avoir suivi mon travail au quotidien, pour toutes les explications, en français quand j'ai commencé à le parler, et dans un italien parfait, quand j'étais bien loin de maîtriser la langue française. Roberto suit mon travail depuis ma thèse de "laurea" en Italie. C'est grâce à lui que j'ai connu les boîtes quantiques et c'est grâce à son enthousiasme que ce sujet m'a passionné. Je pourrais également dire que c'est grâce à lui que je suis venue faire ma thèse dans ce laboratoire ; je lui en suis donc très reconnaissante.

Je voudrais remercier Mario Capitelli, le responsable de la bourse du "Centro di Studio per la Chimica dei Plasmi" du CNR (Centre National pour la Recherche) de Bari, qui pendant deux ans a financé mes études. Grazie professore !

Une partie de ce travail a été réalisée dans le but de comprendre des expériences. Je tiens à remercier Cecile Kammerer et Guillaume Cassabois pour toutes les discussions sur le problème du fond continu, ainsi que Tarnjit Johal pour les questions relatives aux expériences de STM évoquées dans ce travail.

Je suis très reconnaissante à Olivier Verzellen : sans son aide précieuse dans l'informatique la vie au labo aurait été terriblement plus compliquée ! Je remercie Werner Krauth pour ses conseils sur le calcul des états de la boîte par la méthode des différences finies.

Je voudrais remercier le professeur Sakaki pour les échanges que nous avons eus lors de ses séjours en France.

Un merci aux collègues de R11, Charles Berger, Frederic Caupin, Agnès Huynh et Jerome Tignon. Un grand merci en particulier à Frederic, toujours plein de bons conseils ; merci aussi pour avoir lu une partie de ma thèse !

Merci à tous ceux avec qui j'ai partagé les repas au resto qui s'appelle U : David Larousserie, Thérèse Guettler, Sébastien Cortez. Grazie ai "compagni di merende" Ferruccio Renzoni et Michele Schiavoni : avec Michele nous avons partagé deux villes (Bari et Paris), deux universités et très peu d'opinions politiques ; avec Ferruccio nous avons eu beaucoup d'échanges sur le monde de la recherche itinérante. Un mot en particulier à Olivier Krebs, qui a lu une partie de ma thèse et avec qui j'ai souvent discuté de plein de choses et pas seulement de physique !

Je voudrais remercier tous les gens, au LPMC pour des longs ou des petits moments, avec qui j'ai partagé les pauses café (cette liste n'est sûrement pas

exhaustive) : Yves Guldner (qui a suivi jour après jour les progrès dans la rédaction!), Philippe Roussignol, Alecs Jankovic, Sophie Hameau, Alberto Rosso, Paul Voisin, Paolo Maioli, Christophe Voisin, Ingibjorg Magnusdottir, José Antonio Brum, Sihem Jaziri.

Je suis très reconnaissante à Anne Matignon et Marie-Christine Launay Pelletan pour leur aide dans la bureaucratie, toujours très compliquée et incompréhensible pour qui n'est pas français!

Un merci à tous ceux qui m'ont soutenu et supporté dans tous les moments de l'aventure française : grazie Francesco, colocataire idéal et ami précieux; grazie Marie Christine, qui est pour beaucoup dans mes progrès des deux dernières années.

Grazie Manu pour ta présence, si importante pour moi. Un grand merci pour avoir épuré la première version de ce manuscrit du plein de fautes de français et de tournures italiennes, et surtout pour le tableau ("Boîtes quantiques"), qui est au début de ce manuscrit. Tout le monde n'a pas la chance d'avoir un tableau "personnel"!

Enfin je voudrais exprimer toute ma reconnaissance envers mes parents et mes soeurs : leur soutien est pour moi très important, dans la vie comme dans le travail. Grazie!







# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Niveaux d'énergie et fonctions d'onde</b>	<b>17</b>
2.1	Introduction . . . . .	17
2.2	Fonction enveloppe : revue des méthodes . . . . .	18
2.3	Méthode "mixte" . . . . .	20
2.4	Méthode numérique . . . . .	22
2.5	Niveaux d'énergie . . . . .	23
2.6	Fonctions d'onde . . . . .	24
2.7	Conclusion . . . . .	25
<b>3</b>	<b>Boîte isolée</b>	<b>31</b>
3.1	Potentiel de confinement . . . . .	31
3.2	Calcul des états liés . . . . .	32
3.3	Comparaison avec un modèle multi-bandes . . . . .	35
3.4	Règles de polarisation pour l'absorption intrabande . . . . .	36
3.5	Images STM des fonctions d'onde des boîtes . . . . .	40
3.6	Conclusions . . . . .	45
<b>4</b>	<b>Boîtes couplées : "pagodes" quantiques</b>	<b>49</b>
4.1	Systèmes à plusieurs couches de boîtes . . . . .	49
4.2	Couplage vertical . . . . .	50
4.3	Boîtes fortement couplées . . . . .	55
4.4	Super-réseaux de boîtes quantiques . . . . .	57
4.5	Règle de sélection pour les transitions intrabandes . . . . .	58
4.6	Conclusion . . . . .	61
<b>5</b>	<b>Effets du champ électrique</b>	<b>65</b>
5.1	Champ électrique vertical . . . . .	65
5.2	Champ électrique dans le plan . . . . .	68
5.3	Spectre d'absorption inter- et intra-bande . . . . .	69
5.4	Structures $p - i - n$ de boîtes quantiques . . . . .	74
5.5	Grading : Calcul des niveaux d'énergie . . . . .	78

5.6	Grading : Boîtes couplées verticalement . . . . .	82
5.7	Grading : Spectre d'absorption interbande . . . . .	83
5.8	Conclusion . . . . .	85
<b>6</b>	<b>Transitions intrabandes lié-continuum</b>	<b>89</b>
6.1	Densité d'états . . . . .	89
6.2	Ondes planes orthogonalisées . . . . .	92
6.3	Force d'oscillateur . . . . .	94
6.4	Spectre d'absorption intrabande . . . . .	97
6.5	Conclusion . . . . .	100
<b>7</b>	<b>Spectres interbandes : rôle du continuum</b>	<b>103</b>
7.1	Le problème du fond continu . . . . .	103
7.2	Transitions "croisées" . . . . .	106
7.3	Comparaison avec les spectres expérimentaux . . . . .	109
7.4	Effet de l'interaction coulombienne . . . . .	111
7.5	Fluctuations de l'environnement . . . . .	113
7.6	Conclusion . . . . .	114
<b>8</b>	<b>Conclusion</b>	<b>119</b>
<b>A</b>	<b>Liste de publications</b>	<b>123</b>
<b>B</b>	<b>Communications en conférences</b>	<b>125</b>

# Chapitre 1

## Introduction

Ces dernières années les propriétés optiques et électroniques des boîtes quantiques ont été beaucoup étudiées. L'intérêt pour ces nanostructures est dû principalement à leur application potentielle dans l'opto-électronique (lasers, détecteurs d'infrarouge lointain, mémoires) [1, 2, 3]. Les boîtes quantiques de semiconducteur sont également des systèmes intéressants du point de vue de la physique fondamentale : les porteurs sont confinés dans les trois dimensions de l'espace parce que leur longueur d'onde de de Broglie est comparable aux dimensions des boîtes. En conséquence, leur spectre énergétique est discret. Pour cette raison, dans la littérature les boîtes ont souvent été considérées comme des "*atomes artificiels*".

La croissance auto-organisée des boîtes quantiques, sous la forme de croissance de Stranski-Krastanow de semiconducteurs III-V avec des paramètres de maille différents, est une technique particulièrement favorable à la fabrication de nanostructures. La croissance couche par couche n'est pas nécessaire, comme pour d'autres hétérostructures, et les conditions de croissance pour la formation d'îlots sont optimisées. Les boîtes quantiques de In(Ga)As, obtenues par croissance auto-organisée induite par le champ de contrainte, sont des systèmes complexes, pour lesquels le potentiel de confinement est défini par leur forme, leurs dimensions, le gradient de composition, le champ de contrainte. Tous ces paramètres ne sont pas contrôlés par les conditions de croissance et normalement ne sont pas connus exactement. Un intense effort expérimental est mené pour obtenir des renseignements sur ces derniers. Par exemple, des techniques de microscopie, comme le AFM (Atomic Force Microscopy), le STM (Scanning Tunnelling Microscopy) et le TEM (Transmission Electron Microscopy) peuvent donner des estimations des dimensions des boîtes [4, 5]. Des renseignements quantitatifs sur la composition des boîtes peuvent être obtenus par des expériences de EELS (Electron Energy Loss Spectroscopy) [5]. Cependant, les mesures mentionnées ci-dessus sont loin d'être exactes à l'état présent des techniques expérimentales.

A cause de leur mode de croissance, les boîtes quantiques présentes sur un échantillon ne sont pas identiques en forme et composition : les non-uniformités dans les dimensions sont normalement de l'ordre du 10 %. Pour cette raison

l'étude expérimentale des propriétés optiques d'un ensemble de boîtes est affectée par un élargissement spectral inhomogène. Récemment, le développement des techniques spectrales résolues spatialement a permis de résoudre ce problème : les expériences de NSOM (Near-field Scanning Optical Microscopy) [6] et de micro-photoluminescence [7] donnent accès aux propriétés optiques des boîtes uniques.

Les difficultés expérimentales concernant la connaissance exacte des paramètres des boîtes, ainsi que leurs propriétés optiques, ont des conséquences sur la modélisation théorique. D'un côté il y a plusieurs effets qui ont une influence sur les états énergétiques des boîtes; d'un autre côté la connaissance qu'on a de ces effets à l'état actuel ne permet pas de les inclure dans une théorie, de façon utile pour l'interprétation des expériences. Cependant, il faut remarquer que la propriété principale des boîtes est le confinement des porteurs dans les trois dimensions de l'espace. Toute autre propriété (champ de contrainte, non-uniformités de la composition, champ piézo-électrique) a des conséquences moins importantes sur les états énergétiques. C'est pour cette raison que, dans le but d'étudier les propriétés optiques et électroniques dans les boîtes et dans les systèmes de boîtes couplées, nous avons développé un modèle très simple, qui ne tient pas compte de façon détaillée de ces effets. Le potentiel de confinement et la masse effective sont considérés comme des paramètres ajustables, dont la valeur est choisie pour obtenir des résultats cohérents avec les résultats expérimentaux. Les autres effets sont pris en compte seulement pour interpréter les expériences qui les mettent clairement en évidence. Nous avons essayé, dans ce travail de thèse, de toujours garder un contact avec les résultats des expériences, car notre conviction est que chaque modèle a un seul but : celui d'être cohérent avec les résultats expérimentaux.

Dans le chapitre 2, après une brève description de la fabrication des boîtes quantiques étudiées et des différents modèles d'états électroniques utilisés auparavant, nous décrirons les méthodes utilisées pour le calcul des états énergétiques d'électron et de trou dans les boîtes. Nous comparerons les résultats obtenus par les différentes méthodes en ce qui concerne les énergies et les fonctions d'onde des états liés.

Dans le chapitre 3 nous étudierons les états liés d'une boîte isolée. Nous présenterons également le calcul de la force d'oscillateur et des règles de sélection pour les transitions intrabandes. Du point de vue expérimental, des techniques de sonde locale, comme le STM prétendent à l'observation directe des fonctions d'onde d'électron et de trou. Nous montrerons la modélisation de plusieurs types d'expériences réalisées à l'aide du STM par Johal *et al.* aux laboratoires NNL de Lecce, pour obtenir des "images" des différents états d'une boîte de InGaAs.

Dans le chapitre 4 nous étudierons les systèmes de boîtes quantiques empilées. Les techniques actuelles de croissance permettent d'obtenir des systèmes de boîtes empilées et de varier commodément l'épaisseur de la barrière séparant les boîtes. Nous étudierons le couplage entre les boîtes en fonction de l'épaisseur de la barrière. Nous discuterons également la force d'oscillateur et les règles de

sélection des transitions intrabandes dans ces systèmes.

Dans le chapitre 5 nous considérerons les effets du champ électrique sur les boîtes isolées et sur les systèmes de boîtes couplées verticalement. Le champ peut être dû aux charges résiduelles qui se trouvent autour de la boîte, ou bien il peut être appliqué volontairement, par exemple si les boîtes se trouvent dans la partie intrinsèque d'une structure  $p-i-n$ . Nous considérerons également la situation plus réelle de boîtes avec une composition non uniforme. Nous en verrons les conséquences sur les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde, ainsi que sur le spectre d'absorption, en présence de champ électrique.

Après avoir considéré les états liés, dans le chapitre 6 nous étudierons les états du continuum. Nous calculerons d'abord la densité d'états du continuum. Nous calculerons ensuite la force d'oscillateur et le spectre d'absorption intrabande d'électron et de trou. Nous comparerons les résultats de ces calculs avec ceux qui ont été obtenus en modélisant les états du continuum par des ondes planes et par des ondes planes orthogonalisées.

Dans le chapitre 7 le rôle du continuum dans les transitions interbandes sera étudié. Certaines expériences de micro-PL et de NSOM ont mis en évidence la présence, dans les spectres, d'un fond continu entre la partie due aux transitions entre états liés, et le seuil de la couche de mouillage. Nous en étudierons l'origine physique.



# Bibliographie

- [1] C. Weisbuch, G. Vinter, *Quantum Semiconductor Structures*, Academic (1991).
- [2] Y. Arakawa, H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [3] D. Bimberg, M. Grundmann, N. D. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, Wiley (1999).
- [4] T. K. Johal, R. Rinaldi, A. Passaseo, R. Cingolani, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard, à paraître sur *Phys. Rev. B*.
- [5] J. Shumway, A. J. Williamson, A. Zunger, A. Passaseo, M. De Giorgi, R. Cingolani, M. Catalano, P. Crozier, *Phys. Rev. B* **64**, 125302 (2001).
- [6] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, Y. Arakawa, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114 (1999).
- [7] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, J. M. Gérard, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 207401 (2001).





# Chapitre 2

## Niveaux d'énergie et fonctions d'onde

Dans ce chapitre, après une brève description de la fabrication des boîtes quantiques étudiées et des différents modèles d'états électroniques utilisés auparavant, nous décrivons les trois méthodes de calcul employées dans cette thèse. Nous comparons leurs résultats sur les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde.

### 2.1 Introduction

Les boîtes quantiques qui font l'objet de ce travail sont des boîtes quantiques de In(Ga)As obtenues par croissance auto-organisée (ou de Stranski - Krastanov) [1]. Cette dernière s'effectue sur un substrat de GaAs recouvert de quelques mono-couches de In(Ga)As. Une fois que les dimensions des îlots ont atteint une valeur critique, la croissance d'autres îlots devient énergétiquement favorable. A la fin du processus de croissance, les dimensions des îlots sont spontanément réordonnées, c'est à dire que les îlots plus grands peuvent croître au détriment des plus petits. Il y a aussi l'apparition d'un ordre latéral, dû à l'interaction répulsive entre les îlots. La densité moyenne des boîtes peut être réglée entre  $10^8$  et  $10^{11}$   $\text{cm}^{-2}$  en faisant varier les paramètres de la croissance. Le processus de croissance achevé, les boîtes sont des agrégats à facettes de In(Ga)As de forme pyramidale. Elles sont ensuite recouvertes de GaAs. Il est très difficile de connaître exactement la forme et les dimensions des boîtes à ce stade. Des mesures de microscopie électronique en transmission à haute résolution (HRTEM) ont été effectuées, mais leur interprétation est très difficile à cause de la présence de plusieurs effets différents [2].

Plusieurs méthodes ont été utilisées pour la modélisation des boîtes quantiques : théorie  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  à huit bandes [3, 4, 5], théorie du pseudo-potential empirique [6], liaisons fortes [7], masse effective [8, 9]. Les calculs de la structure électronique des boîtes quantiques ont été effectués à différents degrés d'approxi-

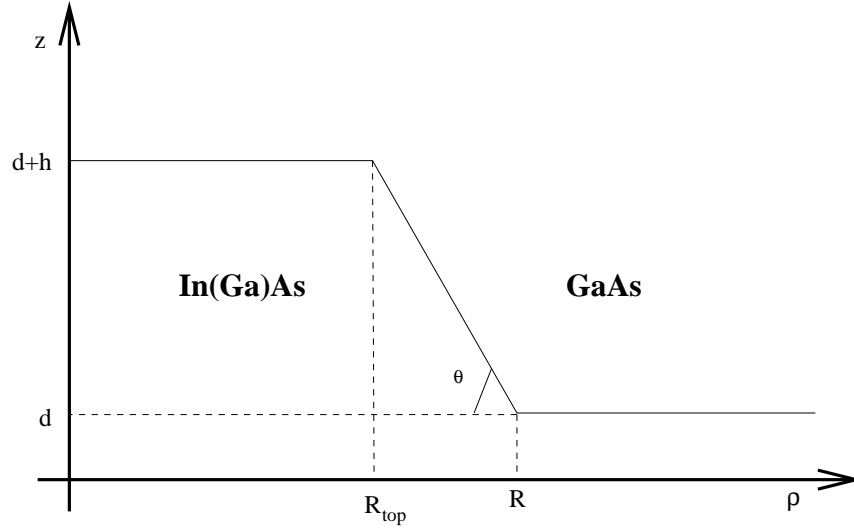


FIG. 2.1 – Système de référence et schéma de la boîte quantique

mation, avec des formes différentes pour les boîtes, en tenant compte ou non des propriétés atomiques. Les calculs effectués dans cette thèse sont inscrits dans un formalisme de masse effective à une seule bande. On montrera par la suite que les résultats obtenus avec cette méthode sont cohérents avec ceux qui ont été obtenus dans le cadre des modèles plus complexes (par exemple  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  à huit bandes). Cela s'explique par le fait que l'aspect physique le plus important dans l'étude des boîtes est la quantification due au confinement spatial.

## 2.2 Fonction enveloppe : revue des méthodes

Dans ce paragraphe, on passera en revue les différentes méthodes utilisées dans le formalisme de la fonction enveloppe pour calculer les états électroniques des boîtes quantiques. Il faut d'abord souligner que la distance moyenne entre les boîtes est beaucoup plus grande que leur dimension latérale. Il est donc possible de considérer chaque boîte quantique comme étant isolée. La boîte est modélisée par un cône (ou un cône tronqué), posé sur une couche bidimensionnelle (couche de mouillage) (voir figure 2.1). A cause de la contrainte entre l'In(Ga)As qui constitue la boîte et le GaAs qui constitue la barrière, trous lourds et trous légers sont découplés [8]. Le premier niveaux de trou léger est très proche du seuil de la bande de valence du GaAs. Par la suite nous nous intéresserons aux seuls états de trou lourd.

L'hamiltonien à une particule, en coordonnées cylindriques, peut s'écrire sous la forme (l'axe  $z$  de symétrie de la boîte est l'axe de croissance) :

$$H_{e(h)} = E_{ce(h)}^z + E_{ce(h)}^{\rho,\theta} + V_{e(h)}(\rho, z) \quad (2.1)$$

où :

$$E_{ce(h)}^z = -\frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{\partial}{\partial z} \frac{1}{m_{e(h)}^z(\rho, z)} \frac{\partial}{\partial z} \right), \quad (2.2)$$

$$E_{ce(h)}^{\rho, \theta} = -\frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \frac{\rho}{m_{e(h)}^\rho(\rho, z)} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{m_{e(h)}^\rho(\rho, z)} \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right) \quad (2.3)$$

et  $V_{e(h)}(\rho, z)$  est un potentiel continu par morceaux, qui vaut zéro dans la barrière et  $-V_0$  dans la boîte.  $m_{e(h)}^\rho(\rho, z)$  et  $m_{e(h)}^z(\rho, z)$  sont les masses effectives des électrons (des trous) pour le mouvement respectivement dans le plan et le long de  $z$ .

Marzin *et al.* [8] ont utilisé deux méthodes différentes pour la résolution de l'équation de Schrödinger : une méthode variationnelle et une méthode numérique. Dans la méthode variationnelle les fonctions propres sont supposées séparées en  $\rho$ ,  $\vartheta$  et  $z$  et les masses effectives indépendantes du matériau. La partie  $z$  de la fonction d'onde est la solution de l'équation de Schrödinger pour un puits quantique de mêmes dimensions que la structure boîte + couche de mouillage. La partie en  $\rho$  est une fonction variationnelle de type exponentielle décroissante. L'autre méthode utilisée dans le même article est une méthode complètement numérique, dans laquelle l'équation de Schrödinger est diagonalisée sur une base de Fourier - Bessel. La comparaison entre les deux méthodes montre que l'approximation séparable décrit très bien les états liés de la boîte.

Dans l'article de Lelong *et al.* [10] l'état fondamental de la boîte est décrit par des fonctions variationnelles, séparables en  $\rho$  et  $z$ , qui ont la forme de gaussiennes centrées à l'origine, ou d'exponentielles décroissantes. Dans l'article de Ferreira *et al.* [11], la méthode variationnelle est utilisée pour le calcul des états liés de type  $1S$ ,  $1P$ , etc... Ils utilisent une fonction séparée en  $\rho$  et en  $z$ , de la forme suivante :

$$\Psi_{1l} = N_{1l} \rho^{|l|} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_{1l}^2}\right) \exp\left(-\frac{(z-z_0)^2}{2\lambda_{1l}^2}\right) \quad (2.4)$$

Il y a donc trois paramètres variationnels : les largeurs des gaussiennes en  $\rho$  et en  $z$  ( $\beta_{1l}$  et  $\lambda_{1l}$  respectivement) et la position du maximum de la gaussienne en  $z$  ( $z_0$ ).

Les méthodes mentionnées ci-dessus ont été appliquées à une boîte isolée ; l'approximation de solution séparable et la méthode variationnelle donnent une très bonne approximation des états liés d'électron et de trou. Si l'on considère un système de plusieurs boîtes couplées verticalement, on s'attend à ce que le confinement latéral ne soit pas très différent du cas d'une boîte isolée. Par contre, le confinement vertical dépendra fortement des paramètres du système, en particulier de la distance entre les boîtes. Pour avoir une méthode applicable à la fois au cas d'une boîte isolée et à celui d'un système de boîtes couplées verticalement, on a développé une méthode "mixte", dont on parlera plus en détail dans la section

suivante. Dans cette méthode, les solutions de l'équation de Schrödinger pour les états liés sont supposées être séparables ; la partie en  $\rho$  est une fonction gaussienne (comme dans la méthode variationnelle décrite ci-dessus), tandis que la partie en  $z$  est une fonction calculée numériquement. Quand on s'intéresse à la fois aux états étendus de la barrière et de la couche de mouillage et aux états liés, une méthode complètement numérique s'impose car il n'existe pas, à notre connaissance, de méthode approchée et fiable qui permette de traiter simultanément des états liés et des états étendus. Comme on le verra dans la section 2.4, l'équation de Schrödinger a été résolue par la méthode des différences finies. Dans les sections 2.5 et 2.6 nous présenterons une comparaison entre les résultats obtenus par la méthode variationnelle à trois paramètres (qu'on appellera variationnelle), par la méthode "mixte" et par la méthode numérique en ce qui concerne les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde d'électrons et de trous dans une boîte isolée.

## 2.3 Méthode "mixte"

On suppose que la masse effective des électrons et des trous est indépendante du matériau ; elle est isotrope et égale à  $0.067 m_0$  pour les électrons, tandis que pour les trous elle vaut  $0.112 m_0$  dans le plan et  $0.337 m_0$  le long de  $z$ . La valeur de la masse effective pour les électrons est cohérente avec le résultat des expériences de magnéto-absorption effectuées par Hameau et al. [12] dans des boîtes d'InAs/GaAs. La valeur de la masse effective des trous est la même que dans les références [10] et [8]. Le potentiel de confinement pour les électrons et les trous est supposé continu par morceau (égal à zéro dans la barrière et à  $-V_0^{e,h}$  dans la boîte). On discutera dans la suite de la valeur de  $V_0$  pour les électrons et pour les trous. On se contentera pour l'instant de montrer les bases de la méthode utilisée. En raison de la symétrie cylindrique, la fonction d'onde peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\Psi(\rho, z, \theta) = e^{il\theta} \psi(\rho, z) \quad (2.5)$$

où  $l = 0$  pour les états de type  $S$ ,  $l = \pm 1$  pour les états de type  $P$ , etc. On suppose également que les solutions en  $\rho$  et en  $z$  sont séparables. Comme dans la méthode variationnelle on écrit la partie en  $\rho$  comme une fonction gaussienne. On multiplie la gaussienne par un polynôme pour obtenir les états excités qui ont un noeud dans le plan :

$$\psi_{nl}(\rho, z) = F_{nl}(\rho) \varphi_{nl}(z) \quad (2.6)$$

$$F_{nl}(\rho) = N_{nl} \rho^{|l|} P_{nl}(\rho^2) \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_{nl}^2}\right) \quad (2.7)$$

$$P_{nl}(\rho^2) = \sum_{p=0}^{n-1} a_{p,nl} \rho^{2p} \quad (2.8)$$

Les quantités  $N_{nl}$  sont des constantes de normalisation. En ce qui concerne les coefficients du polynôme, le premier,  $a_{0,nl}$ , vaut 1 et les autres sont déterminés en imposant la condition d'orthonormalité sur les fonctions d'onde qui ont la même symétrie, mais une valeur différente pour le nombre quantique  $n$  :

$$\langle F_{nl}(\rho) | F_{n'<n,l}(\rho) \rangle = 0 \quad (2.9)$$

De cette façon, les coefficients  $a_{p,nl}$  sont déterminés en terme des largeurs des  $n$  gaussiennes  $\beta_{n',l}$  avec  $n' = 1, \dots, n$ . En effet, la fonction radiale  $F_{nl}(\rho)$  dépend d'un seul paramètre variationnel  $\beta_{nl}$ , parce que les autres sont déjà connus. En substituant à  $\rho$  son expression dans l'équation de Schrödinger et en intégrant sur les variables radiales, on arrive à un problème à une dimension de la forme suivante :

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_z} \frac{d^2}{dz^2} + \langle T_{\perp} \rangle_{nl} + V_{nl}(z) \right) \varphi_{nl}(z) = E_{nl} \varphi_{nl}(z) \quad (2.10)$$

$$\langle T_{\perp} \rangle_{nl} = -\frac{\hbar^2}{2m_{\perp}} \int_0^{+\infty} d\rho \rho F_{nl}(\rho) \left( \frac{d^2}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} - \frac{l^2}{\rho^2} \right) F_{nl}(\rho) \quad (2.11)$$

$$V_{nl}(z) = \int_0^{+\infty} d\rho \rho V_{\text{dot}}(\rho, z) |F_{nl}(\rho)|^2 \quad (2.12)$$

Cette équation peut être aussi obtenue par minimisation de la fonctionnelle :

$$E_{nl}[\varphi_{nl}(z), \beta_{nl}] = \frac{\langle \psi_{nl} | H_{e(\hbar)} | \psi_{nl} \rangle}{\langle \psi_{nl} | \psi_{nl} \rangle} \quad (2.13)$$

par rapport à la fonction  $\varphi_{nl}(z)$ , de façon à ce que la solution de l'équation soit le meilleur choix pour le mouvement en  $z$  pour un  $\beta_{nl}$  fixé. Ce dernier est déterminé variationnellement, en cherchant le minimum de l'énergie  $E_{nl}$ . En commençant par l'état  $1l$ , il est possible de générer consécutivement toute la série des états liés  $nl$ . Le potentiel effectif  $V_{nl}(z)$  peut être assez fort pour lier plusieurs états. Le paramètre  $\beta_{nl}$  minimise l'énergie de l'état fondamental ; les états à plus haute énergie (associés au potentiel effectif obtenu avec la même valeur de  $\beta_{nl}$ ) sont considérés comme des états excités de la boîte. Il faut alors introduire un indice supplémentaire pour les états de ce type :

$$\Psi_{nlj}(\rho, z, \theta) = e^{i\theta} F_{nl}(\rho) \varphi_{nlj}(z) \quad (2.14)$$

où  $j = 1, 2, \dots$  pour des fonctions en  $z$  associées à la même solution radiale. Pour conclure la description de cette méthode, on résumera simplement la notation utilisée. Les états liés  $\Psi_{nlj}$  sont caractérisés par trois nombres quantiques :  $n - 1$  est le **nombre des zéros dans le plan**,  $l$  indique la **symétrie de l'état** ( $S, P, D, \dots$ ) et  $j - 1$  est le **nombre des zéros dans la direction  $z$** .

## 2.4 Méthode numérique

On suppose que les masses effectives sont indépendantes du matériau (comme dans la méthode précédente) et que le potentiel de confinement vaut zéro dans la boîte et dans la couche de mouillage, et  $V_0$  dans la barrière. Grâce à la symétrie cylindrique les fonctions d'onde peuvent être écrites sous la forme de l'équation 2.5. L'équation à résoudre est donc la suivante :

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_z} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{\hbar^2}{2m_\perp} \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} - \frac{l^2}{\rho^2} \right) + V(\rho, z) - E \right) \psi(\rho, z) = 0 \quad (2.15)$$

On veut résoudre cette équation par la méthode des différences finies. On introduit une boîte cylindrique de rayon  $R_b$  et de hauteur  $H_b$  pour rendre le continuum discret. Dans ce cylindre on introduit un maillage, avec deux pas différents en  $\rho$  et en  $z$  ( $\Delta_\rho$  et  $\Delta_z$ ) ; chaque point  $(\rho, z)$  à l'intérieur du cylindre est alors identifié par des entiers  $i$  et  $j$  tels que :

$$\begin{aligned} \rho &\equiv \rho_i = \rho_0 + i\Delta_\rho \\ z &\equiv z_j = z_0 + j\Delta_z \end{aligned}$$

La méthode des différences finies consiste à transformer l'équation différentielle 2.15 en un système d'équations linéaires, où les inconnues sont les valeurs de la fonction d'onde sur les points à l'intérieur du maillage. Sous sa forme matricielle le système peut s'écrire :

$$\mathbf{A} \cdot \psi = \mathbf{b} \quad (2.16)$$

où le vecteur  $\mathbf{b}$  est obtenu grâce à la connaissance des conditions aux limites de l'équation 2.15. La matrice  $\mathbf{A}$  est en général tridiagonale à bandes et non symétrique. Pour obtenir une matrice symétrique, il faut essayer d'éliminer, dans l'équation 2.15, le terme qui contient la dérivée première. Si on écrit la fonction d'onde sous la forme :

$$\psi(\rho, z) = \frac{1}{\sqrt{\rho}} u(\rho, z) \quad (2.17)$$

on obtient l'équation suivante :

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_z} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{\hbar^2}{2m_\perp} \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} - \frac{\hbar^2}{2m_\perp} \frac{1}{\rho^2} \left( \frac{1}{4} - l^2 \right) + V(\rho, z) - E \right) u(\rho, z) = 0 \quad (2.18)$$

Les conditions aux limites imposent à la fonction d'onde de s'annuler sur le contour du cylindre, c'est à dire pour  $\rho = 0$ ,  $\rho = R_b$ ,  $z = -H_b/2$  et  $z = H_b/2$ . L'équation aux différences finies, qui n'est valable que pour les points à l'intérieur du cylindre, est la suivante :

$$a_z u_{i,j+1} + a_z u_{i,j-1} + a_\perp u_{i+1,j} + a_\perp u_{i-1,j} + (-2a_z - 2a_\perp + 2c_{i,j} - E) u_{i,j} = 0 \quad (2.19)$$

où :

$$a_z = -\frac{\hbar^2}{2m_z\Delta_z^2} \quad (2.20)$$

$$a_\perp = -\frac{\hbar^2}{2m_\perp\Delta_\rho^2} \quad (2.21)$$

$$c_{i,j} = -\frac{\hbar^2}{2m_\perp\rho_i^2} \left( \frac{1}{4} - l^2 \right) + V_{i,j} \quad (2.22)$$

$V_{i,j}$  est un potentiel de confinement continu par morceaux, qui vaut zéro dans la boîte et dans la couche de mouillage et  $V_0$  dans la barrière. La matrice correspondante au système 2.19 est tridiagonale à bande et symétrique. Le calcul des valeurs propres et des vecteurs propres est effectué à l'aide de la routine DSBEVX de LAPACK.

## 2.5 Niveaux d'énergie

Les propriétés des états liés d'électron et de trou dans les boîtes quantiques seront discutées dans le prochain chapitre. Pour l'instant on comparera les résultats obtenus par les trois méthodes (numérique, variationnelle et "mixte") pour les fonctions d'onde et les niveaux d'énergie d'électron et de trou pour une même boîte. L'exemple de boîte considéré, de InAs/GaAs, a les dimensions suivantes :  $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $d = 10 \text{ \AA}$ ,  $R_{top} = 80 \text{ \AA}$  (voir figure 2.1). Le potentiel de confinement est  $V_0 = 413 \text{ meV}$  pour les électrons et  $V_0 = 288 \text{ meV}$  pour les trous. La méthode "mixte" et la méthode variationnelle donnent une limite supérieure aux énergies. La méthode mixte est censée donner des meilleurs résultats parce qu'elle contient une partie numérique. Effectivement on trouve que les énergies obtenues par cette méthode sont inférieures de quelques meV à celles obtenues par la méthode variationnelle. La méthode numérique devrait donner un résultat "exact". Malheureusement cette méthode présente de nombreux problèmes pratiques qui limitent considérablement sa précision dans l'évaluation des énergies. Un premier problème est posé par les interfaces abruptes entre la boîte et la barrière, difficilement représentables par un modèle discret. Pour limiter ce problème on a fait en sorte que les dimensions de la boîte soient des multiples du pas ; on a aussi fixé la valeur du potentiel de confinement sur les points de l'interface égale à  $V_0/2$ . Cela est équivalent à prendre un potentiel de confinement qui varie de façon moins brusque sur les interfaces. Pour obtenir la convergence des énergies par rapport au pas en  $\rho$  et en  $z$ , il faudrait un maillage très fin ; en même temps, il faut que le cylindre soit suffisamment grand pour ne pas perturber les fonctions d'onde. Il y a donc un problème numérique, parce que chaque fonction d'onde est décrite par un très grand nombre de points. La figure 2.2 montre la variation de l'énergie de l'état fondamental par rapport au pas en  $\rho$  et en  $z$ , ainsi que les



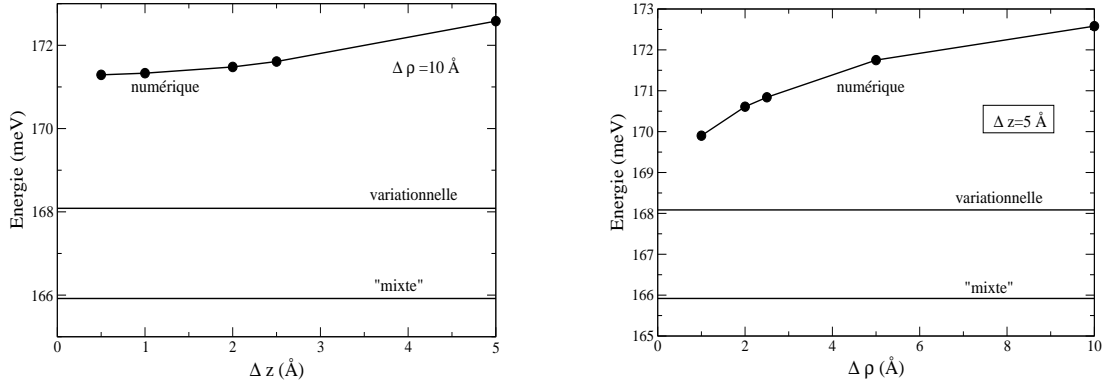


FIG. 2.2 – Comparaison entre les résultats obtenus par les trois méthodes pour l'état fondamental d'électron de la boîte d'exemple

valeurs obtenues avec la méthode mixte et avec la méthode variationnelle. Des techniques numériques plus sophistiquées que celles utilisées dans ce travail de thèse auraient sûrement résolu le problème. On a introduit la méthode numérique pour pouvoir calculer à la fois les fonctions d'onde des états liés et des états étendus. Dans ce but un bon compromis est de choisir  $R_b=100$  nm,  $H_b=40$  nm,  $\Delta_\rho=1$  nm et  $\Delta_z=0.5$  nm. Les fonctions d'onde sont beaucoup moins sensibles au pas que les énergies.

## 2.6 Fonctions d'onde

La méthode numérique permet d'abord de tester si l'approximation séparable décrit bien les fonctions d'onde d'électron et de trou. On compare donc d'abord le module carré des fonctions d'onde en  $z$ , obtenues par la méthode variationnelle et par la méthode "mixte", avec l'intégrale dans le plan du module carré de la fonction d'onde numérique. Le résultat est présenté fig. 2.3. La méthode numérique et la méthode "mixte" donnent le même résultat dans tous les cas de fig. 2.3. La fonction d'onde variationnelle donne une très bonne approximation de l'état fondamental. Pour les états excités on peut remarquer de petites différences, dues au fait que les fonctions d'onde variationnelles sont trop localisées dans la boîte, en particulier celles relatives aux états de trou. Dans des boîtes de grande taille ou dans des systèmes de boîtes couplées verticalement il peut y avoir aussi des états de type  $nlj$ , avec  $j > 1$ . Les états de ce type ne sont pas considérés par la méthode variationnelle, parce que cette dernière est utilisée pour calculer les états liés dans des petites boîtes. Par contre ils sont obtenus naturellement dans les méthodes mixte et numérique, parce que dans les deux cas la partie en  $z$  de la fonction d'onde est calculée numériquement. La fonction d'onde de l'état  $1S2$  de trou est indiquée au bas de la figure 2.3. Pour obtenir les états de ce type

avec la méthode variationnelle il faudrait récrire la partie en  $z$  comme produit d'une fonction gaussienne et d'un polynôme. Il y aurait également trois paramètres variationnels, parce que les coefficients des polynômes seraient déterminés en imposant les conditions d'orthonormalisation.

La fonction d'onde "mixte" et la fonction d'onde variationnelle sont équivalentes en ce qui concerne la partie  $\rho$ . Les paramètres variationnels des gaussiennes, calculés avec les deux méthodes, ont des valeurs très proches. On trouve par exemple pour l'état fondamental d'électron  $\beta_{10}^{\text{mixte}}=46.9 \text{ \AA}$  et  $\beta_{10}^{\text{var}}=47.1 \text{ \AA}$ . De la même façon, pour les états excités la différence entre les largeurs des gaussiennes calculées avec les deux méthodes ne dépasse jamais quelques dixièmes d'Angström. Dans la suite on ne fera plus la différence entre méthode "mixte" et méthode variationnelle en ce qui concerne la partie en  $\rho$  de la fonction d'onde. On les appellera génériquement "fonctions variationnelles".

Soit :

$$f(\rho) = 2\pi \int_{-\infty}^{+\infty} dz |\Psi(\rho, z)|^2 \quad (2.23)$$

La quantité qu'il faut évaluer pour le calcul de la densité de probabilité est  $\rho f(\rho)$ . La figure 2.4 montre la comparaison entre le calcul de cette quantité par la méthode numérique et par la méthode variationnelle pour l'état  $1S$  (figure de gauche) et pour l'état  $2S$  (figure de droite) d'électron. L'accord est moins bon par rapport à celui obtenu pour la partie en  $z$  : en particulier il y a des différences dans le comportement des deux fonctions quand on approche l'origine. Cela est dû au fait qu'à cause de l'utilisation des coordonnées cylindriques, la méthode numérique ne donne pas le bon comportement de la fonction d'onde en  $\rho$  à proximité de l'origine. Toutefois, tant que l'on calcule les éléments de matrice optiques, la quantité à évaluer est toujours  $\rho f(\rho)$ , pour laquelle l'accord entre les deux méthodes est assez bon. De plus, la fonction variationnelle et celle numérique ont le même comportement en dehors de la boîte ( $R > 100 \text{ \AA}$ ). Pour estimer la différence entre les deux méthodes nous avons calculé la valeur moyenne de  $\rho$  sur l'état fondamental ; nous avons obtenu :  $\langle \rho \rangle_{\text{num}} = 50.1 \text{ \AA}$  et  $\langle \rho \rangle_{\text{var}} = 41.6 \text{ \AA}$ , c'est à dire une différence de  $8.5 \text{ \AA}$  pour une dimension latérale de la boîte de  $100 \text{ \AA}$ . Pour les états excités cette différence est beaucoup plus petite : par exemple pour l'état  $1P$  on obtient  $\langle \rho \rangle_{\text{num}} = 59.6 \text{ \AA}$  et  $\langle \rho \rangle_{\text{var}} = 57.8 \text{ \AA}$ .

Dans la figure 2.4 seules les fonctions d'onde des électrons ont été présentées. Pour les trous on a obtenu des résultats similaires.

## 2.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons brièvement présenté les différentes techniques qui ont été utilisées pour le calcul des états d'électron et de trou dans les boîtes quantiques. On a également comparé les résultats obtenus par les différentes méthodes

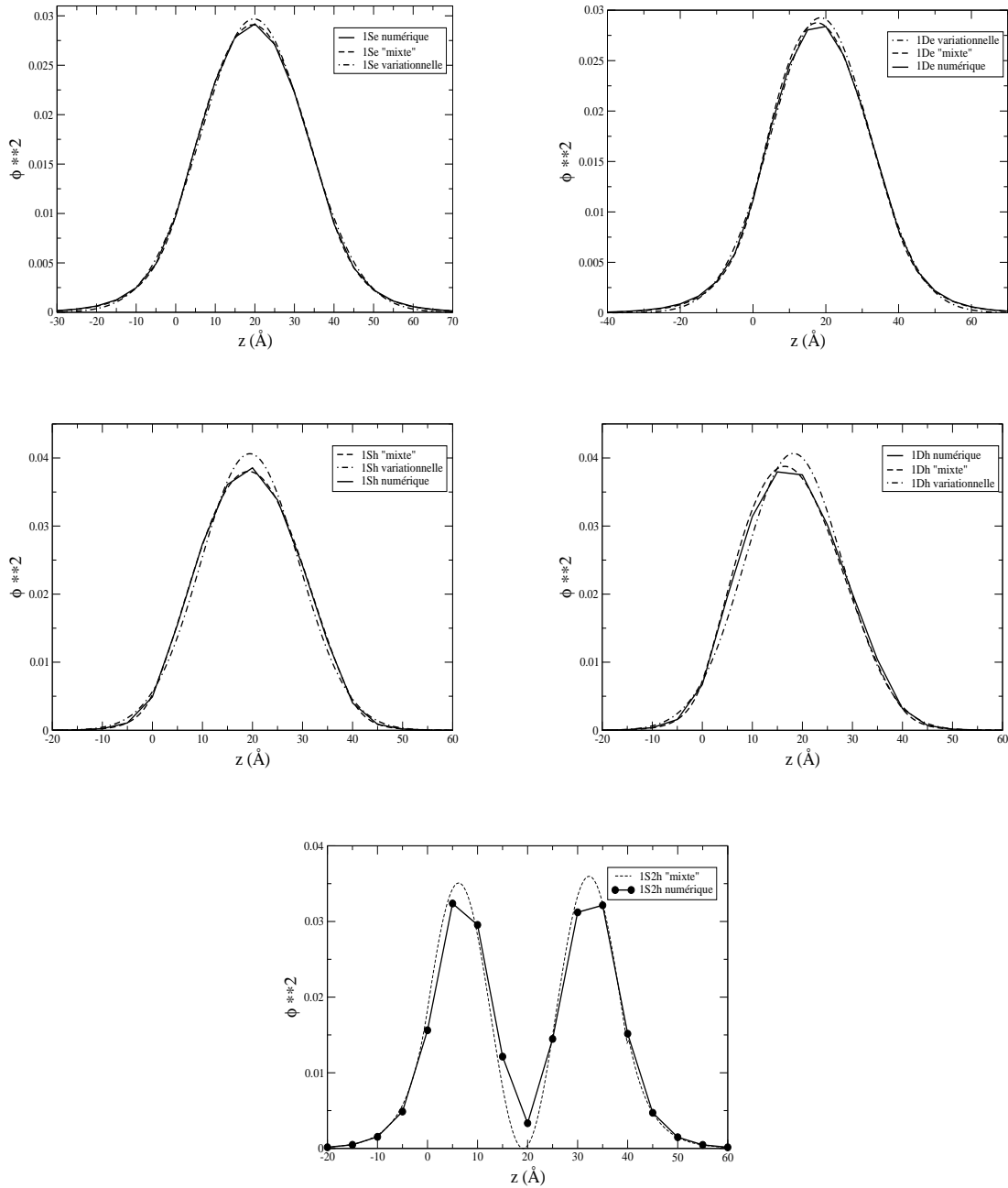


FIG. 2.3 – Comparaison entre les fonctions d'onde en  $z$  obtenues par les différentes méthodes pour les électrons (en haut) et pour les trous (au milieu), pour l'état fondamental (à gauche) et pour l'état excité 1D1 (à droite). En bas la fonction d'onde de l'état 1S2 de trou obtenue par la méthode "mixte" (en tireté) et par la méthode numérique (en trait continu).

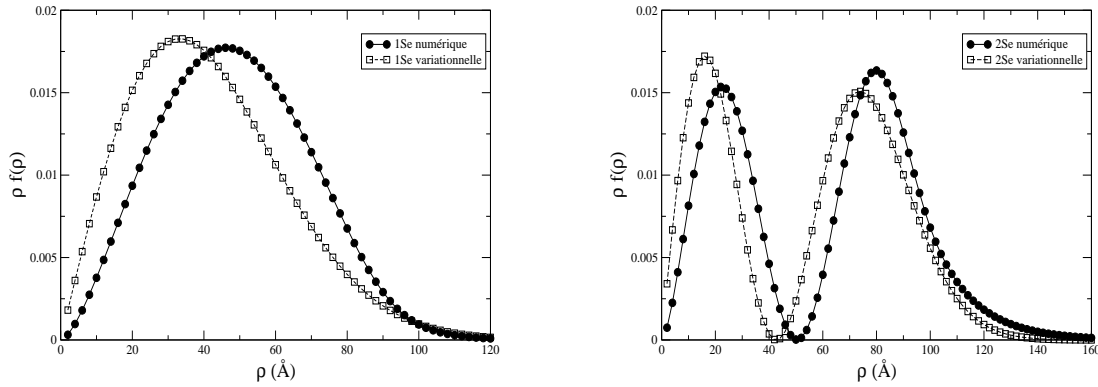


FIG. 2.4 – Comparaison entre les résultats obtenus avec la méthode numérique et la méthode variationnelle pour la fonction  $\rho f(\rho)$ .

et on a vérifié l'applicabilité de l'approximation de fonctions séparables dans la résolution de l'équation de Schrödinger. La méthode, qu'on a appelé variationnelle, sera utilisée dans le chapitre 7 pour calculer l'influence de l'interaction coulombienne sur la forme des spectres d'absorption interbande. La méthode "mixte" est la méthode utilisée pour étudier les états liés dans les boîtes isolées (chapitre 3) et dans les systèmes de boîtes couplées verticalement (chapitre 4). Elle sera aussi utile pour l'étude de l'effet Stark dans ces systèmes en présence ou en l'absence d'un gradient de concentration d'In dans les boîtes. La méthode numérique a été utilisée dans la partie finale de ce travail de thèse pour étudier les états du continuum et les spectres d'absorption intrabande et interbande.



# Bibliographie

- [1] I. M. Stranski and L. von Krastanov, Akad. Wis. Lit. Mainz. Abh. Math. Naturwiss. Kl. IIB, **146**, 797 (1939).
- [2] J. Shumway, A. J. Williamson, A. Zunger, A. Passaseo, M. De Giorgi, R. Cingolani, M. Catalano, P. Crozier, Phys. Rev. B **64**, 125302 (2001).
- [3] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg, Phys. Rev. B **52**, 11969 (1995).
- [4] C. Pryor, M. E. Pistol, L. Samuelson, Phys. Rev. B **56** 10404 (1997).
- [5] H. Jiang, J. Singh, Phys. Rev. B **56** 4696 (1997).
- [6] A. Zunger, MRS Bull. **23**, 35 (1998).
- [7] S. Lee, L. Jönsson, J. W. Wilkins, G. W. Bryant, G. Klimeck, Phys. Rev. B **63**, 195318 (2001).
- [8] J.-Y. Marzin, G. Bastard, Solid State Commun. **91**, 39 (1994).
- [9] M. A. Cusack, P. R. Briddon, M. Jaros, Phys. Rev. B **54**, 2300 (1996).
- [10] Ph. Lelong, G. Bastard, Solid State Commun. **98**, 819 (1996).
- [11] R. Ferreira, G. Bastard, Appl. Phys. Lett. **74**, 2818 (1999).
- [12] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaitre, J. M. Gérard, Phys. Rev. Lett. **83**, 4152 (1999).



# Chapitre 3

## Boîte isolée

Dans le chapitre précédent les méthodes utilisées pour le calcul des niveaux des boîtes ont été discutées. Dans ce chapitre la méthode “mixte” sera appliquée pour étudier les états liés d’électron et de trou dans une boîte isolée. On discutera d’abord du choix du potentiel de confinement pour les électrons et les trous, puis des états liés et de leur dépendance des paramètres de la boîte. Le calcul de la force d’oscillateur et des règles de sélection pour les transitions intrabandes sera également présenté. Du point de vue expérimental, des techniques de sonde locale, comme le STM (Scanning Tunneling Microscopy) prétendent à l’observation directe des fonctions d’onde d’électron et de trou. On montrera la modélisation de plusieurs types d’expériences réalisées à l’aide du STM pour obtenir des “images” des différents états d’une boîte de InGaAs.

### 3.1 Potentiel de confinement

Comme on a vu dans le chapitre précédent, la méthode de calcul utilisée recourt à un potentiel de confinement  $V_{e(h)}(\rho, z)$  pour les électrons et pour les trous qui est un potentiel continu par morceaux. Il est égal à zéro dans la barrière et à  $-V_0$  dans la boîte. Le problème est la valeur de  $V_0$ . Les expériences de caractérisation des boîtes (TEM, STM, etc) ne fournissent pas des renseignements très fiables, contrairement aux résultats relatifs à certaines hétérostructures, dont la croissance est mieux contrôlée. Beaucoup d’effets, comme l’interdiffusion d’In ou la contrainte, se mélangent entre eux. Il est donc très difficile de connaître précisément les dimensions de la boîte et sa composition. Tant que la quantité d’informations dont on dispose sur les boîtes est très limitée, il est inutile de chercher à décrire exactement le système. Il a déjà été montré [1, 2] qu’un bon accord peut être obtenu avec de nombreuses expériences (capacité, magnéto-absorption, PL) en considérant un potentiel de confinement uniforme dans la boîte. Un seul type d’expérience sensible aux non-uniformités de la composition des boîtes est cité dans la littérature [3]. Comme on le verra dans le chapitre 5, la mesure de



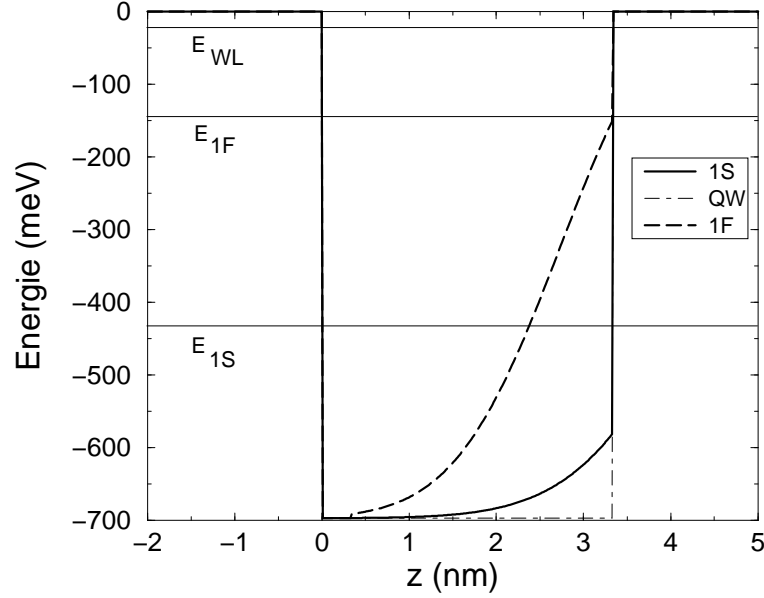


FIG. 3.1 – Potentiel effectif pour un électron dans une boîte isolée ( $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $d = 3.33 \text{ \AA}$ ,  $\vartheta = 30^\circ$ ,  $V_0 = 697 \text{ meV}$ ).

l'effet Stark dans une structure p-i-n, qui contient des boîtes dans la région intrinsèque, donne des renseignements sur le signe du dipôle  $e - hh$ . La seule façon d'obtenir un tel résultat est de supposer que la concentration d'In dans la boîte n'est pas uniforme. C'est pour rendre compte des expériences de ce type qu'on a introduit un gradient de composition dans la boîte. Dans tous les autres cas on a considéré un potentiel de confinement uniforme dans le système boîte + couche de mouillage. Pour une boîte de InAs, la valeur du potentiel effectif est, pour les électrons,  $V_0 = 697 \text{ meV}$  et pour les trous lourds  $V_0 = 288 \text{ meV}$  [4]. D'autres auteurs, notamment Stier *et al.* [5], utilisent une valeur différente pour le potentiel de confinement des électrons,  $V_0 = 413 \text{ meV}$ . Certains des calculs ont été effectués avec cette dernière valeur. On précisera dans chaque cas quelle est la valeur de potentiel utilisée pour le calcul.

## 3.2 Calcul des états liés

Dans le chapitre précédent on a vu que le calcul des états liés de la boîte conduit à la résolution de l'équation de Schrödinger à une dimension pour un potentiel effectif  $V_{nl}(z)$ . La figure 3.1 montre la forme de ce potentiel effectif (cf. formule 2.12) pour les états  $1S$  et  $1F$  d'électrons. Il est constant partout (il vaut zéro dans la barrière et  $-V_0$  dans la couche de mouillage) sauf dans la région de

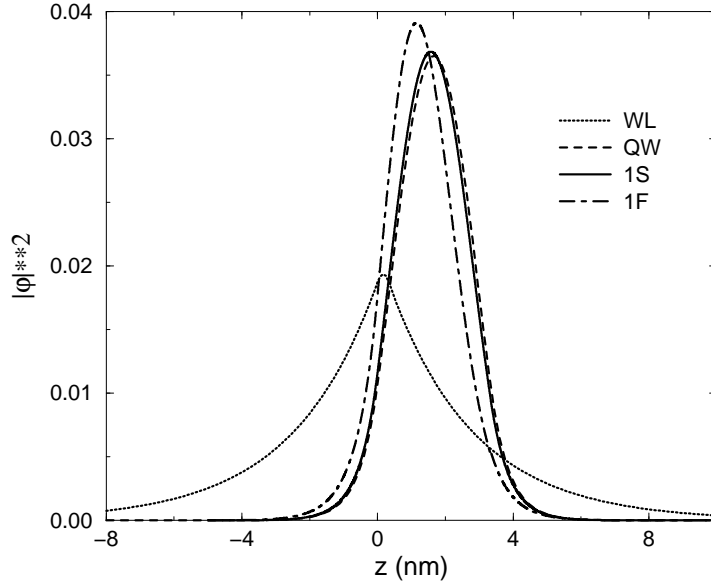


FIG. 3.2 – Module carré de la fonction d'onde en  $z$  ( $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $d = 3.33 \text{ \AA}$ ,  $\vartheta = 30^\circ$ ,  $V_0 = 697 \text{ meV}$ ).

la boîte. Dans cette région, pour l'état fondamental, il a une forme gaussienne, donnée par l'expression suivante :

$$V_{1S}(d \leq z \leq d+h) = -V_0 \left( 1 - \exp \left( -\frac{R - \left( \frac{z-d}{\tan \vartheta} \right)^2}{\beta_{10}^2} \right) \right) \quad (3.1)$$

Cette forme simplifie énormément le travail numérique, parce que la fonction d'onde en  $z$  est analytique chaque fois que  $V_{nl}(z)$  est constant ; une solution numérique est seulement nécessaire dans un petit segment de l'axe  $z$ . Dans la figure 3.1 on a également montré par comparaison le potentiel de confinement en  $z$  pour un puits quantique de largeur  $d+h$  et de profondeur  $V_0$ . On peut remarquer que le potentiel effectif pour l'état fondamental n'est pas très différent de ce dernier en ce qui concerne le confinement en  $z$ . L'énergie de l'état fondamental de ce puits est  $-493 \text{ meV}$ . La différence entre cette énergie et celle de l'état fondamental de la boîte (indiquée dans la figure par une ligne horizontale) est due au confinement dans le plan. Au fur et à mesure que l'on considère des états excités ( $l > 0$ ), le potentiel effectif devient de plus en plus différent par rapport à celui du puits, et les niveaux énergétiques sont de plus en plus repoussés vers le niveau d'énergie de la couche de mouillage. Pour montrer la différence par rapport à l'état fondamental on a représenté dans la figure 3.1 le potentiel effectif d'un état très excité, l'état  $1F$  ( $l = 3$ ).

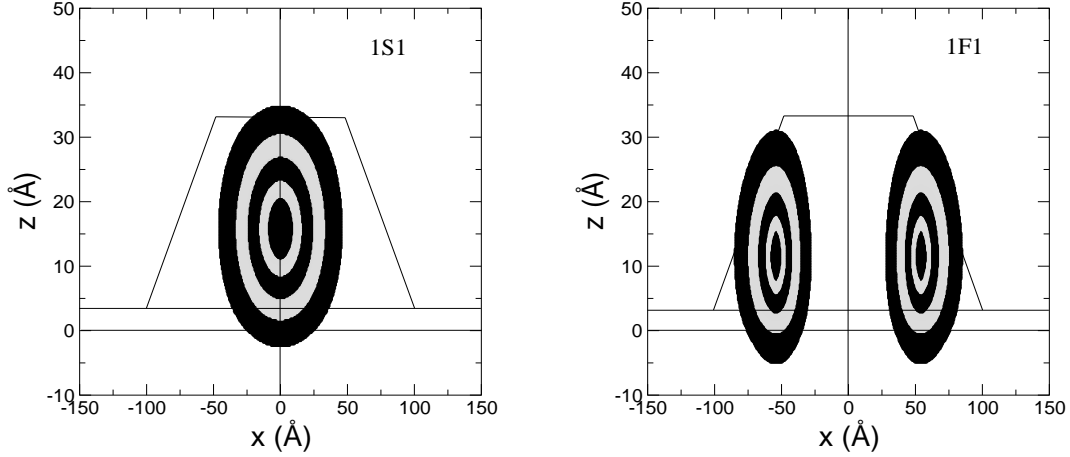


FIG. 3.3 – Représentation 2D de la fonction d’onde pour les états  $1S1$  et  $1F1$ .

La figure 3.2 présente la fonction enveloppe  $\varphi_{10l}(z)$  pour les états  $1S1$  (en trait continu) et  $1F1$  (tireté-pointillé). La localisation dans la région de la boîte est plus grande pour l’état fondamental  $1S1$ . Les fonctions enveloppes des états excités sont davantage délocalisées et présentent un maximum qui se rapproche de la couche de mouillage. Cet effet est toutefois petit : en effet les fonctions enveloppes de tous les états liés sont fortement confinées dans la boîte. Dans la figure on a montré pour comparer la fonction d’onde de la couche de mouillage (en pointillé) et également celle du puits quantique de largeur  $d+h$  et profondeur  $V_0$  (en tireté). Cette dernière est presque identique à celle de l’état  $1S1$  de la boîte. On verra dans le chapitre suivant que cette ressemblance en ce qui concerne le mouvement en  $z$  est aussi valable quand on a un système de boîtes couplées verticalement. En ce qui concerne le mouvement radial, les paramètres variationnels ne sont pas très différents :  $\beta_{10} = 35.9 \text{ \AA}$ ,  $\beta_{13} = 31.2 \text{ \AA}$ . Néanmoins, à cause du terme  $\rho^{|l|}$ , les états excités sont de plus en plus délocalisés dans le plan par rapport au fondamental, comme on peut le voir dans la figure 3.3. On a alterné les couleurs blanche et noir pour indiquer les zones d’isoprobabilité ( $P$ ). La zone la plus à l’intérieur comprend les couples  $(x, z)$  telles que la probabilité de trouver l’électron est  $0.9 < P < 1$  ; en partant de cette zone, les autres donnent les couples  $(x, z)$  tels que  $0.8 < P < 0.9$ ,  $0.6 < P < 0.8$ ,  $0.4 < P < 0.6$ ,  $0.2 < P < 0.4$ .

Le nombre d’états liés dépend des dimensions de la boîte. La figure 3.4 montre la variation des niveaux liés d’électron par rapport au rayon de la boîte. Les autres paramètres de la boîte sont indiqués dans la légende de la figure. Le nombre de niveaux liés s’accroît au fur et à mesure de l’augmentation des dimensions de la boîte. En plus des états liés, d’autres niveaux ont une énergie entre le seuil de la couche de mouillage ( $E_{WL} = -22.7 \text{ meV}$  pour une couche de mouillage d’une monocouche d’épaisseur) et le seuil de la barrière de GaAs ( $E = 0$ ). Ces états,

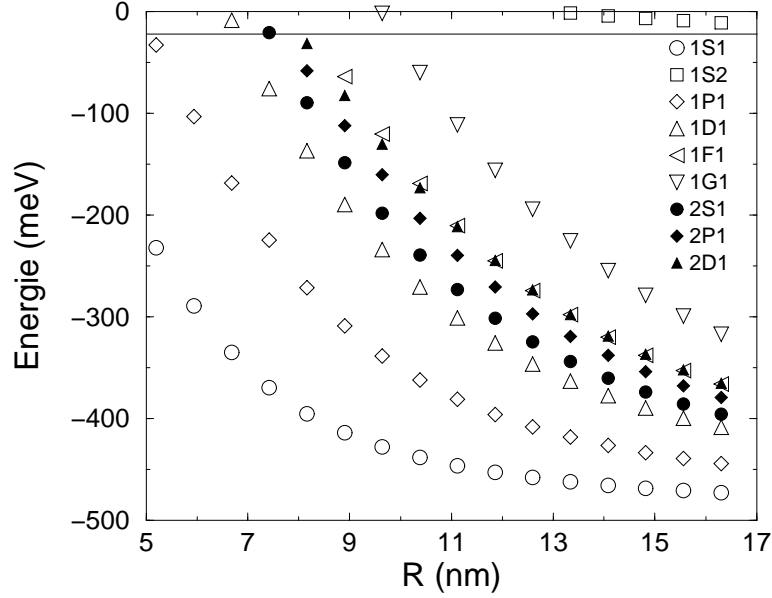


FIG. 3.4 – Variation des niveaux d'énergie des électrons par rapport au rayon de la boîte ( $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $\vartheta = 30^\circ$ ,  $d = 3.33 \text{ \AA}$ ,  $V_e = 697 \text{ meV}$ ).

obtenus comme solutions de l'hamiltonien effectif à une dimension (cf. eq. 2.10), ne peuvent pas être associés à des solutions liées du problème complet de la boîte quantique. Ils correspondent plutôt à des niveaux résonants dans la couche de mouillage. On montrera l'existence de ces niveaux dans le chapitre 6, où ils ont été calculés par la méthode numérique.

### 3.3 Comparaison avec un modèle multi-bandes

Dans le chapitre précédent nous avons comparé les résultats obtenus par cette méthode avec ceux qui ont été obtenus par des autres méthodes de calcul, mais toujours dans le formalisme de masse effective à une seule bande. Nous comparerons ici les résultats de notre approche à une bande avec les calculs  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  à huit bandes de Stier *et al.* [5] pour la bande de conduction. Ces calculs ont été effectués pour un électron dans une boîte en forme de pyramide. On a fait une approximation des pyramides en recourant à des cônes de rayon tel que leur surface est la même que celle de la pyramide, et avec la même hauteur. Les valeurs du potentiel de confinement et de la masse effective sont les mêmes que dans l'article [5] :  $V_e = 413 \text{ meV}$ ,  $m_e = 0.067 m_0$ . On a trouvé un accord quantitatif excellent avec les calculs de Stier *et al.* : la différence entre leurs résultats et les notres est inférieure à 5 meV pour tous les différents rayons considérés. On trouve des états  $1P$

dégénérés qui diffèrent des états équivalents de Stier de 15 meV au maximum. La dégénérescence  $P_+ - P_-$  pourrait être enlevée si on avait pris en compte l'anisotropie de la boîte. Le bon accord entre les deux méthodes est la preuve du fait que le modèle simple à une bande rend compte de la partie essentielle de la physique des états d'électrons dans les boîtes quantiques, c'est à dire la quantification due au confinement spatial. Notre modèle ne tient pas compte directement des effets comme la contrainte ou le champ piézo-électrique. Pour pouvoir insérer ces détails dans une analyse théorique sophistiquée, il faudrait avoir une connaissance très précise de l'échantillon. Par exemple, les effets piézo-électriques nécessitent la connaissance du champ de contrainte, qui dépend fortement de l'interdiffusion. Les techniques actuelles de caractérisation ne permettent pas d'avoir de tels renseignements de façon quantitative.

### 3.4 Règles de polarisation pour l'absorption intrabande

On trouve en littérature des exemples d'expériences de spectroscopie intrabande réalisée sur des boîtes chargées [1, 6, 7, 8, 9]. Une des raisons de ces expériences est la réalisation de détecteurs dans l'infrarouge lointain. En effet, les boîtes peuvent être réalisées de façon à avoir une transition entre, par exemple, l'état fondamental et le continuum à la longueur d'onde souhaitée, typiquement de l'ordre de 100 meV. Il y a également des transitions à plus basse énergie entre deux états liés, par exemple l'état  $1S$  et l'état  $1P$ . Dans ce paragraphe nous étudierons la force d'oscillateur et les règles de sélection pour les transitions intrabandes de conduction. Nous verrons que, grâce à la règle de somme, nous obtiendrons aussi par ce calcul une mesure de la force d'oscillateur de la transition  $1S \rightarrow \text{continuum}$ . Dans les calculs nous avons supposé que chaque boîte de l'échantillon est chargée avec un électron dans son état fondamental. Cette hypothèse correspond au cas d'un dopage planaire ajusté à la concentration de boîtes. Elle est couramment réalisée dans de nombreux laboratoires. De plus, il est implicite que la température doit être faible ( $kT \ll E_{1P} - E_{1S}$ ) de façon à garantir que, statistiquement, les électrons de chaque boîte, supposés thermalisés, soient dans l'état fondamental.

Supposons un échantillon avec un plan de boîtes de densité  $N_d$ . Dans une expérience de transmission, la quantité mesurée expérimentalement est la probabilité d'absorption. Pour calculer cette quantité, on peut modéliser l'échantillon qui contient les boîtes comme un ensemble de  $N_d$  dipôles, distribués uniformément sur le plan  $z = 0$  de surface  $S$ . Du point de vue classique, la réponse des  $N_d$  oscillateurs à une onde électromagnétique qui se propage le long de l'axe  $z$ , polarisée linéairement le long de  $x$ , est caractérisée par une susceptibilité linéaire,

qui a l'expression suivante :

$$\chi(\omega) = \chi_1(\omega) + i\chi_2(\omega) = \frac{N_d e^2}{\varepsilon_0 m^* S} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega/\tau} \quad (3.2)$$

où  $\omega_0$  est la fréquence de résonance et  $1/\tau$  est le taux d'amortissement des oscillateurs classiques correspondants aux boîtes. Si les boîtes sur l'échantillon ont des tailles différentes,  $\omega_0$  et  $\tau$  sont aussi différents pour chaque boîte : il faut alors faire la moyenne de  $\chi(\omega)$  sur la densité de probabilité  $P(\omega_0, 1/\tau)$ . Le champ électromagnétique associé à l'onde est :

$$\vec{F} = \hat{x} F(z) e^{-i\omega t} \quad (3.3)$$

Ce dernier peut être écrit pour  $z \leq 0$  comme la somme de l'onde plane qui arrive sur l'échantillon  $e^{ikz}$  et de l'onde plane réfléchie  $r(k)e^{-ikz}$ ; pour  $z \geq 0$  il y a simplement une onde transmise  $t(k)e^{ikz}$ . La probabilité de transmission (réflexion) est définie comme  $|t|^2$  ( $|r|^2$ ) où :

$$t(k) = \frac{1}{1 - \frac{i\omega^2}{2c^2 k} \chi(\omega)} \quad (3.4)$$

et

$$r(k) = 1 - t(k). \quad (3.5)$$

La probabilité d'absorption  $A(\omega)$ , qui est donnée par  $1 - R - T$ , vaut alors :

$$A(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2 k} \frac{\chi_2 - \frac{\omega^2}{4c^2 k} \chi_1^2}{\left(1 + \frac{\omega^2}{2c^2 k} \chi_2\right)^2 + \frac{\omega^4}{4c^4 k^2} \chi_1^2} \quad (3.6)$$

Dans la limite d'absorption faible on obtient :

$$A(\omega) \simeq \frac{\omega}{nc} \chi_2(\omega) \quad (3.7)$$

L'équivalent quantique de la susceptibilité est donné par l'expression suivante [10, 11] :

$$\chi(\omega) = \chi_1(\omega) + i\chi_2(\omega) = \frac{N_d e^2}{\varepsilon_0 m^* S} \sum_{f \neq 0} \frac{OS_{0 \rightarrow f}}{(\omega_f - \omega_0)^2 - \omega^2 - i\omega/\tau} \quad (3.8)$$

où la somme est sur tous les états liés, du continuum de la couche de mouillage et du continuum de la barrière. La quantité  $OS_{0 \rightarrow f}$  est la **force d'oscillateur** de la transition  $0 \rightarrow f$  et donne le "nombre" d'oscillateurs à la fréquence  $\omega_f - \omega_0$  pour une polarisation dans la direction  $\hat{\varepsilon}$  :

$$OS_{0 \rightarrow f} = \frac{2}{m^* \hbar (\omega_f - \omega_0)} |\langle 0 | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | f \rangle|^2 \quad (3.9)$$

On peut utiliser la relation de commutation entre la position et le moment pour écrire la force d'oscillateur sous une autre forme :

$$\mathbf{p} = \frac{m^*}{i\hbar} [\vec{r}, H] \quad (3.10)$$

et donc :

$$\langle 0 | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | f \rangle = \frac{m^*}{i\hbar} (E_f - E_0) \langle 0 | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle \quad (3.11)$$

On obtient donc pour la force d'oscillateur la définition équivalente (c'est la quantité qu'on va calculer dans la pratique) :

$$OS_{0 \rightarrow f} = \frac{2m^*}{\hbar^2} (E_f - E_0) |\langle 0 | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle|^2 \quad (3.12)$$

La règle de somme établit que la somme des forces d'oscillateur pour les transitions d'un état initial donné  $|i\rangle$  vers tous les états finaux possibles  $|f\rangle$  doit être égal à 1 :

$$\sum_f OS_{i \rightarrow f} = 1 \quad (3.13)$$

Grâce à la règle de somme nous obtenons donc des renseignements sur l'importance des transitions qui font intervenir les états du continuum par le calcul de la force d'oscillateur des transitions lié-lié. En physique atomique l'absorption d'un état lié vers un autre état lié (BB, bound to bound) est isotrope. Pour les boîtes quantiques la seule symétrie qui existe est dans le plan ; comme pour les molécules linéaires il faut donc distinguer entre les excitations polarisées dans le plan ( $\hat{\varepsilon}$  parallèle au plan de la couche de mouillage) et celles qui sont polarisées verticalement ( $\hat{\varepsilon}$  parallèle à l'axe de croissance  $z$ ). Nous montrerons dans la suite que dans une boîte isolée l'absorption est très anisotrope. Nous verrons dans le chapitre suivant que l'anisotropie diminue quand plusieurs boîtes sont couplées verticalement. Pour une polarisation dans le plan ( $\hat{\varepsilon} // \hat{x}$ ), si l'état initial est l'état  $1S1$ , la force d'oscillateur est non nulle seulement si l'état final a une symétrie  $P$  (à cause de l'intégrale sur  $\vartheta$ ). Dans la figure 3.5 l'élément de matrice de dipôle  $\langle 1S1 | \hat{x} | nP1 \rangle$  et la force d'oscillateur sont représentés pour  $n = 1, 2$  en fonction du rayon de la boîte. Il faut remarquer que la première transition permise prend presque toute la force d'oscillateur. La deuxième transition est beaucoup plus faible par rapport à la première : son élément de matrice est presque dix fois plus petit et son énergie  $E_{2P1} - E_{1S1}$  est plus grande que  $E_{1P1} - E_{1S1}$  de moins d'un facteur deux. Ces résultats rappellent ceux concernant l'oscillateur harmonique à deux dimensions, pour lequel  $OS_{1S \rightarrow nP} = \delta_{n,1}$ . En conséquence, les transitions de l'état fondamental vers les états du continuum sont pratiquement interdites pour une polarisation dans le plan. Pour une polarisation verticale, ( $\hat{\varepsilon} // \hat{z}$ ), seuls les états excités de type  $1Sj$  contribuent à l'absorption depuis l'état fondamental. Pour une boîte isolée de dimensions typiques ( $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = 30^\circ$ ,  $R = 100 \text{ \AA}$ ) il

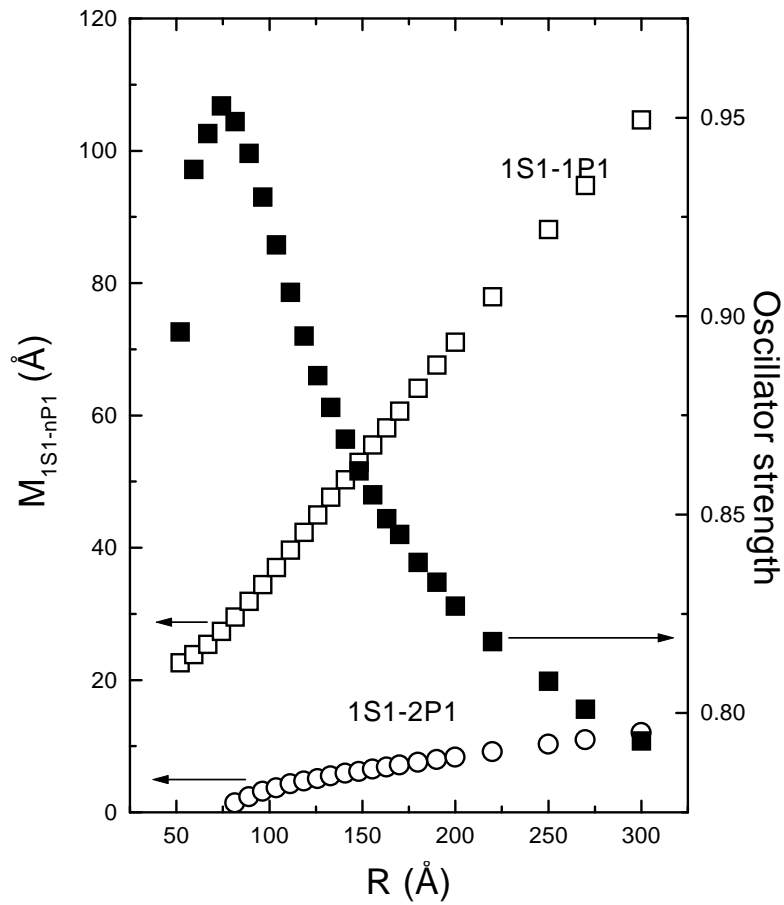


FIG. 3.5 - Élément de matrice de dipôle (échelle à gauche) pour les transitions  $1S1 \rightarrow 1P1$  et  $1S1 \rightarrow 2P1$  et force d'oscillateur (échelle à droite) pour la transition  $1S1 \rightarrow 1P1$  en fonction du rayon de la boîte.  $h = 30 \text{\AA}$ ,  $\alpha = 30^\circ$ ,  $V_e = 697 \text{ meV}$ .



y a seulement un état de type  $1Sj$ , l'état fondamental. Dès lors l'absorption vers les états liés est minimale, et celle vers les états du continuum est maximale. On a donc une situation opposée à celle obtenue pour la polarisation dans le plan. Il y a une très forte anisotropie entre les deux polarisations. Nous verrons dans le prochain chapitre que l'existence de cette anisotropie donnera un critère pour savoir si dans un système de plusieurs couches de boîtes elles sont ou non couplées verticalement.

### 3.5 Images STM des fonctions d'onde des boîtes

Nous avons déjà souligné que les boîtes quantiques sont de systèmes complexes, où le potentiel de confinement dépend des dimensions, de la forme et de la composition de la boîte. Plusieurs efforts expérimentaux ont été effectués pour avoir des renseignements précis sur ces paramètres. Du moment que les boîtes quantiques que l'on étudie sont obtenues par croissance auto-organisée, toute expérience effectuée sur un échantillon ne peut donner des renseignements que sur les paramètres moyens (les non uniformités de taille sont de l'ordre du 10%, celles de la composition de l'ordre de 1%). On comprend alors l'importance de la spectroscopie de boîte unique : des techniques normalement utilisées pour étudier les molécules ou les surfaces, par exemple le STM (Scanning Tunnelling Microscopy) [12][13][14], ou le TEM (Transmission Electron Microscopy)[15], sont employées pour connaître les propriétés d'une boîte unique. La modélisation théorique est alors importante pour comprendre et interpréter les résultats de ces expériences. Nous verrons dans le chapitre 5 comment la modélisation des états électroniques des boîtes et les expériences de microscopie TEM et de EELS (Electron Energy Loss Spectroscopy)[15] ont permis d'avoir des renseignements importants sur les non-uniformités de la composition des boîtes. Dans ce paragraphe nous montrons comment il est possible d'obtenir des images des fonctions d'onde des états liés d'une boîte unique par le STM. Les expériences ont été réalisées par Johal *et al.* [14] dans les laboratoires NNL de Lecce (Italie) sur une boîte unique de InGaAs/GaAs. On renvoie à l'article [14] pour les détails de l'expérience. Ici nous montrerons simplement la modélisation du courant tunnel entre la pointe du STM et la boîte pour comprendre les résultats de ces expériences. Tous les calculs ont été effectués sur les états de trou, parce que les images expérimentales de ces états présentent beaucoup plus de contraste que celles des états d'électron. Suivant le modèle de Tersoff et Hamann [16], le courant tunnel entre la pointe du STM et la boîte est donné par la formule suivante :

$$I(\vec{r}_t, E, \Phi) \simeq \sum_{n,l \geq 0, j} g_l \left[ \frac{1}{1 + e^{-\beta E_{nlj}}} - \frac{1}{1 + e^{-\beta(E_{nlj} + \Phi)}} \right] |\Psi_{nlj}(\vec{r}_t)|^2 + (3.14) \\ \frac{S}{4\pi^2} \int d^2k \left[ \frac{1}{1 + e^{-\beta E_k}} - \frac{1}{1 + e^{-\beta(E_k + \Phi)}} \right] |\Psi_{\mathbf{k}}(\vec{r}_t)|^2$$

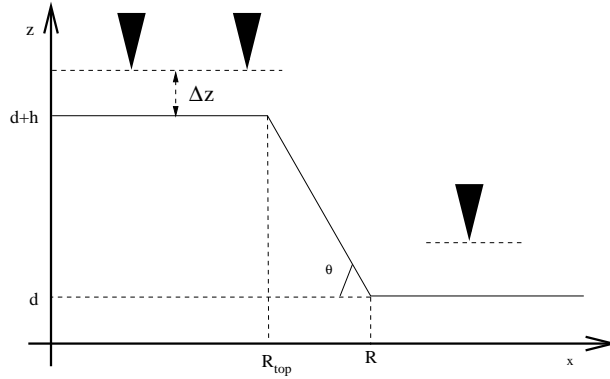


FIG. 3.6 – Schéma de la boîte et de la pointe du STM pour obtenir une image topographique. La distance entre la pointe et la surface est constante.

où  $\vec{r}_t$  est le vecteur qui indique l'extrémité de la pointe ;  $\Psi_{nlj}(\vec{r}_t)$  sont les fonctions d'onde des états liés de la boîte, repérées par les nombres quantiques  $n, l, j$  ;  $\Psi_{\mathbf{k}}(\vec{r}_t)$  sont les fonctions d'onde des états de la couche de mouillage, identifiées par le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  ;  $\beta = 1/k_B T$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann ;  $\Phi$ , le potentiel appliqué, est la différence entre le potentiel chimique de la boîte,  $\Phi_S$  (fixé à mi-gap à cause de la présence des défauts à la surface), et le potentiel chimique de la pointe,  $\Phi_T$  ( $\Phi = \Phi_T - \Phi_S$ ) ;  $g_l = 1$  si  $l = 0$ , et  $g_l = 2$  si  $l \neq 0$ . Pour obtenir des résultats cohérents avec les résultats expérimentaux, nous avons considéré un potentiel de confinement pour les trous  $V_h = 133$  meV. La différence avec le modèle développé dans les paragraphes précédents est que la boîte n'est pas dans une matrice de GaAs, mais dans le vide. La jonction tunnel entre la barrière du vide et la surface de la boîte et de la couche de mouillage est oxydée. En première approximation la couche d'oxyde peut être traitée comme une couche isolante. Il existe un très grand nombre de travaux sur la spectroscopie tunnel de ces jonctions [17]. Il a été montré que si dans le calcul on considère la barrière de la couche isolante comme la barrière du vide les propriétés principales du courant tunnel sont qualitativement reproduites. Dans la suite nous utiliserons cette approximation. L'influence du vide est traitée en considérant une barrière de 2 eV, c'est à dire beaucoup plus grande que celle entre la boîte et le GaAs. Les dimensions de la boîte sont les suivantes :  $R = 170$  Å,  $R_{top} = 85$  Å,  $h = 54$  Å ; l'épaisseur de la couche de mouillage est  $d = 14$  Å. En ce qui concerne les états de la couche de mouillage, ils sont calculés par la méthode des ondes planes orthogonalisées (OPW) ; nous verrons dans le chapitre 6 comment ces états sont calculés et comment les résultats obtenus se comparent avec ceux qui ont été obtenus par la méthode numérique. Nous nous limiterons ici à discuter les résultats du calcul du courant tunnel.

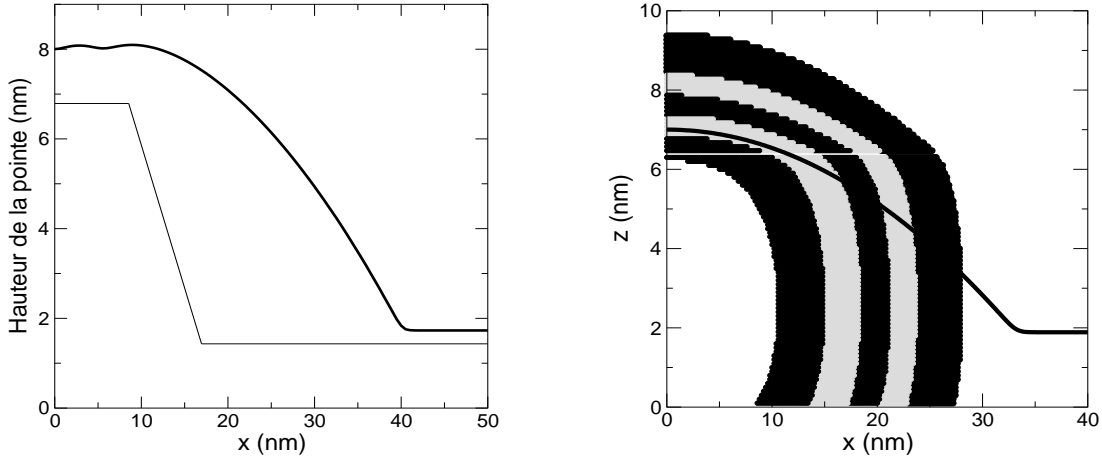


FIG. 3.7 – A gauche : image topographique de la boîte, comparée à sa forme géométrique. A droite : densité de probabilité de l'état  $1S1$  ; la zone noire le plus à l'intérieur correspond à une probabilité  $P$  entre  $10^{-4}$  et  $10^{-2}$  ; pour les zones suivantes  $10^{-6} < P < 10^{-4}$ ,  $10^{-8} < P < 10^{-6}$ ,  $10^{-10} < P < 10^{-8}$ ,  $10^{-14} < P < 10^{-10}$ . La courbe représente la contribution du seul état  $1S1$  à l'image topographique.

Il y a plusieurs modes de fonctionnement pour le STM. Il peut d'abord être utilisé dans le but d'obtenir des images topographiques  $z(x, y)$ . Ces dernières sont réalisées en gardant le courant  $I$  et le potentiel  $\Phi$  constants. Un système de rétroaction varie la hauteur de la pointe de façon à garder le courant constant. Cela est équivalent à dire que la distance  $\Delta z$  entre la pointe et la surface reste constante. La figure 3.6 schématise ce mode de fonctionnement. Le résultat du calcul de  $z(x, y)$ , pour  $\Phi = 2$  eV et  $T = 300$ K, est présenté figure 3.7 (partie gauche) ainsi que la forme géométrique de la boîte pour comparaison. L' "image" de la boîte que nous avons obtenue par notre simulation est beaucoup plus étendue que la forme géométrique. La raison est que cette "image" dépend de la distribution de charge et non de la forme géométrique. En particulier, si le seul état  $S$  contribue au courant  $I$ , l' "image" topographique montre la dépendance spatiale de la fonction d'onde  $S$  (voir figure 3.7 à droite). A température ambiante, plusieurs états de la boîte donnent une contribution au courant. Ils ont une extension spatiale de plus en plus grande. C'est pour cette raison que l'image topographique calculée est très large. Il faut aussi tenir compte du fait que le modèle utilisé pour le calcul des états liés ne donne pas une bonne approximation des fonctions d'onde en dehors de la boîte. A une distance suffisamment grande du centre de la boîte, seuls les états de la couche de mouillage contribuent au courant. Cela reflète la nature délocalisée de ces états dans le plan.

Une fois que l'image topographique a été obtenue, le STM peut être utilisé pour obtenir des spectres de courant-tension. Pour un point donné dans le plan,

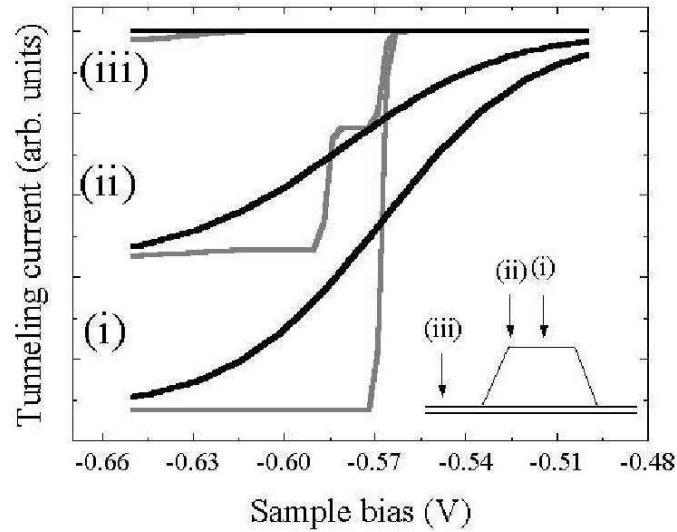
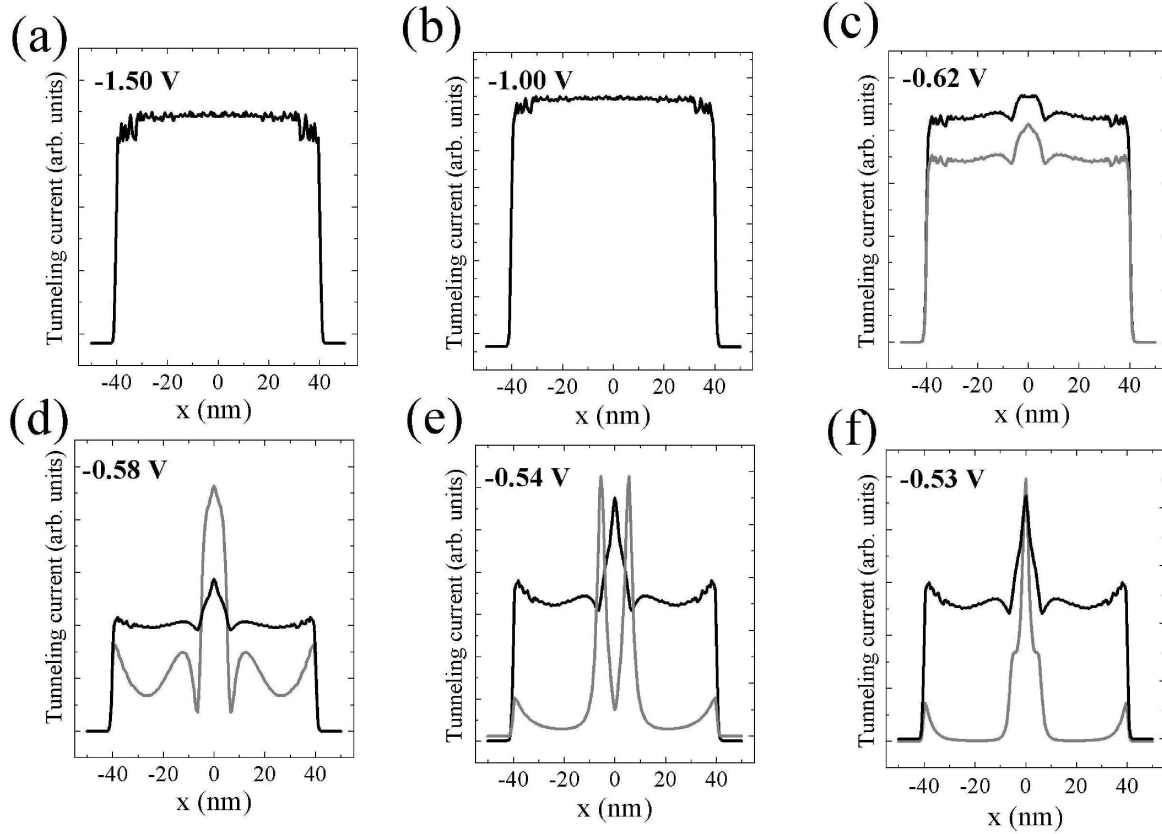


FIG. 3.8 – Spectre  $I - V$  calculé pour trois positions de la pointe : (i) au centre de la boîte; (ii) à la périphérie de la boîte; (iii) loin de la boîte. Les courbes en noir ont été obtenues à  $T = 300\text{K}$ , celles en gris à  $T = 10\text{K}$ .  $V$  est négatif parce qu'il s'agit d'états de trou.

il faut se placer dans les conditions expérimentales des images topographiques (c'est à dire fixer la hauteur de la pointe) et enlever la rétroaction pour mesurer  $I$  en fonction de  $V = \Phi/e$ . Le spectre ainsi obtenu donne des renseignements sur la densité d'états. Dans la figure 3.8 nous avons montré le spectre  $I - V$  pour trois positions différentes de la pointe : (i) au centre de la boîte, (ii) à l'intérieur de la boîte, (iii) loin de la boîte. La courbe en gris a été obtenue pour une température de 10K, celle en noir à 300K. Nous avons négligé la dépendance du gap avec la température pour pouvoir mieux comparer les deux courbes. A basse température, si la pointe se trouve au centre de la boîte, seuls les états  $S$  contribuent au courant tunnel, les autres états ayant un noeud en  $\rho = 0$ . Au fur et à mesure que l'on éloigne la pointe du centre de la boîte, les autres états liés contribuent également au courant. Le seuil des contributions des différents états est montré dans le tableau 3.1. Dans la figure 3.8 on ne voit que le seuil de la contribution des états plus excités, parce que le courant dû aux états liés plus profonds est beaucoup plus petit et on ne le voit pas à l'échelle de la figure. Il faut remarquer que la structure fine de la courbe  $I(V)$ , qui est due à la contribution, induite par  $V$ , d'un nouveau niveau de trou au courant, est complètement effacée quand on augmente la température. A température ambiante, la courbe  $I(V)$  est sans structure, parce que le fait de peupler un niveau de trou supplémentaire donne une contribution moins importante au courant.

Une autre quantité qui a été mesurée expérimentalement est le spectre  $I - x$

	$\Phi = -V$
1S1	520.4 meV
1P1	540.1 meV
1D1	562.18 meV
2S1	567.6 meV
1S2	570.3 meV
2P1	578.2 meV
1F1	586 meV
1P2	599.2 meV
WL	614.6 meV

TAB. 3.1 – Seuil de  $\Phi$  correspondant aux différents états de la boîte.FIG. 3.9 – Spectres de courant tunnel  $I(x)$  à différentes valeurs de  $V$  ; les courbes en noir ont été calculées à  $T = 300\text{K}$ , celles en gris à  $T = 10\text{K}$ .  $y = 0$  : la pointe passe par le centre de la boîte.

(cette technique expérimentale s'appelle STS, Scanning Tunneling Spectroscopy). C'est une mesure complémentaire de la précédente, dans le sens que la caractéristique tension-courant est mesurée pour chaque point de l'espace. Les images STS donnent, pour un potentiel fixé, la valeur du courant en chaque point de l'espace. Dans la figure 3.9 nous avons montré le résultat de ce type de calcul : le courant par rapport à la position de la pointe le long de l'axe  $x$  est montré pour différentes valeurs de  $V$ . Si  $V = -0.53$  V, la seule contribution au courant tunnel est celle due à l'état  $1S$  ; cette dernière est localisée au centre de la boîte. Quand on augmente la tension appliquée jusqu'à  $V = -0.54$  V, on rajoute la contribution de l'état  $1P$ , qui donne un courant qui entoure le signal dû à l'état  $1S$ . Si on continue d'augmenter le courant, on rajoute des nouvelles contributions chaque fois que le seuil des différents états est dépassé. A température ambiante toutes les contributions sont mélangées et il n'est pas possible d'en distinguer le seuil. Toutefois, même à température ambiante, on peut distinguer l'état fondamental à cause de la résolution spatiale du STM.

Nous renvoyons à l'article [14] pour la discussion des problèmes expérimentaux. Ici nous voulons simplement remarquer que les spectres expérimentaux et théoriques montrent des profils qui présentent la même allure. Il est important de remarquer également que pour avoir un courant permanent et mesurable il est nécessaire de supposer un échange de porteurs entre la boîte, la couche de mouillage et la barrière de GaAs. Les images obtenues expérimentalement peuvent être interprétées correctement seulement si la boîte n'est pas considérée comme isolée, mais en interaction avec l'environnement.

## 3.6 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons étudié les états liés d'électron et de trou dans une boîte quantique. Nous avons d'abord discuté du choix du potentiel de confinement, puis présenté le potentiel effectif et les fonctions enveloppes des états liés d'électron dans une boîte unique ; nous avons également discuté de comment les niveaux liés dépendent des dimensions de la boîte. Nous avons ensuite considéré un échantillon de boîtes et calculé la force d'oscillateur et les règles de sélection pour les transitions intrabandes de conduction. Nous avons finalement montré la modélisation de quelques expériences effectuées sur une boîte unique avec le STM.



# Bibliographie

- [1] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaitre, J. M. Gérard, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4152 (1999).
- [2] Ph. Lelong, O. Heller, G. Bastard, *Phys. E* **2**, 678 (1998).
- [3] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill, J. C. Clark, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 733 (2000).
- [4] J.-Y. Marzin, G. Bastard, *Solid State Commun.* **91**, 39 (1994).
- [5] O. Stier, M. Grundmann, D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **59**, 5688 (1999).
- [6] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, *Europhys. Lett.* **36**, 197 (1996).
- [7] S. Maimon, E. Finkman, G. Bahir, S. E. Schacham, J. M. Garcia, P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2003 (1998).
- [8] S. W. Lee, K. Hirakawa, Y. Shimada, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1428 (1999).
- [9] S. Sauvage, P. Boucaud, F. H. Julien, J. M. Gérard, J. Y. Marzin, *J. Appl. Phys.* **82**, 3396 (1997).
- [10] P. Y. Yu, M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer.
- [11] Gerald Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, pag. 237 et suiv, Les éditions de physique.
- [12] B. Legrand, B. Grandidier, J. P. Nys, D. Stievenard, J. M. Gerard, V. Thierry-Mieg, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 97 (1998).
- [13] B. Grandidier, Y. M. Niquet, B. Legrand, J. P. Nys, C. Priester, D. Stievenard, J. M. Gerard, V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1068 (2000).
- [14] T. K. Johal, R. Rinaldi, A. Passaseo, R. Cingolani, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard, *Phys. Rev. B*, (2002) (à paraître).
- [15] J. Shumway, A. J. Williamson, A. Zunger, A. Passaseo, M. De Giorgi, R. Cingolani, M. Catalano, P. Crozier, *Phys. Rev. B* **64**, 125302 (2001).
- [16] J. Tersoff, D. R. Hamann, *Phys. Rev B* **31**, 805 (1985).
- [17] R. Wiesendanger, *Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy*, Cambridge University Press (1998).





# Chapitre 4

## Boîtes couplées : “pagodes” quantiques

Dans ce chapitre, après une brève description de la fabrication de systèmes de boîtes quantiques empilées (qu’on a appelés “pagodes quantiques”), nous étudierons le couplage entre deux boîtes empilées en fonction de l’épaisseur de la barrière séparant les boîtes. On s’intéressera en particulier aux systèmes de boîtes fortement couplées : nous montrerons comment les énergies des états liés varient avec le nombre de boîtes. Nous étudierons enfin la force d’oscillateur ainsi que les règles de sélection des transitions intrabandes.

Les résultats présentés dans ce chapitre ont été détaillés dans l’article suivant, également cité dans l’annexe A : A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, G. Bastard, *Energy levels and far-infrared absorption of multi-stacked dots*, *Physica E* **11**, 41 (2001).

### 4.1 Systèmes à plusieurs couches de boîtes

Pour plusieurs applications (lasers, photo-détecteurs, etc.) il est nécessaire de disposer d’une grande concentration de boîtes quantiques. Pour l’obtenir, une façon consiste à réaliser des échantillons à plusieurs couches de boîtes. Dans le mode de croissance de Stranski-Krastanov [1] il a été observé que, lors de la déposition successive de plusieurs couches de boîtes, séparées par un matériau barrière, les boîtes d’une couche ont tendance à pousser au dessus des boîtes de la couche inférieure. La figure 4.1 montre les différentes étapes de ce processus [2]. Une fois que les boîtes quantiques (par exemple de In(Ga)As) se sont formées, il faut déposer du matériau barrière (GaAs) et arrêter la déposition avant que les boîtes ne soient complètement couvertes. L’In(Ga)As, pour arriver à l’équilibre, a tendance à s’évaporer depuis les îlots tridimensionnels pour couvrir la surface libre de GaAs, en formant une deuxième couche de mouillage. Cette dernière, à ce stade, n’est pas complète ; elle le sera après une déposition ultérieure de

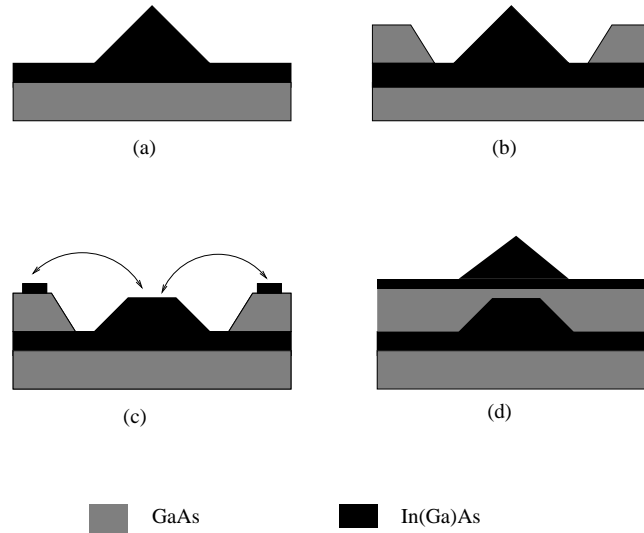


FIG. 4.1 – Schéma des étapes de la formation d'une structure de boîtes empilées.

In(Ga)As. Les îlots de la première couche produisent un champ de contrainte qui réduit le désaccord de maille entre le In(Ga)As et le GaAs qui est au dessus des îlots. En conséquence, les atomes d'In, qui forment la couche ultérieure, ont tendance à s'accumuler au dessus des îlots déjà existants. Il est possible d'obtenir un alignement vertical efficace si l'épaisseur de GaAs entre deux couches est plus petite qu'une valeur critique.

Les techniques actuelles de croissance permettent d'obtenir différents types de structures : des structures à plusieurs couches de boîtes, qui interagissent très faiblement l'une avec l'autre, jusqu'à des systèmes de boîtes fortement couplées, pour lesquelles le concept même de couplage tunnel n'a pas de sens parce qu'il n'y a pas de barrière entre les différentes couches. Nous montrerons que si les boîtes sont séparées, le système a un comportement de type *moléculaire* : les niveaux de la structure peuvent être attribués au couplage tunnel entre les états des différentes boîtes. En revanche, si les boîtes sont fortement couplées, les états de la structure sont bien décrits par un profil de confinement de type *cylindrique* : les fonctions enveloppes sont délocalisées dans la direction de croissance et montrent de petites oscillations latérales à proximité de la couche de mouillage.

## 4.2 Couplage vertical

Dans le chapitre 2 nous avons présenté les différentes méthodes utilisées pour le calcul des niveaux d'énergie des boîtes quantiques. Nous avons brièvement remarqué que l'avantage principal de la méthode “mixte” est qu'elle peut être

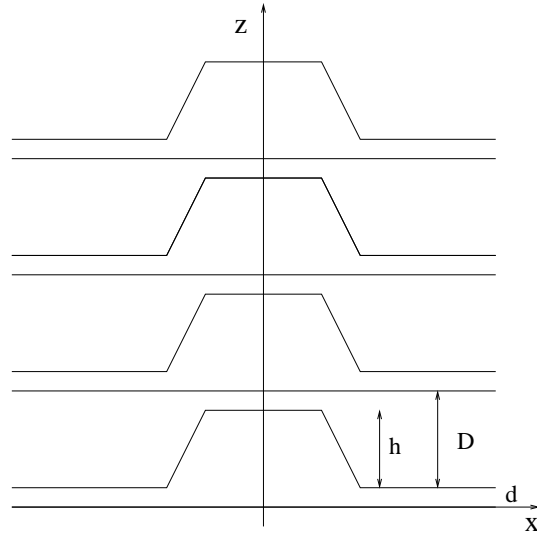


FIG. 4.2 – Schéma d'un système de plusieurs couches de boîtes.

appliquée dans le cas des systèmes de boîtes empilées. Cela vient du fait que la fonction enveloppe en  $z$  est calculée variationnellement. Dans le paragraphe précédent nous avons également vu que, grâce aux techniques de croissance, il est possible d'obtenir des systèmes de boîtes empilées dont les propriétés principales dépendent de la valeur de l'épaisseur de la barrière entre les couches. Nous montrerons que notre méthode est capable de rendre compte des différences entre les systèmes possibles, en étudiant le couplage entre les boîtes par rapport à l'épaisseur de la barrière. La figure 4.2 schématise un système de quatre boîtes empilées, ce qu'on pourrait appeler une “*pagode quantique*”. Grâce à notre méthode nous pouvons varier tous les paramètres de la structure pour en étudier les propriétés de confinement.

Considérons d'abord une structure de deux boîtes et supposons une variation de la quantité  $D$ , qui mesure la distance entre les deux couches de mouillage. Le résultat pour les niveaux  $1S$  et  $1P$  d'électron est présenté sur la figure 4.3. Le seuil de la couche de mouillage est également présenté : il correspond à la solution de l'état fondamental pour deux puits quantiques couplés. Dans la figure 4.3 on peut distinguer deux régimes différents. Pour  $D \leq 30 \text{ \AA}$  les boîtes se touchent. La hauteur de la boîte supérieure est constante ( $h_2 = 30 \text{ \AA}$ ), tandis que celle de la boîte inférieure vaut  $h_1 = D$  et varie entre  $h_1 = 0$  et  $h_1 = 30 \text{ \AA}$ . A  $D = 0$  on obtient les solutions d'un problème à une seule boîte avec une couche de mouillage d'épaisseur  $2d$ ; dans ce cas seuls un état  $1S$  et un état  $1P$  sont liés, comme dans le cas d'une boîte avec une couche de mouillage d'épaisseur  $d$ . Pour  $D \geq 30 \text{ \AA}$  les deux boîtes identiques sont séparées par une barrière

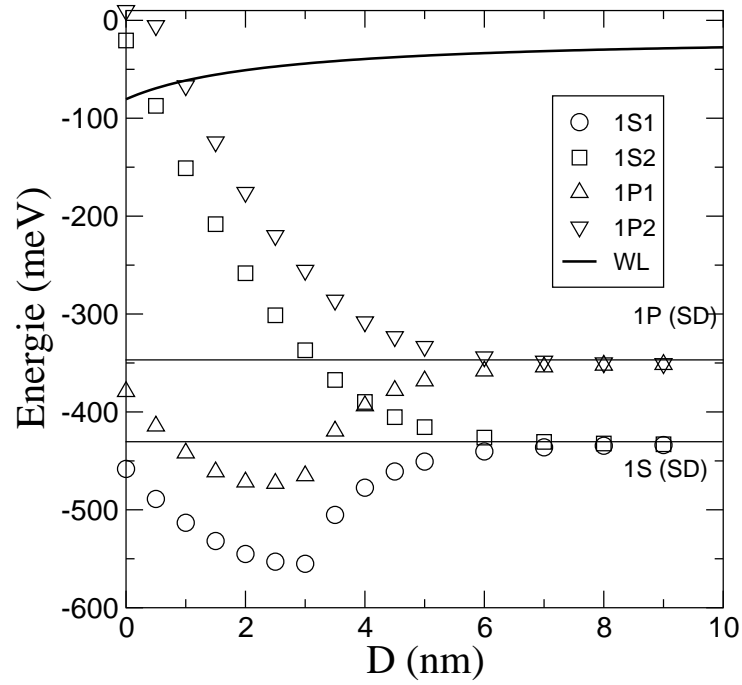


FIG. 4.3 – Niveaux d'énergie des états de type  $1S$  et  $1P$  pour un système de deux boîtes.  $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $\vartheta = 30^\circ$ ,  $V_e = 697 \text{ meV}$ . La hauteur de la boîte supérieure est  $h_2 = 30 \text{ \AA}$ . La hauteur de la boîte inférieure  $h_1$  varie de  $0$  à  $30 \text{ \AA}$  pour  $D \leq 30 \text{ \AA}$ , et  $h_1 = 30 \text{ \AA}$  pour  $D \geq 30 \text{ \AA}$ .

de plus en plus épaisse. On peut remarquer que les courbes relatives aux états  $1S1$  et  $1P1$  montrent un minimum très prononcé à  $D = 30 \text{ \AA}$ . La forme de ce minimum est très surprenante, car la dérivée première n'est pas continue. Selon le théorème de Feynmann-Hellmann [3] la dérivée de l'énergie par rapport à tous les paramètres dont l'hamiltonien dépend devrait être continue. En particulier, elle devrait être continue par rapport à  $D$ . En effet, il n'y a pas de contradiction avec ce théorème puisque les hamiltoniens dans les deux régimes sont très différents : quand les boîtes sont séparées, il y a un potentiel continu par morceau en plus, correspondant à la barrière. Cette dernière devient de plus en plus épaisse au fur et à mesure que  $D$  augmente. Les courbes relatives aux états  $1S2$  et  $1P2$  ne montrent pas de discontinuité de la dérivée première. Cela est dû au fait que les fonctions enveloppes de ces états ont un noeud en  $z$  à proximité du centre de la structure, où les effets de la séparation entre les boîtes sont plus importants (voir figure 4.4).

La différence entre les deux régimes  $D > 30 \text{ \AA}$  et  $D < 30 \text{ \AA}$  apparaît évidente si on étudie les fonctions enveloppes dans la direction  $z$  pour des valeurs différentes de  $D$  (figure 4.4). Pour  $D = 20 \text{ \AA}$  et  $D = 30 \text{ \AA}$ , c'est à dire en absence de barrière, la fonction enveloppe en  $z$  de l'état fondamental est délocalisée dans tout le système. Le système se comporte comme une structure unique. Nous verrons dans le prochain paragraphe que le mouvement de l'électron est très bien décrit par les solutions d'un potentiel *cylindrique*. En conséquence, le mouvement en  $z$  est celui d'un électron dans un puits carré. Quand  $D = 40 \text{ \AA}$ , c'est à dire quand il y a une barrière d'épaisseur  $\delta = 10 \text{ \AA}$ , la fonction d'onde de l'état fondamental présente un minimum dans la région de la barrière. Elle n'est plus délocalisée dans la structure, mais la probabilité est maximale dans la région de la deuxième boîte. La fonction enveloppe de l'état  $1S2$  présente un noeud dans la barrière et est maximale dans la première boîte. Ces propriétés sont beaucoup plus accentuées quand on augmente l'épaisseur de la barrière (dans la figure  $D = 60 \text{ \AA}$ , donc  $\delta = 30 \text{ \AA}$ ). Nous pouvons en conclure que dans la région où  $D > 30 \text{ \AA}$  les fonctions enveloppes des états  $1S1$  et  $1S2$  (ou de la même façon  $1P1$  et  $1P2$ ) sont de plus en plus localisées dans les deux boîtes, et ressemblent aux solutions symétrique et antisymétrique des états de la boîte isolée ( $E_{1S1(SD)} = -433 \text{ meV}$ ,  $E_{1P1(SD)} = -351 \text{ meV}$ ). La région où les boîtes sont séparées correspond donc au *régime moléculaire* qui s'instaure quand deux orbitales atomiques, localisées dans une boîte donnée, commencent à s'hybrider pour donner lieu à des niveaux liants et antiliants ; la séparation en énergie entre ces derniers augmente quand  $D$  diminue. La région  $D < 30 \text{ \AA}$ , au contraire, n'a pas d'équivalent dans la physique moléculaire : les noyaux sont des particules ponctuelles (tandis que les boîtes ont des dimensions finies) dont la répulsion coulombienne domine les intégrales de transfert à des distances petites (tandis que les boîtes sont neutres). Nous nous intéresserons par la suite au régime de couplage fort entre les boîtes. Nous verrons dans le paragraphe suivant, ainsi que dans le prochain chapitre, que les systèmes de boîtes fortement couplées se comportent comme des puits quantiques, avec

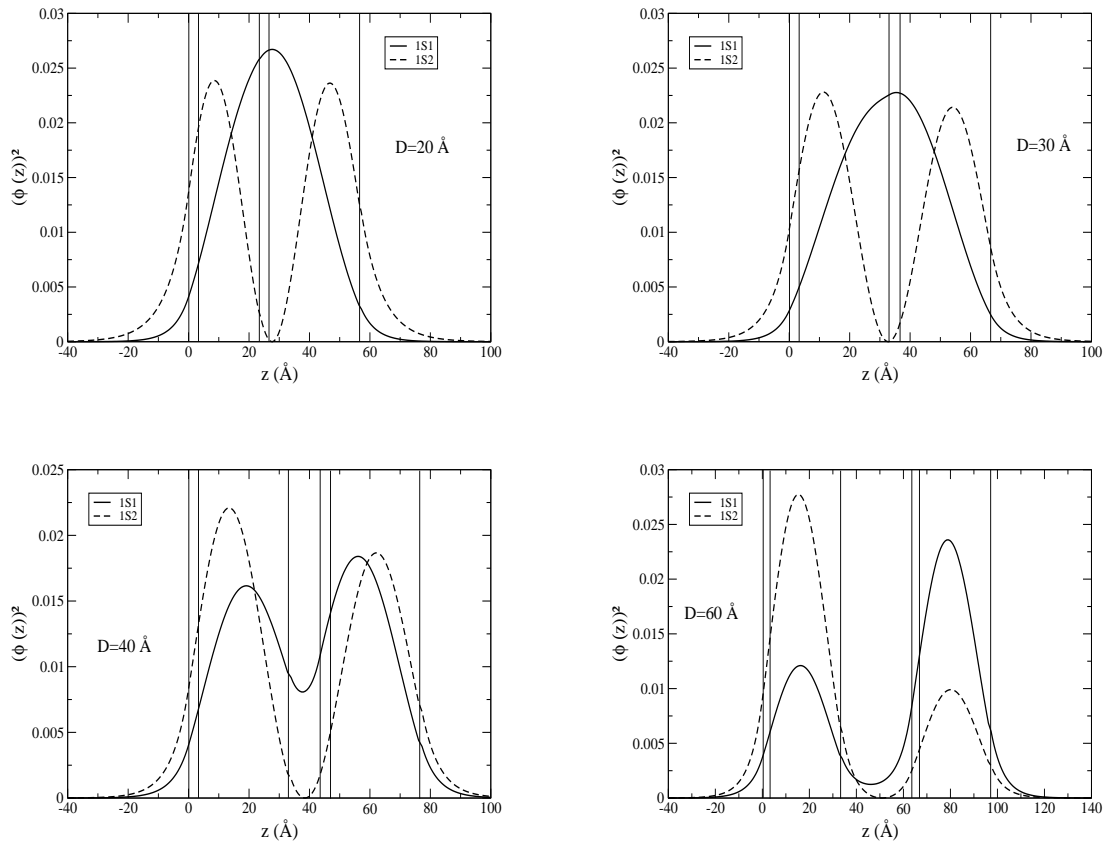


FIG. 4.4 – Distribution de probabilité pour le mouvement vertical relative aux états  $1S1$  et  $1S2$  d’une structure à deux boîtes empilées. Les quatre figures sont obtenues à des valeurs différentes de  $D$ .  $z = 0$  à la première interface barrière-couche de mouillage.

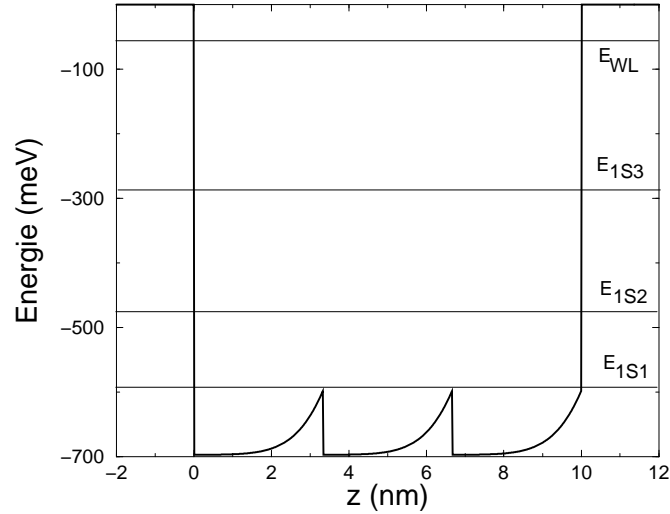


FIG. 4.5 – Potentiel effectif pour les états de type  $1S$  dans un système de trois boîtes couplées verticalement. Il n'y a pas de barrière entre les boîtes.  $R_1 = R_2 = R_3 = 100 \text{ \AA}$ ,  $h_1 = h_2 = h_3 = 30 \text{ \AA}$ .

une propriété en plus : le confinement dans le plan.

### 4.3 Boîtes fortement couplées

La figure 4.5 présente le potentiel effectif pour les niveaux de type  $1S$  dans un système de trois boîtes identiques fortement couplées (sans barrière entre les boîtes). Les lignes horizontales montrent les niveaux d'énergie obtenus :  $E_{1S1} = -591.7 \text{ meV}$ ,  $E_{1S2} = -474.4 \text{ meV}$ ,  $E_{1S3} = -287.4 \text{ meV}$ . Le coefficient variationnel pour le mouvement dans le plan vaut  $\beta_{10} = 34.37 \text{ \AA}$ . On peut observer que le potentiel effectif obtenu n'est pas très différent de celui d'un puits quantique de profondeur  $V_e$  et largeur  $L_{PQ} = 3 * (d + h) \simeq 100 \text{ \AA}$ . Si l'on examine les fonctions enveloppes (présentées dans la figure 4.6) on peut remarquer que les fonctions d'onde aussi nous rappellent les solutions du puits quantique. La différence entre les solutions de la boîte et celles du puits est dans le confinement dans le plan. Nous estimons ce confinement par le calcul de la quantité suivante :

$$\langle E_{ce}^{\rho, \vartheta} \rangle = \langle \Psi_{1S} | E_{ce}^{\rho, \vartheta} | \Psi_{1S} \rangle = \frac{\hbar^2}{2m^* \beta_{10}^2} \quad (4.1)$$

où  $\langle E_{ce}^{\rho, \vartheta} \rangle$  correspond à l'opérateur énergie cinétique associé au mouvement dans le plan. Nous obtenons donc  $\langle E_{ce}^{\rho, \vartheta} \rangle = 48 \text{ meV}$ . Si l'on additionne cette quantité aux niveaux d'énergie du puits de largeur  $L_{PQ}$  et de profondeur  $V_e$  on obtient



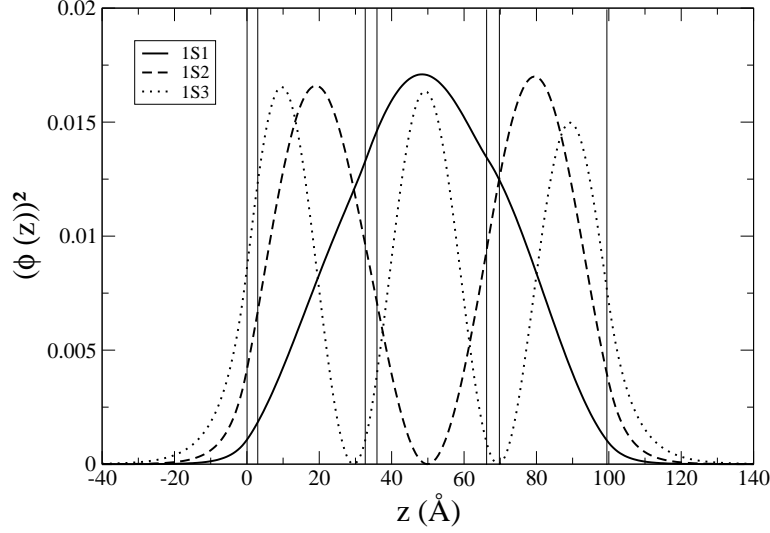


FIG. 4.6 – Distribution de probabilité pour le mouvement vertical relative aux trois états liés  $1S$  d’une structure à trois boîtes ( $R_1 = R_2 = R_3 = 100 \text{ \AA}$ ,  $h_1 = h_2 = h_3 = 30 \text{ \AA}$ ).

PUITS	PUITS + $\langle E_{ce}^{\rho, \psi} \rangle$	BOÎTE
-656.9 meV	-609 meV	-591.7 meV
-538.2 meV	-490.2 meV	-474.4 meV
-347 meV	-299 meV	-287.4 meV

TAB. 4.1 – Comparaison entre les énergies des états  $1Sj$  de la boîte et ceux des états liés du puits

des résultats peu différents de ceux de la boîte, comme on peut le voir dans le tableau 4.1. Nous pouvons donc conclure que, quand les boîtes sont fortement couplées, l’approximation d’un potentiel de confinement cylindrique tridimensionnel permet d’estimer les énergies des états  $1Sj$  d’électron. Cela est dû au fait que les boîtes se touchent ; la région de InAs forme donc un couloir dans la barrière de GaAs, avec une largeur effective contrôlée par  $\beta_{10}$ . Les petites différences entre les énergies calculées avec le potentiel cylindrique et celles calculées avec le système de boîtes sont dues aux différences entre le potentiel effectif de la boîte et celui du cylindre (petites “oscillations” dans la structure en fig. 4.5. L’approximation “cylindrique” devient mauvaise si l’on considère des états excités ( $P$ ,  $D$ , etc.). Le potentiel effectif de ces derniers diffère de plus en plus du potentiel cylindrique, comme on l’a vu sur la figure 3.1.

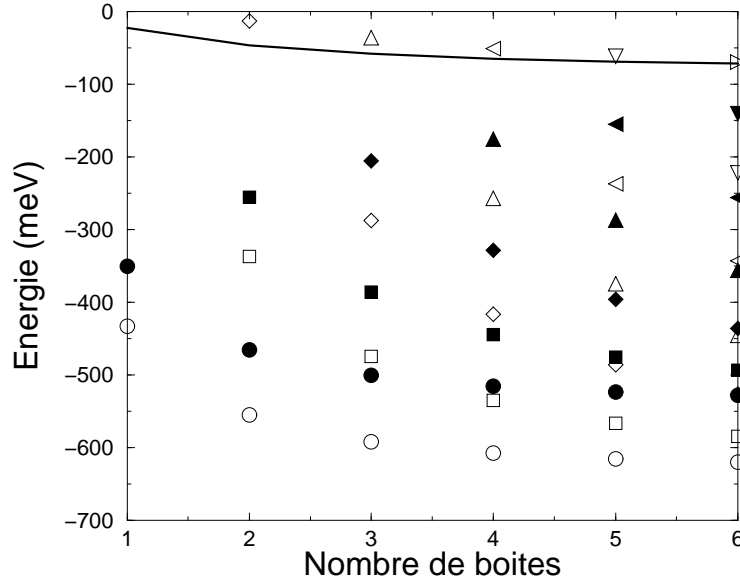


FIG. 4.7 – Niveaux d'énergie des états  $1S$  (symboles vides) et  $1P$  (symboles pleins) par rapport au nombre de boîtes. Les boîtes sont attachées et identiques.  $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $h = 30 \text{ \AA}$ .

## 4.4 Super-réseaux de boîtes quantiques

Des structures avec un grand nombre de boîtes fortement couplées ont été récemment utilisées pour réaliser des dispositifs laser [4]. Il est donc intéressant, même du point de vue des applications, d'étudier la variation des niveaux d'énergie avec le nombre  $N_{\text{dots}}$  de boîtes dans une structure de boîtes fortement couplées. La figure 4.7 présente la variation des niveaux  $1S$  et  $1P$  par rapport au nombre de boîtes. Les boîtes sont identiques et fortement couplées. Une boîte isolée ( $N_{\text{dots}} = 1$ ) lie seulement un état  $1S$  et un état  $1P$ . Pour deux boîtes on a les solutions symétrique et antisymétrique qui ont été discutées dans le paragraphe précédent. Pour des grandes valeurs de  $N_{\text{dots}}$  les énergies des états de type  $1S$  et  $1P$  de la structure à  $N_{\text{dots}}$  se situent dans un intervalle fini d'énergie quand  $N_{\text{dots}}$  augmente. Les énergies  $1S1$  et  $1P1$  deviennent indépendantes de  $N_{\text{dots}}$  après quelques périodes, comme on peut le voir dans la figure 4.7; la convergence de l'état  $1S$  (ou  $1P$ ) le plus excité est plus lente (il faut  $N_{\text{dots}} = 15$ ). Pour  $N_{\text{dots}} \rightarrow \infty$ , si, comme dans notre cas, les boîtes sont identiques, le potentiel effectif  $V_{nl}(z)$  devient périodique; nous pouvons alors appliquer le théorème de Bloch :

$$\varphi(z + P) = e^{iqP} \varphi(z) \quad (4.2)$$

où  $P = d + h$ . Nous avons donc calculé la largeurs des minibandes  $1S$  et  $1P$  :  $\Delta_{1S} = 492.4$  meV et  $\Delta_{1P} = 473.9$  meV. Ces valeurs sont cohérentes avec celles qu'on a obtenu à  $N_{\text{dots}} = 20$ . Il faut remarquer que, pour  $N_{\text{dots}} \geq 4$ ,  $\beta_{10}$  et  $\beta_{11}$  sont indépendants du nombre de boîtes; ils ont les valeurs  $\beta_{10} = 34.3$  Å et  $\beta_{11} = 31.7$  Å. Le calcul des minibandes a été effectué avec les potentiels effectifs obtenus pour ces valeurs de  $\beta$ . Les minibandes sont très larges car le couplage vertical entre les boîtes est très fort. On peut également remarquer que  $\Delta_{1S} > \Delta_{1P}$  à cause des différences entre leurs potentiels effectifs.

## 4.5 Règle de sélection pour les transitions intrabandes

Dans le chapitre précédent nous avons souligné que l'absorption intrabande dans une boîte isolée est très anisotrope : pour une polarisation dans le plan l'absorption depuis l'état fondamental vers les états liés est maximale, tandis que cette dernière est nulle quand la polarisation est dirigée le long de l'axe  $z$ . Dans ce paragraphe nous montrerons que ces résultats sont très différents pour les systèmes de boîtes couplées.

Supposons d'abord une polarisation dans le plan ( $\hat{e}/\hat{x}$ ). Pour les systèmes de boîtes couplées on obtient les mêmes résultats que pour la boîte isolée : la force d'oscillateur pour les transitions entre deux états liés vaut à peu près 1. La transition la plus forte est  $1S1 \rightarrow 1P1$ , bien que le nombre de transitions permises augmente avec le nombre de boîtes. Cela est dû à plusieurs raisons : premièrement, la force d'oscillateur  $OS_{1S1 \rightarrow nPj}$  est proportionnelle à l'intégrale de recouvrement  $|\langle \varphi_{1S1} | \varphi_{nPj} \rangle|^2$ , qui est approximativement  $\delta_{1,j}$ . Ensuite, le recouvrement radial entre les enveloppes  $1S1$  et  $nP1$ ,  $n > 1$ , est faible à cause des noeuds de  $F_{nP}(\rho)$ , qui augmentent avec  $n$ . Enfin, même si les énergies  $E_{1S1}$  et  $E_{1P1}$  diminuent avec le nombre de boîtes du système, la différence  $E_{1P1} - E_{1S1}$  est indépendante de  $N_{\text{dots}}$ . On peut donc conclure que toute mesure d'absorption lié-lié ou lié-continuum en polarisation dans le plan est peu pertinente pour déterminer s'il existe un couplage tunnel entre les boîtes d'une structure multi-boîtes.

Considérons maintenant une polarisation verticale ( $\hat{e}/\hat{z}$ ) : seuls les états excités de type  $1Sj$  contribuent à l'absorption depuis l'état fondamental. La figure 4.8 présente les éléments de matrice (axe à gauche) et la force d'oscillateur (axe à droite), par rapport à l'épaisseur de la barrière de GaAs, pour la transition  $1S1 \rightarrow 1S2$  dans un système de deux boîtes. Les courbes indiquées par des symboles sont obtenues pour un système de deux boîtes identiques ( $h_1 = h_2 = 30$  Å), tandis que celles indiquées par un trait sont obtenues pour une structure de deux boîtes de hauteurs différentes ( $h_1 = 25$  Å,  $h_2 = 35$  Å). On peut voir que la force d'oscillateur tend vers zéro quand on augmente l'épaisseur de la barrière que les boîtes soient identiques ou différentes. Quand les boîtes sont identiques l'élément

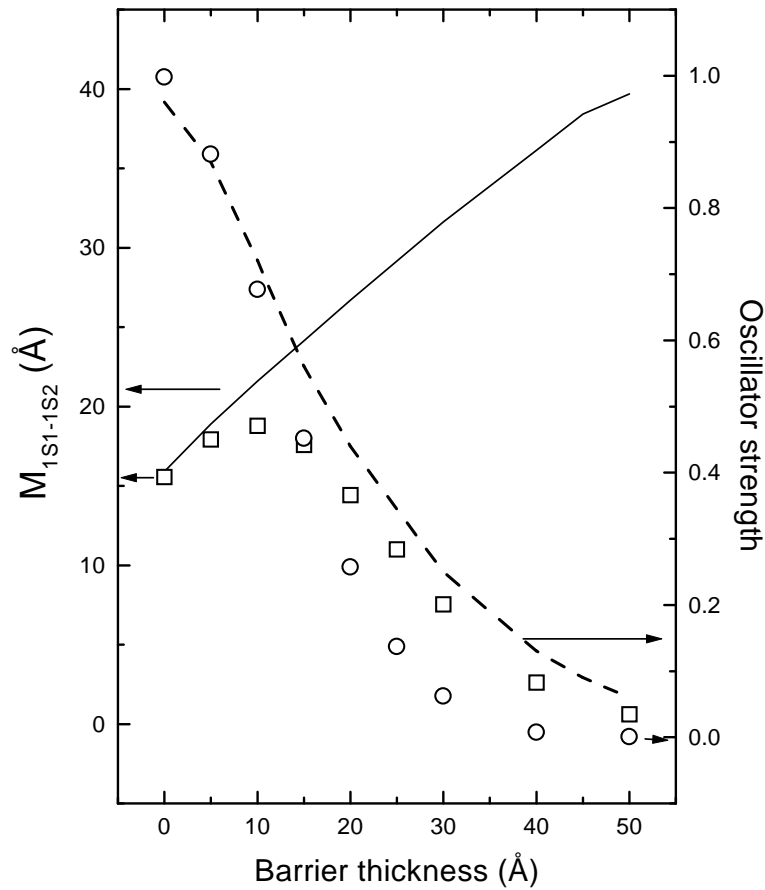


FIG. 4.8 – Élément de matrice de dipôle (axe à gauche) et force d'oscillateur (axe à droite) pour la transition  $1S1 \rightarrow 1S2$  dans un système de deux boîtes en fonction de l'épaisseur de la barrière. La courbe avec les symboles est obtenue pour deux boîtes identiques ( $h_1 = h_2 = 30 \text{ \AA}$ ) et celle en trait pour deux boîtes différentes ( $h_1 = 25 \text{ \AA}$ ,  $h_2 = 35 \text{ \AA}$ ).  $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $\hat{\epsilon}/\hat{z}$ .

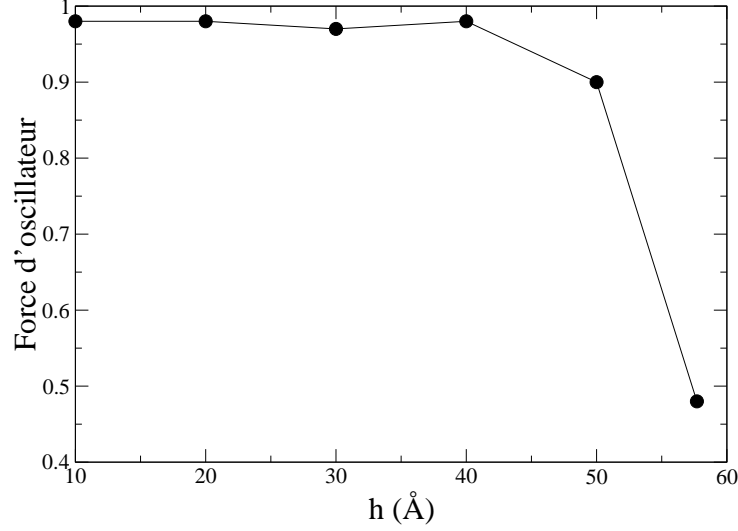


FIG. 4.9 – Variation de la force d’oscillateur ( $\hat{\epsilon}/\hat{z}$ ) par rapport à la hauteur des boîtes dans un système de trois boîtes fortement couplées.  $h_1 = h_2 = h_3 = h$ ,  $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $\vartheta = 30^\circ$ .

de matrice de dipôle  $M_{1S_1,1S_2}$  augmente linéairement et la différence des énergies  $E_{1S_2} - E_{1S_1}$  diminue exponentiellement quand on augmente la distance  $D$  entre les boîtes. Quand les boîtes sont différentes  $M_{1S_1,1S_2}$  diminue exponentiellement et  $E_{1S_2} - E_{1S_1}$  devient indépendant de  $D$  pour des grandes valeurs de  $D$ . Dans les deux cas on retrouve le régime de faible absorption lié-lié de la boîte isolée quand la séparation entre les boîtes augmente. Quand les boîtes sont attachées ( $\delta = 0$ ) la force d’oscillateur est très importante. On a déjà vu que les fonctions enveloppes  $\varphi_{1S_1}(z)$  et  $\varphi_{1S_2}(z)$  sont délocalisées dans la structure et ressemblent à l’état fondamental et au premier état excité d’un puits carré de largeur  $L_{PQ}$ . L’élément de matrice de dipôle  $M_{1S_1 \rightarrow 1S_2}$  varie proportionnellement à  $L_{PQ}$ , tandis que la séparation en énergie varie en  $\sim 1/L_{PQ}^2$ . On s’attend donc à ce que la force d’oscillateur  $OS_{1S_1 \rightarrow 1S_2}$  soit à peu près constante quand  $L_{PQ}$  varie. Ce comportement est présenté sur la figure 4.9 pour des valeurs de  $h$  jusqu’à  $40 \text{ \AA}$ . La dernière valeur de  $h$  montrée dans la figure est la valeur maximale, obtenue quand les boîtes sont des cônes non-tronqués (l’angle à la base de la boîte est constant). Le modèle de potentiel de confinement cylindrique n’est plus valable quand le rapport  $R_{top}/R$  est trop petit.

## 4.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés des systèmes de boîtes couplées verticalement. Nous avons discuté le cas où les boîtes sont fortement couplées (régime de type *cylindrique*) et celui où les boîtes sont séparées par une barrière de GaAs (régime de type *moléculaire*). Nous avons calculé la force d'oscillateur pour les transitions intrabandes. Nous avons également montré que l'anisotropie d'absorption qui prévalait dans les boîtes isolées disparaît si les boîtes sont fortement couplées.



# Bibliographie

- [1] R. Nötzel, *Semicond. Sci. Technol.* **11**, 1365 (1996).
- [2] N. N. Ledentsov, V. A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Börer, O. Schmidt, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, S. V. Zaitsev, N. Yu. Gordeev, Zh. I. Alferov, A. I. Borovkov, A. O. Kosogov, S. S. Ruminov, P. Werner, U. Gösele, J. Heydenreich, *Phys. Rev. B* **54**, 8743 (1996).
- [3] R. P. Feynman, *Phys. Rev.* **56**, 340 (1939).
- [4] M. Sugarawa, K. Mukai, Y. Nakata, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1561 (1999).





# Chapitre 5

## Effets du champ électrique

Toute structure qui contient des boîtes quantiques ressent les effets de champ électrique : il peut être dû aux charges résiduelles qui se trouvent autour de la boîte, ou bien il peut être appliqué volontairement, par exemple si les boîtes se trouvent dans la partie intrinsèque d'une structure  $p-i-n$ . Dans ce chapitre les effets du champ électrique sur des boîtes simples ou couplées verticalement seront étudiés. Nous supposerons d'abord que la composition des boîtes est uniforme : nous étudierons l'effet Stark sur les structures de boîtes fortement couplées, en ce qui concerne les niveaux d'énergie et le spectre d'absorption. Nous étudierons ensuite la situation plus réelle de boîtes avec une composition non uniforme. Nous en verrons les conséquences sur les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde, ainsi que sur le spectre d'absorption, en présence de champ électrique.

### 5.1 Champ électrique vertical

Supposons un champ électrique parallèle à l'axe de croissance  $z$ . L'hamiltonien pour un électron (trou) dans une boîte ou un système de boîtes en présence d'un champ électrique  $F$  est donné par l'expression suivante [1] :

$$H = H_0 \pm eFz \quad (5.1)$$

où  $H_0$  est l'hamiltonien en absence de champ électrique,  $e > 0$  est la charge de l'électron, le signe  $+$  correspond aux électrons, le signe  $-$  aux trous. Pour obtenir les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde en présence de champ électrique il faut résoudre l'équation de Schrödinger :

$$H\Psi = E\Psi. \quad (5.2)$$

La fonction d'onde  $\Psi$  peut être écrite comme combinaison linéaire des fonctions d'onde de l'hamiltonien non perturbé :

$$\Psi = \sum_{nlj} \psi_{nlj} a_{nlj} \quad (5.3)$$

L'approximation consiste à ne retenir dans la somme que les états liés à champ nul. On sait des études de l'effet Stark dans les puits quantiques que c'est une excellente approximation, au moins pour l'état fondamental, dès que deux états sont liés dans le puits. La quantification latérale présente dans les boîtes quantiques n'altère en rien cette conclusion. Si l'on multiplie dans l'équation précédente par  $\langle \psi_{n'l'j'} |$  on obtient :

$$\sum_{nlj} (\langle \psi_{n'l'j'} | H | \psi_{nlj} \rangle - E \langle \psi_{n'l'j'} | \psi_{nlj} \rangle) a_{nlj} = 0 \quad (5.4)$$

Grâce à l'orthonormalisation des  $\psi$  :

$$\langle \psi_{n'l'j'} | \psi_{nlj} \rangle = \delta_{nn'} \delta_{ll'} \delta_{jj'} \quad (5.5)$$

$$\langle \psi_{n'l'j'} | H | \psi_{nlj} \rangle = E_{nlj}^0 \delta_{nn'} \delta_{ll'} \delta_{jj'} + \langle \psi_{n'l'j'} | eFz | \psi_{nlj} \rangle \quad (5.6)$$

et grâce à la séparabilité des fonctions d'onde, choisie pour les états liés à champ nul (cf. chap. 2) :

$$\langle \psi_{n'l'j'} | eFz | \psi_{nlj} \rangle = eF \delta_{nn'} \delta_{ll'} \langle \phi_{nlj'} | z | \phi_{nlj} \rangle \quad (5.7)$$

Le système à résoudre est donc le suivant :

$$\sum_{nlj} a_{nlj} \delta_{nn'} \delta_{ll'} ((E_{nlj}^0 - E) \delta_{jj'} + eF \langle \phi_{nlj'} | z | \phi_{nlj} \rangle) = 0 \quad (5.8)$$

Les énergies d'électron et de trou sont calculées par diagonalisation numérique de la matrice des coefficients. Soulignons que l'origine du champ électrique n'est pas importante car on s'intéresse au calcul des énergies des transitions électron-trou. L'équation 5.8 montre que le champ électrique couple seuls les états qui ont les mêmes nombres quantiques  $l$  et  $n$ . Dans une boîte isolée de dimensions usuelles, il y a seulement un état de type  $1Sj$ , l'état fondamental ; l'équation 5.8 se réduit donc à un terme diagonal. Considérons par exemple une boîte avec les dimensions suivantes :  $R = 90 \text{ \AA}$ ,  $h = 18 \text{ \AA}$ ,  $\vartheta = 30^\circ$ ,  $d = 3.33 \text{ \AA}$ . Pour un potentiel de confinement d'électron  $V_e = 413 \text{ meV}$  et de trou  $V_h = 288 \text{ meV}$ , la différence entre l'énergie de la transition fondamentale à champ nul et celle sous un champ de  $100 \text{ kV/cm}$  est de  $0.3 \text{ meV}$ . Cela traduit un effet Stark linéaire qui est dû à l'absence de symétrie en  $z$  du potentiel de confinement. L'état fondamental est affecté de façon considérable seulement s'il y a des états excités de type  $1Sj$ . On a déjà vu que, en augmentant le nombre de boîtes dans une structure de boîtes couplées verticalement, le nombre d'états excités  $1Sj$  augmente aussi. A cause de cette propriété, il est possible d'obtenir des structures beaucoup plus sensibles au champ électrique en considérant des boîtes couplées.

Considérons un système de boîtes identiques, fortement couplées, de mêmes dimensions que la boîte de l'exemple précédent. Des états excités de type  $1Sj$

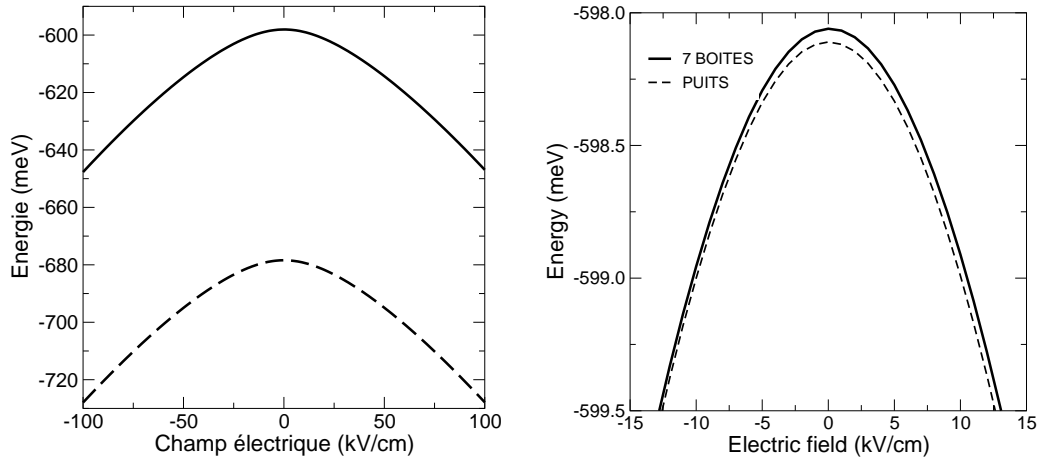


FIG. 5.1 – Énergie de la transition fondamentale interbande (comptée à partir de la barrière) par rapport au champ électrique pour une structure de sept boîtes couplées (en trait continu) et pour un puits quantique de mêmes dimensions verticales (en tireté). A droite : comparaison entre les deux courbes au voisinage de  $F = 0$ . Les origines en énergies ont été décalées de façon à faciliter la comparaison.

commencent à être liés quand la structure est constituée par trois boîtes. Le nombre de ces états augmente au fur et à mesure que le nombre de boîtes augmente. En conséquence, l'influence du champ électrique sur la transition fondamentale devient de plus en plus importante. La figure 5.1 montre la variation de l'énergie de la transition fondamentale (en trait continu) par rapport au champ électrique appliqué à une structure de sept boîtes fortement couplées. Les énergies sont comptées à partir de la barrière de GaAs. Les énergies des électrons et des trous présentent des grandes variations avec le champ électrique. Quand  $F = 100$  kV/cm, la variation d'énergie de la transition fondamentale est de  $\approx 50$  meV. Cette dernière est donc beaucoup plus importante que celle obtenue pour une boîte isolée. On montrera dans le paragraphe suivant que cette variation d'énergie, qui est une quantité très importante pour la réalisation de dispositifs modulables par le champ électrique, est également plus grande que la largeur inhomogène du spectre d'absorption des boîtes.

La figure 5.1 montre également la transition fondamentale d'un puits quantique qui a les mêmes dimensions verticales que la structure des boîtes couplées ( $L_{PQ} = 7 * (3.33 + 18)$  Å) (en tireté). La différence entre les valeurs de l'énergie est due, comme on l'a déjà vu dans le chapitre précédent, au confinement dans le plan. A part cette différence, les deux courbes montrent la même allure. Il est possible d'observer de petites différences seulement au voisinage de  $F = 0$ , comme on peut le voir dans la partie droite de la figure 5.1 : pour un puits quantique la courbe est exactement quadratique, tandis que pour la structure des boîtes il

y a également une contribution linéaire à la variation des énergies en fonction du champ électrique. Cela est dû au fait que, dans une structure de boîtes couplées, les centres de gravité des états d'électron et de trou sont différents, même à champ nul. Cet effet est néanmoins petit pour la structure considérée : on a calculé  $\langle z_e \rangle - \langle z_h \rangle = 0.2 \text{ \AA}$  à  $F = 0$ . Nous montrerons par la suite que des dipôles permanents plus importants ont été observés dans des expériences de photocourant. Nous verrons que cela peut être interprété en supposant que la composition des boîtes n'est pas uniforme. Nous pouvons donc conclure que, grâce aux systèmes de boîtes couplées verticalement, on obtient des structures beaucoup plus polarisables qu'avec des boîtes isolées. Leur sensibilité à l'application d'un champ électrique est aussi importante que dans les puits quantiques présentant les mêmes dimensions verticales.

## 5.2 Champ électrique dans le plan

Supposons maintenant un champ électrique dans le plan, par exemple  $\vec{F} // \hat{x}$ . L'hamiltonien s'écrit alors sous la forme :

$$H = H_0 \pm eF\rho \cos \alpha \quad (5.9)$$

Pour calculer les énergies d'électron et de trou il faut encore une fois résoudre le système 5.4, avec :

$$\langle \psi_{n'l'j'} | H | \psi_{nlj} \rangle = E_{nlj}^0 \delta_{nn'} \delta_{l'l} \delta_{jj'} + \langle \psi_{n'l'j'} | eF\rho \cos \alpha | \psi_{nlj} \rangle \quad (5.10)$$

$$\langle \psi_{n'l'j'} | eF\rho \cos \alpha | \psi_{nlj} \rangle = eF\delta_{l',l+1} \langle F_{n'l'} | \rho | F_{nl} \rangle \quad (5.11)$$

Les états  $S$  sont donc couplés aux états  $P$ , les états  $P$  aux  $D$ , etc. Formellement il pourrait y avoir un couplage entre les états du type  $nlj$  et les états  $n', l+1, j'$ , avec  $j \neq j'$  et  $n \neq n'$ . L'élément de matrice entre ces états est toutefois très petit ; c'est pour cette raison que seules les transitions telles que  $j = j'$  ont été considérées. Le calcul des éléments de matrice est analytique, parce que l'intégrale en  $z$  donne une contribution  $\approx 1$ . La figure 5.2 (à gauche) montre la variation de l'énergie des niveaux d'électron dans le système de sept boîtes couplées du paragraphe précédent pour  $\vec{F} // \hat{x}$ . Il est alors possible de calculer les énergies de transition intrabande pour une polarisation de la lumière le long de l'axe  $x$  par rapport au champ électrique appliqué. Il faut remarquer que les puits quantiques sont transparents dans cet intervalle d'énergie quand il n'y a pas d'absorption due aux porteurs libres (voir [2]). Il est donc intéressant d'avoir accès à cet intervalle d'énergie par des systèmes de boîtes couplées. La transition intrabande à plus basse énergie est la transition  $1S1 \rightarrow 1P1$ . La figure 5.2 à droite montre cette énergie de transition par rapport au champ électrique appliqué. On peut voir que l'énergie est presque insensible à l'intensité du champ électrique appliqué : quand  $F$  passe de 0 à 100 kV/cm, l'énergie change de 3.3 meV. Cette propriété

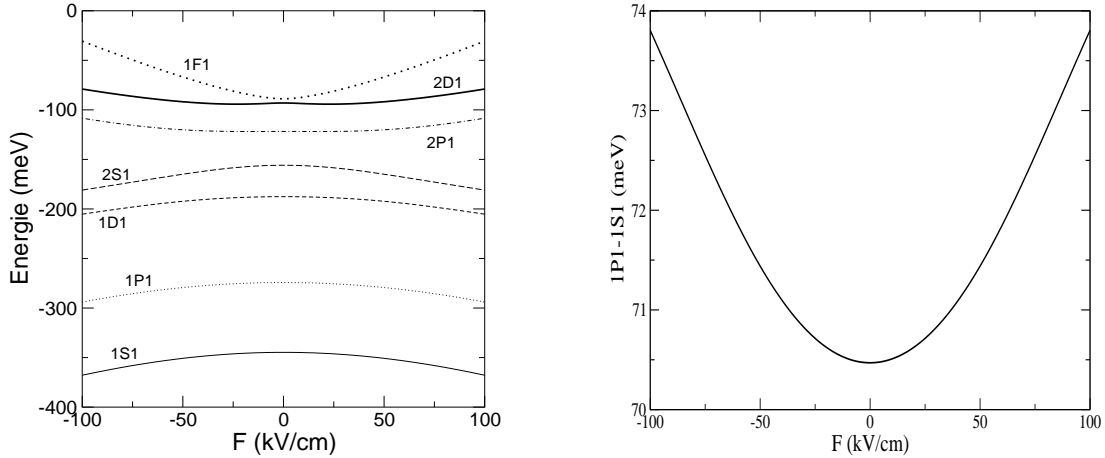


FIG. 5.2 – Effet du champ électrique dans le plan pour une structure de sept boîtes fortement couplées. À gauche : niveaux d'électron par rapport au champ électrique appliqué ; à droite variation de l'énergie de la transition  $1S - 1P$  en fonction du champ électrique.

est très importante parce qu'elle montre que l'absorption intrabande n'est pas influencée par les fluctuations latérales de l'environnement électrostatique autour de la boîte.

### 5.3 Spectre d'absorption inter- et intra-bande

Une fois que les énergies de transition pour un champ électrique donné sont connues, le spectre d'absorption des états liés d'une boîte idéale est la somme de fonctions delta ; leur poids est proportionnel au module carré de l'intégrale de recouvrement entre les fonctions enveloppes d'électron et de trou, pour les transitions interbandes, ou au module carré de l'élément de matrice du dipôle entre les enveloppes des états initial et final (transitions intrabandes). Les boîtes réelles présentent des fluctuations de taille autour d'une valeur moyenne. Le spectre d'absorption d'un ensemble de boîtes est donc une courbe élargie. Sa largeur dépend des fluctuations de taille à travers la variation des énergies d'électron et de trou par rapport au rayon et à la hauteur de la structure.

Supposons un système de boîtes fortement couplées, ayant un rayon  $R$  et une hauteur totale  $h = \sum_i h_i$ , où  $i$  repère les boîtes du système. Supposons également que les fluctuations de taille soient non corrélées et décrites par des fonctions gaussiennes centrées en  $R_0$  et  $h_0$  (les valeurs moyennes de  $R$  et  $h$ ) avec une déviation standard  $\sigma_R = 3 \text{ \AA}$  pour le rayon et  $\sigma_h = 6 \text{ \AA}$  pour la hauteur totale. Supposons également, pour simplifier le calcul, que toute fluctuation sur la hauteur est répartie également entre toutes les boîtes du système. Sous ces

hypothèses, les fluctuations de l'élément de matrice de dipôle sont beaucoup plus petites que celles des énergies de transition. On se propose maintenant de calculer la probabilité d'absorption interbande et intrabande.

Pour une onde qui se propage le long de l'axe  $z$ , les piles de boîtes se comportent comme un plan de dipôles. Dans le chapitre 3 nous avons obtenu l'expression de la probabilité d'absorption intrabande dans la limite des absorptions faibles. En substituant l'expression de  $\chi_2(\omega)$  dans l'équation 3.7 on obtient :

$$A(\omega) = \frac{\omega N_d e^2}{n c \epsilon_0 m^* S} \Im \left( \sum_{f \neq 0} \frac{OS_{0 \rightarrow f}}{(\omega_f - \omega_0)^2 - \omega^2 - \frac{i\omega}{\tau}} \right) \quad (5.12)$$

A la résonance la relation suivante est applicable :

$$(\omega_f - \omega_0)^2 - \omega^2 \approx 2\omega (\omega_f - \omega_0 - \omega) \quad (5.13)$$

On obtient alors pour la probabilité d'absorption :

$$A(\omega) = \frac{N_d e^2 \hbar}{2n c \epsilon_0 m^* S} \sum_{f \neq 0} \frac{\frac{\hbar}{2\tau} OS_{0 \rightarrow f}}{(\hbar (\omega_f - \omega_0 - \omega))^2 + \left(\frac{\hbar}{2\tau}\right)^2} \quad (5.14)$$

Sous le signe somme, on reconnaît une fonction Lorentzienne :

$$L\left(\hbar (\omega_f - \omega_0), \frac{\hbar}{\tau}\right) = \frac{\frac{\hbar}{2\tau\pi}}{(\hbar (\omega_f - \omega_0 - \omega))^2 + \left(\frac{\hbar}{2\tau}\right)^2} \quad (5.15)$$

La probabilité d'absorption peut alors être écrite sous la forme :

$$A(\omega) = \frac{n_d e^2 \hbar \pi}{2n c \epsilon_0 m^*} \sum_{f \neq 0} OS_{0 \rightarrow f} L\left(\hbar (\omega_f - \omega_0), \frac{\hbar}{\tau}\right) \quad (5.16)$$

où  $n_d = N_d/S$  est la concentration de "piles" de boîtes sur la surface  $S$ . La fonction Lorentzienne est une approximation de la fonction  $\delta$ . Comme les largeurs homogènes sont bien plus petites (quelques dixièmes de meV au maximum) que les largeurs inhomogènes (quelques meV pour les transitions intrabandes, quelques dizaines de meV pour les transitions interbandes), la convolution de la Lorentzienne étroite par la gaussienne donne une forme d'absorption gaussienne). On peut alors substituer dans 5.16 la fonction Gaussienne qui donne la distribution des énergies autour d'une valeur moyenne, due aux fluctuations de taille :

$$G(E, \sigma_T) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_T} \exp\left(-\frac{E^2}{2\sigma_T^2}\right) \quad (5.17)$$

où  $\sigma_T$  est la déviation standard totale sur l'énergie. Cette dernière dépend des déviations standard latérale et verticale de la façon suivante :

$$\sigma_T^2 = \sigma_h^2 \left| \frac{\partial E_T}{\partial h} \right|^2 + \sigma_R^2 \left| \frac{\partial E_T}{\partial R} \right|^2 \quad (5.18)$$

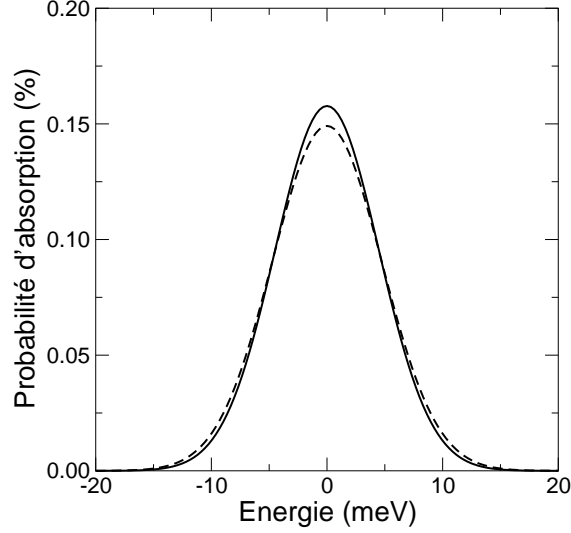


FIG. 5.3 – Probabilité d'absorption de la transition intrabande  $1S \rightarrow 1P$  dans une structure de sept boîtes couplées. Le zéro de l'énergie est pris à la transition plus probable à  $F = 0$ . La courbe en trait continu est obtenue à  $F = 100$  kV/cm, celle en tireté à  $F = 0$ .

où  $E_T$  est l'énergie de transition pour des valeurs données de  $R$  et  $h$ . On a déjà vu que la transition  $1S \rightarrow 1P$  est, parmi les transitions intrabandes possibles, celle qui a plus d'importance en terme de force d'oscillateur. Nous avons calculé que la force d'oscillateur pour cette transition vaut  $OS_{1S \rightarrow 1P} = 0.92$ , indépendamment de la valeur du champ électrique appliqué  $F$ , dans le système de sept boîtes du paragraphe précédent. Nous avons également trouvé que, pour les transitions intrabandes, les fluctuations latérales sont beaucoup plus importantes que celles verticales. La figure 5.3 montre la probabilité d'absorption pour le système de sept boîtes, calculée en fonction de l'énergie  $\hbar(\omega - \omega_0)$ , où  $\hbar\omega_0$  est l'énergie d'absorption la plus probable à  $F = 0$ . Dans ce calcul on a  $n_d = 4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , et  $n = 3.4$ . La courbe en trait continu donne la probabilité d'absorption à  $F = 0$ , tandis que celle en tireté donne la probabilité à  $F = 100$  kV/cm,  $\vec{F} // \hat{x}$ . On peut voir qu'il y a très peu de différences entre les deux courbes. Cela résulte du fait que le champ électrique agit de la même façon sur les fonctions d'onde  $1S$  et  $1P$ .

Considérons maintenant le cas de l'absorption interbande. Dans les semiconducteurs massifs [3] et dans les puits quantiques [2], la probabilité d'absorption est obtenue en appliquant la règle d'or de Fermi pour le calcul de la probabilité de transition entre l'état initial et les états finaux. Cela est possible parce que les états du matériau massif et ceux du puits forment un continuum. Dans les boîtes quantiques les niveaux liés sont discrets. En principe il n'est pas possible d'étudier le cas de l'absorption entre deux états discrets dans le cadre de la méthode des



perturbations, et donc appliquer la règle d'or de Fermi [4]. Un problème de ce type devrait être résolu de façon exacte. Toutefois le champ électromagnétique forme un continuum ; en plus les états de la boîte sont élargis par les interactions avec les phonons, donc l'application de la théorie des perturbations est possible et le résultat obtenu dans le cas des puits pour le calcul de la probabilité d'absorption peut être utilisé. Comme dans le cas des transitions intrabandes, pour calculer le spectre d'absorption, il faut tenir compte des fluctuations de taille des boîtes. Soit  $E_T(R, h) = E_e(R, h) + E_h(R, h)$  l'énergie de la transition électron-trou lourd à champ électrique fixé  $F$ . On a déjà observé que les fluctuations de taille sont des petites variations autour d'une valeur moyenne ; on peut alors écrire :

$$E_T(R, h) = E_T(R_0, h_0) + (R - R_0) \left[ \frac{\partial E_T}{\partial R} \right]_{R_0, h_0} + (h - h_0) \left[ \frac{\partial E_T}{\partial h} \right]_{R_0, h_0} \quad (5.19)$$

La probabilité d'absorption est donc proportionnelle à la quantité suivante :

$$A(\omega) \propto \frac{1}{2\pi\sigma_R\sigma_h} \int dR dh e^{-\frac{(R-R_0)^2}{2\sigma_R^2}} e^{-\frac{(h-h_0)^2}{2\sigma_h^2}} \delta(-\hbar\omega + E_T) \left( Ov(R_0, h_0) + (R - R_0) \left[ \frac{\partial Ov}{\partial R} \right]_{R_0, h_0} + (h - h_0) \left[ \frac{\partial Ov}{\partial h} \right]_{R_0, h_0} \right) \quad (5.20)$$

où  $Ov$  est le module carré de l'intégrale de recouvrement des fonctions d'onde d'électron et de trou à champ électrique  $F$ . Dans la limite des absorptions faibles, en utilisant les résultats obtenus pour les puits [2], on obtient que la probabilité d'absorption vaut :

$$A(\omega) = \frac{n_d \pi e^2 |\langle S | p_x | X \rangle|^2}{n c \epsilon_0 \omega m_0^2} \times [Ov(R_0, h_0) - \xi \hbar(\omega - \omega_0)] G(\hbar(\omega - \omega_0); \sigma_T) \quad (5.21)$$

où :

$$\xi = \frac{\partial Ov}{\partial R} \frac{\sigma_R^2}{\sigma_T^2} \left| \frac{\partial E_T}{\partial R} \right| + \frac{\partial Ov}{\partial h} \frac{\sigma_h^2}{\sigma_T^2} \left| \frac{\partial E_T}{\partial h} \right| \quad (5.22)$$

Dans la pratique  $\xi$  est une quantité négligeable ; la probabilité d'absorption est donc proportionnelle à  $Ov(R_0, h_0)/\sigma_T$ . Pour des boîtes de In(Ga)As, l'élément de matrice de Kane  $2 |\langle S | p_x | X \rangle|^2/m_0$  vaut 23 eV ; un pic typique d'absorption vaut donc  $0.012 Ov(R_0, h_0)/\sigma_T$  meV si  $\hbar\omega_0 = 1$  eV. Pour une système de sept boîtes quantiques fortement couplées  $\sigma_T \approx 5.4$  meV : en conséquence la probabilité d'absorption est proche de celle d'un puits quantique. Par contre pour un ensemble de boîtes isolées  $\sigma_T \approx 66.4$  meV, la probabilité d'absorption est donc beaucoup plus petite. Il faut observer que la quantité  $\sigma_T$  dépend principalement de la géométrie de la structure  $(R, h)$ , tandis que  $Ov$  est très sensible également au champ électrique appliqué. La figure 5.4 présente le spectre de probabilité

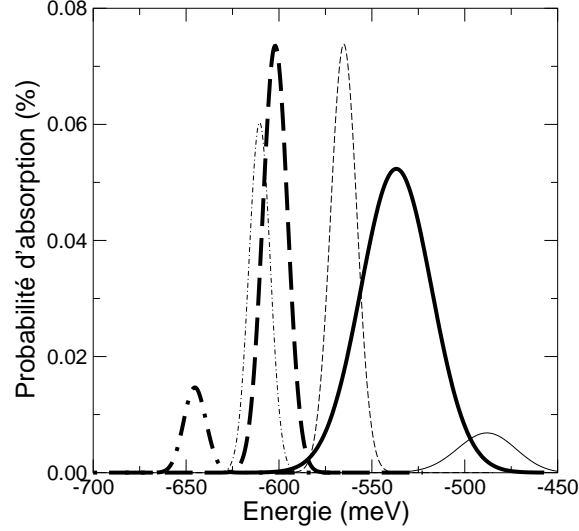


FIG. 5.4 – Spectres de probabilité interbandes pour la transition fondamentale (trait épais) et pour la première transition excitée (trait fin) pour une structure de trois (ligne continue), cinq (en tireté) et sept (tireté-pointillé) boîtes. Le zéro de l'énergie est pris au gap de la barrière.  $F = 100$  kV/cm.

# boîtes	$ \partial E_T / \partial R $	$ \partial E_T / \partial h $
3	1.75 meV/Å	3.05 meV/Å
5	1.78 meV/Å	0.68 meV/Å
7	1.84 meV/Å	0.48 meV/Å

TAB. 5.1 – Dérivée de l'énergie de transition par rapport à la hauteur et au rayon des boîtes.

d'absorption pour la transition fondamentale (en trait épais) et pour la première transition excitée (en trait fin) pour des structures de trois (lignes continues), cinq (en tireté) et sept (tireté-pointillé) boîtes, en présence d'un champ électrique de 100 kV/cm,  $\vec{F} // \hat{z}$ . Il faut d'abord remarquer que la largeur de la transition fondamentale diminue quand on augmente le nombre de boîtes. Cela est dû au fait que, quand on augmente le nombre de boîtes, la dérivée de l'énergie par rapport à la hauteur de la structure diminue de façon importante, tandis que la dérivée par rapport au rayon reste constante, comme on peut le voir dans le tableau 5.1. Pour les largeurs de la transition fondamentale dans les trois cas on obtient les valeurs suivantes :  $\sigma_T = 19.04$  meV dans le cas de trois boîtes,  $\sigma_T = 6.73$  meV pour cinq boîtes et  $\sigma_T = 6.24$  meV quand il y a sept boîtes. Le champ électrique agit de façon à séparer les électrons et les trous ; cette séparation est beaucoup plus efficace dans une structure de plus grande hauteur, donc dans la structure

# boîtes	$Ov(R_0, h_0)$
3	0.83
5	0.38
7	0.06

TAB. 5.2 – Intégrale de recouvrement des fonctions d’onde d’électron et de trou pour la transition fondamentale à  $F = 100$  kV/cm.

où il y a plus de boîtes. Le module carré de l’intégrale de recouvrement mesure justement combien les électrons et les trous sont séparés. Le tableau 5.2 montre la variation de la valeur de l’intégrale de recouvrement quand on augmente le nombre de boîtes du système. Le pic d’absorption est plus intense dans le cas de cinq boîtes plutôt que pour trois boîtes, malgré les valeurs décroissantes de l’intégrale de recouvrement, parce que la diminution de  $\sigma_T$  est plus importante que l’augmentation de  $Ov$ .

En même temps qu’il diminue l’intégrale de recouvrement pour la transition fondamentale, le champ électrique rend possibles les transitions excitées, qui, à champ nul, étaient pratiquement interdites. La figure 5.4 montre que le pic correspondant à la première transition excitée est plus intense que celui de la transition fondamentale dans les cas de cinq et sept boîtes, quand il y a une plus grande polarisation induite par le champ électrique. Il est important de souligner que les spectres fondamentaux et excités sont séparés en énergie par plus que la largeur inhomogène; cela est un avantage pour l’électro-modulation.

Nous avons donc montré que les transitions intrabandes dépendent très peu du champ électrique appliqué. En revanche, les transitions interbandes montrent un effet Stark aussi important que dans les puits quantiques de mêmes dimensions : l’effet Stark peut également être rendu plus grand que la largeur inhomogène. De plus, les systèmes de boîtes couplées ont l’avantage de ne pas avoir d’absorption vers le continuum. Cela peut permettre l’utilisation de ces systèmes comme électro-modulateurs, tandis que les boîtes isolées, à cause de leurs petites dimensions et de l’effet Stark négligeable, ne peuvent pas être utilisées dans ce but.

## 5.4 Structures $p - i - n$ de boîtes quantiques

L’effet du champ électrique sur les propriétés électroniques des boîtes quantiques est très intéressant du point de vue des applications. On a déjà vu dans les paragraphes précédents que les structures de boîtes couplées présentent un effet Stark comparable à celui des puits quantiques, avec en plus le confinement spatial dans le plan. C’est pour cette raison que de nombreuses expériences ont été réalisées sur des structures de type  $p - i - n$ , avec des boîtes dans la région intrinsèque. On se limitera ici au cas des boîtes de In(Ga)As/GaAs.

Les expériences de Fry *et al.* [5] ont eu beaucoup d’importance dans la lit-

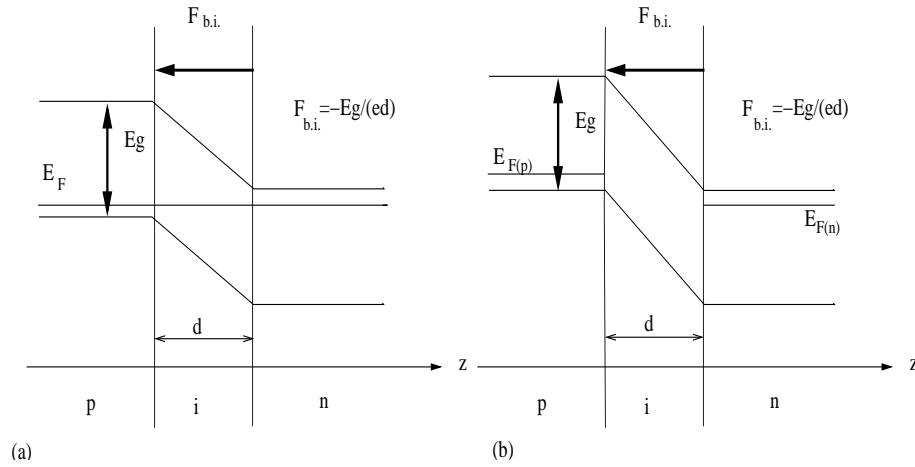


FIG. 5.5 – Structure  $p - i - n$  à l'équilibre thermique (a) et en polarisation inverse (b). Dans le cas (b) le champ électrique total dans la région intrinsèque est  $F_{tot} = F_{b.i.} + V_{ext}/d$ .

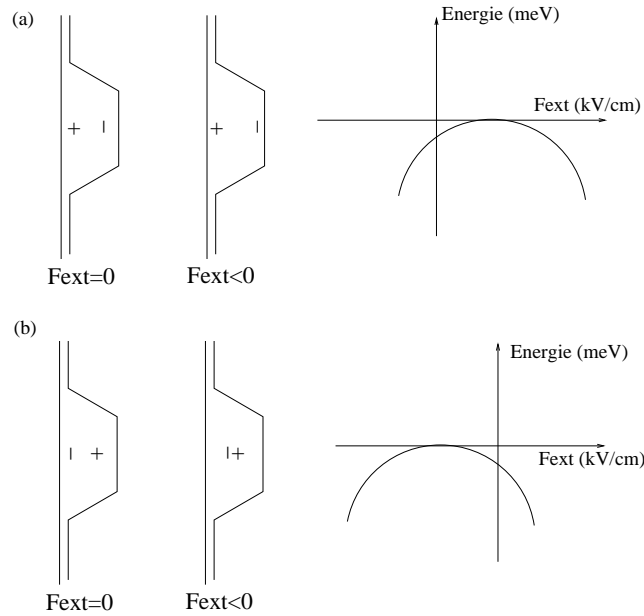


FIG. 5.6 – Effet Stark prévu dans le cas d'un alignement électron-trou "standard" (a) et d'un alignement "inversé" (b).  $F_{ext} = V_{ext}/d$ .

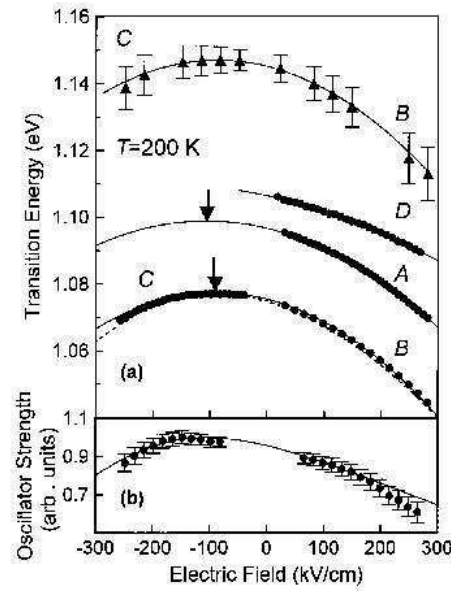


FIG. 5.7 – Energie de la transition fondamentale en fonction du champ électrique, obtenue expérimentalement par Fry *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 733 (2000).

térature. Il s'agit d'expériences de photocourant (en polarisation inverse, voir figure 5.5) sur des structures  $p-i-n$  et  $n-i-p$  ayant des boîtes de InAs dans la région intrinsèque. Les boîtes sont obtenues par croissance auto-organisée sur un substrat (001) de GaAs. Les auteurs ont observé que la courbe qui représente la transition fondamentale par rapport au champ électrique appliqué à la structure est très asymétrique en  $F_{tot}$  et présente un maximum pour  $F_{tot} = -90$  kV/cm (voir figure 5.7). L'asymétrie de la courbe est attribuée à l'existence d'un dipôle électron-trou. Cela n'est pas surprenant, et avait déjà été observé dans d'autres structures [6]. Ce qui est surprenant, c'est le signe de ce dipôle. La figure 5.6 en montre la raison. Dans les boîtes, comme celles considérées dans les paragraphes précédents, les trous, qui ont une masse effective plus grande, sont davantage localisés que les électrons à la base de la boîte, où le potentiel effectif en  $z$  est minimum. Si l'on considère l'effet de la contrainte (voir [7],[8]), le résultat est analogue : le signe de  $p = \langle z_e \rangle - \langle z_h \rangle$  est positif et sa valeur absolue est plus grande que dans le cas où la contrainte n'est pas tenue en compte. Si l'on applique un champ électrique, de façon à polariser inversement la structure, la courbe représentant la transition fondamentale, par rapport au champ électrique appliqué  $F$ , a son maximum à  $F > 0$ , comme le montre la figure 5.6. Pour que le maximum se situe à  $F < 0$ , la seule possibilité est que le dipôle électron-trou soit inversé. Pour parvenir à ce résultat, les auteurs ont supposé un gradient de concentration linéaire de la base au sommet de la boîte, avec un maximum de concentration d'In au sommet. Dans cette hypothèse, les trous sont localisés à proximité du sommet de la boîte, tandis que les électrons sont davantage dé-

localisés, et  $p$  est donc négatif. L'inversion du dipôle électron-trou est analysée théoriquement dans l'article de Barker et O'Reilly [9]. Ils montrent que pour obtenir un dipôle permanent de signe négatif il est nécessaire de supposer une composition non uniforme d'In dans la boîte. Il faut également supposer, selon ces auteurs, que la boîte puisse être modélisée par une pyramide tronquée, car l'inversion du dipôle se révèle impossible en recourant à une pyramide complète. Plusieurs autres auteurs ont observé l'inversion du dipôle (par exemple [10, 11]). On pourrait donc s'attendre à ce que l'alignement "inversé" électron-trou soit une propriété générale des boîtes de In(Ga)As/GaAs. En fait, il n'en est rien. Patané *et al.* [12] ont réalisé des expériences de photocourant sur deux échantillons de boîtes de InGaAs/GaAs, dans un cas épitaxiées sur un plan (100), dans l'autre sur un plan (311)B. La courbe qui représente la transition fondamentale par rapport au champ électrique appliqué, pour l'échantillon (100), à son maximum à  $F = +40$  kV/cm. Ce résultat est en contradiction avec celui de Fry *et al.*, obtenu sur un échantillon (001). Les auteurs expliquent cette contradiction par le fait que la température de croissance de leurs boîtes est inférieure à celle des boîtes de Fry *et al.* et que le contenu d'In est inférieur. En revanche, les mêmes expériences, réalisées sur l'échantillon (311)B, donnent comme résultat un maximum de la courbe d'effet Stark à  $F = -170$  kV/cm, donc un dipôle électron-trou inversé. Les auteurs expliquent ce résultat en introduisant un champ piézo-électrique, qui est beaucoup plus intense dans le cas de l'échantillon (311)B. On peut donc en conclure que l'alignement inversé électron-trou n'est pas une propriété générale, mais dépend fortement des conditions de croissance, ainsi que de la concentration d'In et des dimensions des boîtes. Il est alors très important d'avoir des renseignements fiables sur ces paramètres pour que la théorie soit capable de prévoir le signe du dipôle.

Plusieurs expériences de microscopie électronique sur des boîtes quantiques ont été effectuées pour en déterminer la composition. Il est particulièrement difficile, dans l'analyse des résultats de telles expériences, de distinguer entre la contribution de la contrainte et celle de la diffusion d'In dans la boîte. Liu *et al.* [13] ont montré que la composition d'In dans des boîtes de InGaAs, non couvertes par le GaAs, varie dans la boîte comme un triangle inversé, avec la pointe du triangle à la base de la boîte. La distribution d'In dans des boîtes couvertes par une barrière de GaAs est assez différente : Shumway *et al.* [14] ont montré que le maximum de concentration d'In n'est pas proche du sommet de la boîte, comme Fry *et al.* avaient supposé, mais se situe à environ un tiers de la hauteur de la boîte (voir figure 5.8). Un double phénomène de diffusion existe à proximité de la couche de mouillage depuis le GaAs au dessous, et à proximité du sommet de la boîte, depuis la couverture de GaAs. Nous avons utilisé ce profil de composition, ainsi que les dimensions des boîtes données dans le même travail, pour calculer la courbe d'effet Stark. On montrera que dans ces boîtes le dipôle électron-trou est inversé. Ce résultat est un renseignement très important du point de vue des applications, comme l'ont montré Passaseo *et al.* [15]. Il est en effet possible d'ob-

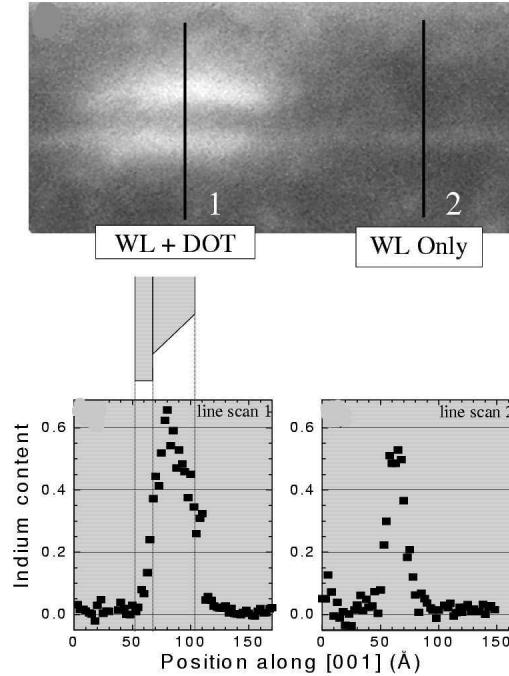
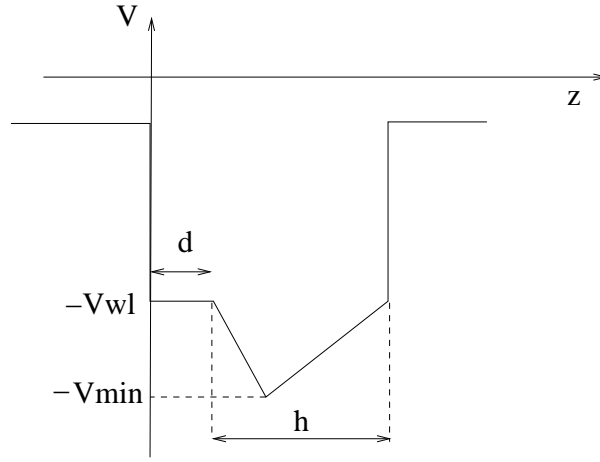


FIG. 5.8 – Image STEM (Scanning Transmission Electron Microscopy) qui montre le profil de composition dans la direction [001] dans une boîte de InGaAs (voir Shumway *et al.*, Phys. Rev. B **64**, 125302 (2001)).

tenir un laser, qui contient les mêmes boîtes que celles étudiées par Shumway *et al.* dans la région active, et qui émet à  $1.3 \mu\text{m}$  à température ambiante, seulement si les boîtes sont dans la région intrinsèque d’une structure  $n - i - p$  (avec un substrat  $p$ ). Dans ce cas le champ électrique interne, due à la présence du dipôle électron-trou, et le champ appliqué à la structure, ont le bon signe pour que l’émission soit à la longueur d’onde utile pour les télécommunications. Après avoir calculé l’effet Stark dans le cas de la boîte isolée, nous considérerons le cas des structures de boîtes couplées verticalement, en étudiant l’effet d’un profil de composition analogue à celui de la boîte isolée.

## 5.5 Grading : Calcul des niveaux d’énergie

On se propose de calculer les états d’électron et de trou dans une boîte ou un système de boîtes de  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  en présence d’un gradient de concentration d’In. Nous utilisons la méthode “mixte”, en rajoutant au potentiel de confinement dans la boîte un potentiel  $\delta V$ , qui tient compte des non-uniformités dans la composition

FIG. 5.9 – Forme de la partie en  $z$  du potentiel  $\delta V$  utilisé dans le modèle théorique.

et qui a l'expression suivante :

$$\delta V = V_{e(h)} g(\rho, z) Y(z) Y(d+h-z) Y\left(R - \frac{z-d}{\tan \vartheta} - \rho\right) \quad (5.23)$$

où  $Y$  est la fonction de Heavyside et  $g$  est une fonction obtenue comme produit d'une fonction Gaussienne en  $\rho$  et d'une fonction de  $z$ , construite à partir du profil de la concentration d'In de l'article de Shumway *et al.* [14] et présenté figure 5.9. Les valeurs de  $V_{min}$  et  $V_{wl}$  ont été déterminées à l'aide de la formule suivante (cf. [16]) :

$$E_g(x, T) = 0.42 + 0.625x - \left(\frac{5.8}{T+300} - \frac{4.19}{T+273}\right) 10^{-4} T^2 x + \frac{4.19 \cdot 10^{-4} T^2}{T+271} + 0.475x^2 \quad (5.24)$$

où  $x$  est la concentration de Ga et  $T$  la température. Pour l'échantillon considéré, de concentration nominale  $x = 0.5$ , la variation de composition est donnée par les valeurs suivantes :  $x = 0.53$  dans la couche de mouillage,  $x = 0.33$  à un tiers de la hauteur de la boîte et  $x = 0.9$  dans la barrière.

A température ambiante, on obtient donc les valeurs suivantes pour les potentiels de confinement des électrons et des trous :  $V_{min}^e = 429.09$  meV,  $V_{min}^h = 177.3$  meV,  $V_{wl}^e = 300.81$  meV,  $V_{wl}^h = 124.29$  meV. La figure 5.10 présente le potentiel effectif calculé pour l'état fondamental d'électron (en trait continu) et de trou (en tireté) le long de l'axe  $z$ . Ils sont calculés pour les paramètres suivants :  $R = 100$  Å,  $R_{top} = 80$  Å,  $h = 35$  Å,  $d = 18.5$  Å. Avec ces paramètres nous obtenons une inversion électron-trou :  $p = \langle z_e \rangle - \langle z_h \rangle = -1$  Å. Ce résultat est dû à la différence de masse effective entre les électrons et les trous : les trous sont davantage localisés à proximité du minimum du potentiel effectif, tandis que



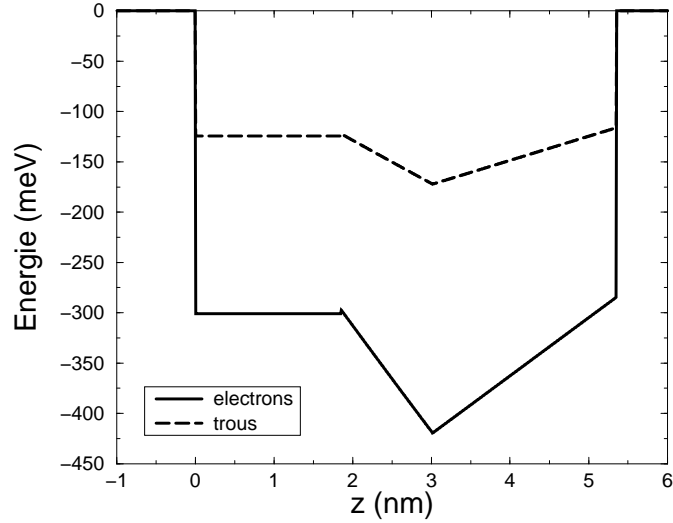


FIG. 5.10 – Potentiel effectif le long de l’axe  $z$  pour les électrons (trait continu) et pour les trous (tireté).

les électrons sont plus délocalisés dans la boîte. Le signe du dipôle peut changer pour des paramètres différents de la boîte. Par exemple, le calcul de la position moyenne des électrons et des trous pour des valeurs croissantes de l’épaisseur de la couche de mouillage est présenté figure 5.11 (à gauche). La position du maximum de la concentration d’In est également indiquée. On peut voir que la position moyenne des trous suit la position de ce maximum beaucoup plus que ne le fait celle des électrons. Pour  $d = 0$  le signe de  $p$  est positif, et la différence entre les positions moyennes des deux particules est négligeable. Quand on augmente l’épaisseur de la couche de mouillage, l’effet est d’abord de rapprocher électrons et trous, et ensuite d’inverser leur alignement. Pour une meilleure comparaison nous avons également calculé les positions moyennes en fonction de l’épaisseur de la couche de mouillage, dans le cas où la composition de la boîte est uniforme. Comme on peut le voir dans la partie droite de la figure 5.11,  $p$  ne change pas de signe : le seul effet de l’augmentation de  $d$  est d’éloigner les deux particules.

Dans les boîtes étudiées la couche de mouillage a une épaisseur  $d = 1.85$  nm ; cette dernière est donc suffisante pour que le dipôle soit inversé. Si on calcule l’énergie de la transition fondamentale  $1S1(e) - 1S1(hh)$  par rapport au champ électrique appliqué (figure 5.12, en trait continu) avec la méthode présentée dans la section 5.1, on trouve que la courbe a un maximum pour un champ  $F_M = -24$  kV/cm : on retrouve donc la même allure que dans les résultats de l’expérience de Fry *et al.* [5]. Pour relier directement la courbe d’effet Stark à la valeur de  $p$ , on peut en première approximation calculer l’énergie de transition

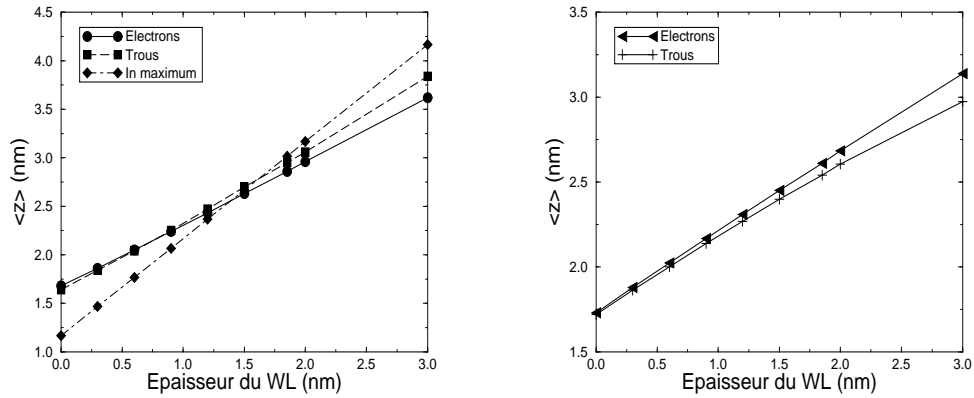


FIG. 5.11 – Position moyenne des électrons et des trous en fonction de l'épaisseur de la couche de mouillage dans une boîte de concentration d'In non uniforme (à gauche) et de composition d'In uniforme (à droite).

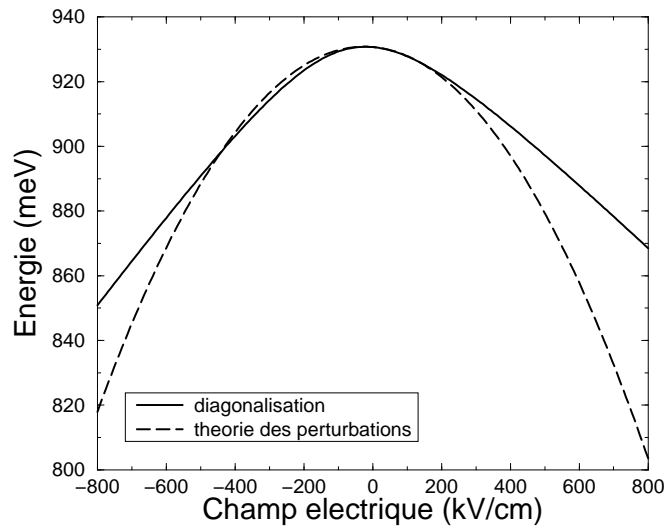


FIG. 5.12 – Énergie de la transition  $1S1(e) - 1S1(hh)$  en fonction du champ électrique calculée par diagonalisation de  $\delta V$  sur les états liés de la boîte (trait continu) et au deuxième ordre de la théorie des perturbations (tireté).

en fonction du champ électrique  $F$  en considérant  $F$  comme une perturbation :

$$E_T(F) = E_T(0) - d_{eh}F - \beta F^2 \quad (5.25)$$

où  $d_{eh} = -|e|p$  et  $\beta = \beta_e + \beta_h$  dépend de la polarisabilité des fonctions d'onde des électrons et des trous :

$$\beta_{e(h)} = \frac{\sum_{j \neq 1} \left| \left\langle \phi_{1Sj}^{e(h)} \middle| ez \middle| \phi_{1S1}^{e(h)} \right\rangle \right|^2}{E_{1Sj}^{e(h)} - E_{1S1}^{e(h)}} \quad (5.26)$$

Dans la figure 5.12 nous comparons les énergies de transition ainsi obtenues avec celles obtenues par diagonalisation sur les états non perturbés. La valeur de  $\beta$  a été estimée à partir de la position du maximum obtenue par diagonalisation :  $\beta = -d_{eh}/(2F_M)$ . La non-uniformité de la composition de la boîte introduit une asymétrie qui n'est pas prévue par la théorie des perturbations au deuxième ordre en champ ; elle est beaucoup plus évidente dans le cas où plusieurs boîtes sont couplées verticalement, comme on le verra dans la prochaine section.

## 5.6 Grading : Boîtes couplées verticalement

Comme on l'a montré dans les sections précédentes, il faut appliquer dans le cas d'une boîte isolée un champ électrique intense ( $|F| > 100$  kV/cm) pour obtenir un effet Stark significatif. Nous avons également montré qu'il est possible d'obtenir des structures plus polarisables en couplant verticalement plusieurs boîtes. On se propose maintenant d'étudier l'effet de la non-uniformité de la composition sur des systèmes de boîtes fortement couplées. Contrairement au cas de la boîte isolée, on ne dispose pas de renseignements précis et quantitatifs sur le profil de la composition. Zhang *et al.* [17] ont montré expérimentalement que, pendant la croissance de plusieurs couches de boîtes, le contenu d'In augmente et celui de Ga diminue dans les boîtes au fur et à mesure que la croissance se déroule. Pour cette raison on a choisi de considérer un potentiel de confinement qui est plus profond dans la boîte supérieure de la pile. Par analogie avec le cas des boîtes isolées nous avons également choisi de fixer  $V_{min}$  à un tiers de la hauteur de la boîte supérieure. La figure 5.13 présente le potentiel effectif le long de l'axe  $z$ , dans le cas de deux boîtes empilées, sans barrière entre les boîtes. Les deux boîtes sont identiques et elles ont les mêmes dimensions que la boîte considérée dans le paragraphe précédent. Les électrons et les trous sont davantage séparés que dans une boîte isolée : nous calculons  $p = -5.3$  Å. Nous présentons figure 5.14 l'énergie de la transition fondamentale en fonction du champ électrique appliqué à cette structure ; les courbes relatives aux structures avec trois et quatre boîtes y sont également représentées. L'énergie de transition diminue quand le nombre de boîtes augmente ; en effet la hauteur totale de la boîte augmente, les niveaux

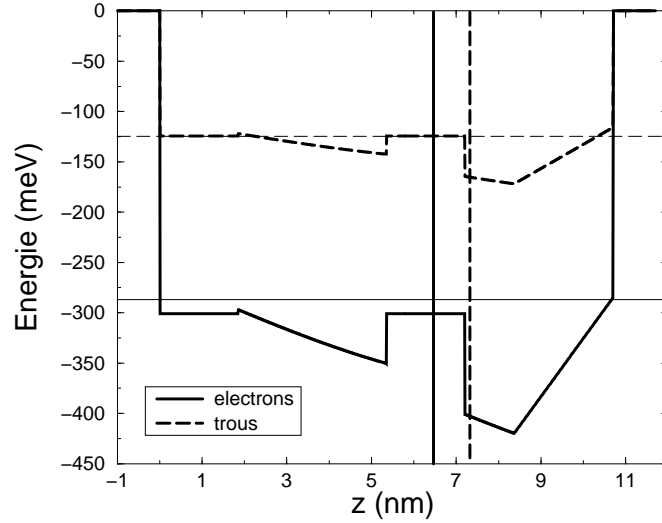


FIG. 5.13 – Potentiel effectif le long de l'axe  $z$  dans le cas de deux boîtes empilées pour les électrons (trait continu) et pour les trous (tireté) dans l'état  $1S1$ . Les lignes verticales donnent la position moyenne des électrons et des trous, les lignes horizontales donnent les énergies des états  $1S1$  ( $F = 0$ ).

des électrons et des trous sont donc plus profonds. Le maximum  $F_M$  est en valeur absolue plus petit que dans le cas d'une seule boîte. Les trois courbes sont très asymétriques; elles deviennent linéaires pour des champs électriques positifs ou négatifs intenses, mais avec des pentes différentes. Cela indique que la théorie des perturbations au deuxième ordre est insuffisante pour rendre compte de l'effet Stark dans les structures qui ont une composition non-uniforme et qui sont constituées par plusieurs boîtes. En fait, les champs électriques effectifs locaux (interne, dû au grading, plus appliqué) vus par les particules sont beaucoup trop intenses pour être pris en compte perturbativement. La variation linéaire à grand champ rappelle plutôt le regime Stark d'accumulation des porteurs près d'une interface d'un puits quantique.

## 5.7 Grading : Spectre d'absorption interbande

Dans la section 5.3 nous avons calculé le spectre d'absorption interbande en présence de fluctuations pour les dimensions des boîtes. On se propose d'utiliser la même méthode pour étudier l'effet de la non-uniformité de la composition sur le spectre d'absorption d'une boîte isolée et d'un système de boîtes couplées verticalement. La distribution de probabilité des dimensions est la même que dans le paragraphe 5.3, et les dimensions des boîtes sont les mêmes que dans le

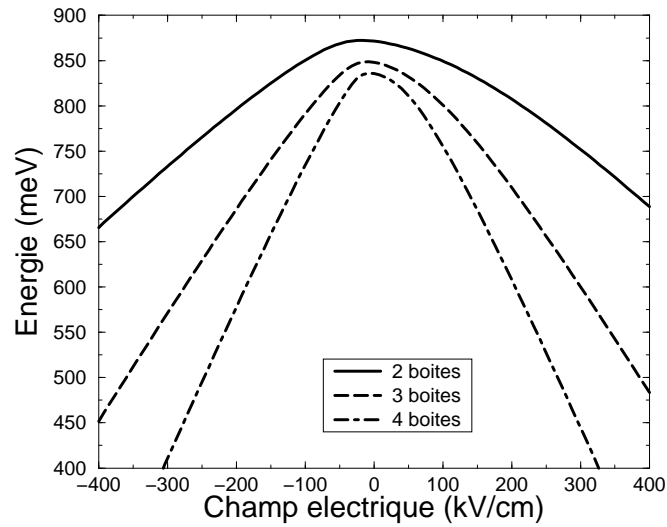


FIG. 5.14 – Transition fondamentale en fonction du champ électrique appliqué dans le cas de deux (continu), trois (tireté), quatre (pointillé-tireté) boîtes avec grading.

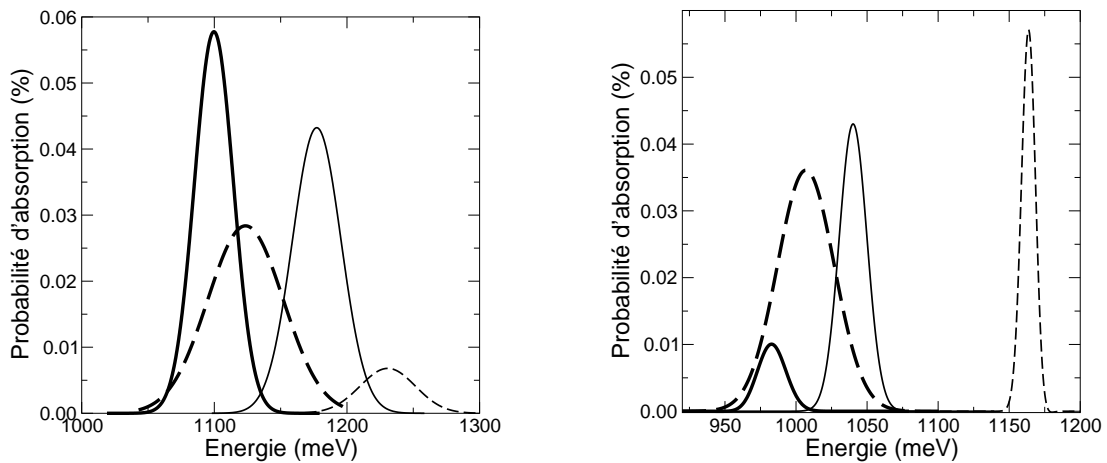


FIG. 5.15 – Probabilité d'absorption pour une boîte isolée (à gauche) et pour une structure de deux boîtes (à droite). Les lignes épaisses représentent la transition fondamentale, les lignes minces la première transition excitée. En trait continu, les spectres obtenus avec une concentration uniforme d'In, en tireté les spectres obtenus avec un profil de concentration d'In.

paragraphe précédent.

La partie gauche de la figure 5.15 présente la transition fondamentale (lignes épaisses) et la première transition excitée (lignes fines) dans une structure à une seule boîte, sous un champ électrique  $F = 200$  kV/cm. A droite, le même calcul a été effectué sur une structure de deux boîtes couplées verticalement. Les lignes continues ont été obtenues avec une concentration uniforme, celles en tireté avec le profil de concentration discuté dans le paragraphe précédent. On peut remarquer qu'en présence d'un profil de concentration, les pics correspondants aux deux transitions se situent à plus haute énergie et que leur séparation en énergie augmente, par rapport au cas où la composition est uniforme. De plus, les spectres sont plus élargis, parce que les électrons et les trous deviennent plus sensibles aux variations de hauteur. L'élargissement des deux transitions diminue quand le nombre de boîtes augmente, comme nous l'avons montré dans le paragraphe 5.3. La transition excitée devient plus probable que la transition fondamentale dans les deux types de structures. Il est important de souligner que les transitions fondamentale et excitée sont beaucoup plus séparées dans le cas où il y a un profil de concentration : cela peut être un renseignement intéressant pour l'électro-modulation.

## 5.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié l'effet du champ électrique sur les systèmes de boîtes simples ou couplées verticalement. Nous avons d'abord considéré le cas des boîtes d'InAs avec une concentration d'In uniforme. Nous avons calculé la courbe d'effet Stark pour un champ électrique dans la direction de l'axe  $z$  et dans le plan de la couche de mouillage. Nous avons également calculé les spectres d'absorption interbandes et intrabandes en présence de fluctuations des dimensions des boîtes. Nous avons ensuite étudié le cas des boîtes qui ont une concentration d'In non uniforme. Nous avons utilisé les résultats présentés dans l'article de Shumway *et al.* [14] pour avoir un profil de concentration réaliste et nous avons calculé, à l'aide de ce profil, les courbes d'effet Stark et le spectre d'absorption interbande pour des boîtes simples ou couplées verticalement.



# Bibliographie

- [1] A. Vasanelli, R. Ferreira, H. Sakaki, G. Bastard, *Sol. St. Comm.* **118**, 459 (2001).
- [2] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, pag. 237 et suiv, Les éditions de physique.
- [3] P. Y. Yu, M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer (1999).
- [4] L. Tarassov, *Bases physiques de l'électronique quantique*, Editions de Moscou (1979).
- [5] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill, J. C. Clark, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 733 (2000).
- [6] S. Raymond, J. P. Reynolds, J. L. Merz, S. Fafard, Y. Feng, S. Charbonneau, *Phys. Rev. B* **58**, R13415 (1998).
- [7] O. Stier, M. Grundmann, D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **59**, 5688 (1999).
- [8] W. Sheng, J.-P. Leburton, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 167401 (2002).
- [9] J. A. Barker, E. P. O'Reilly, *Phys. Rev. B* **61**, 13840 (2000).
- [10] F. Findeis, M. Baier, E. Beham, A. Zrenner, G. Abstreiter, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2958 (2001).
- [11] T. M. Hsu, W.-H. Chang, C. C. Huang, N. T. Yeh, J. I. Chyi, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1760 (2001).
- [12] A. Patané, A. Levin, A. Polimeni, F. Schindler, P. C. Main, L. Eaves, M. Henini, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2979 (2000).
- [13] N. Liu, J. Tersoff, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr, C. K. Shih, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 334 (2000).
- [14] J. Shumway, A. J. Williamson, A. Zunger, A. Passaseo, M. De Giorgi, R. Cingolani, M. Catalano, P. Crozier, *Phys. Rev. B* **64**, 125302 (2001).
- [15] A. Passaseo, G. Maruccio, M. De Vittorio, S. De Rinaldis, T. Todaro, R. Rinaldi, R. Cingolani, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1435 (2001).
- [16] Landoldt-Börnstein, *Group III : Crystal and Solid State Physics, Volume 17 : Semiconductors, Subvolume a : Physics of Group IV Elements and III-V Compounds*, Edited by O. Madelung, Springer-Verlag Berlin (1982).



- [17] Q. Zhang, J. Zhu, X. Ren, H. Li, T. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3830 (2001).

# Chapitre 6

## Transitions intrabandes lié-continuum

Une des applications possibles des boîtes quantiques à l'optoélectronique est la réalisation de détecteurs d'infrarouge. Lee *et al.* [1] ont réalisé un photodétecteur d'infrarouge qui utilise les transitions intrabandes lié-continuum dans les boîtes quantiques de InAs. Il est donc important, tant du point de vue de la physique fondamentale que du point de vue des applications, d'étudier le continuum des boîtes et de calculer les spectres d'absorption lié-continuum. Dans les chapitres précédents des renseignements sur les transitions lié-continuum ont été obtenus de façon indirecte, à l'aide de la règle de somme. Dans ce chapitre les états du continuum d'électron et de trou dans les boîtes seront calculés dans le cadre de la méthode numérique, présentée dans le chapitre 2. Nous calculerons d'abord la densité d'états du continuum. Nous calculerons ensuite la force d'oscillateur et le spectre d'absorption intrabande d'électron et de trou. Nous comparerons les résultats de ces calculs avec ceux qui ont été obtenus en modélisant les états du continuum par des ondes planes et par des ondes planes orthogonales.

### 6.1 Densité d'états

Dans le chapitre 2 nous avons présenté la méthode numérique utilisée et comparé les résultats obtenus pour les états liés à ceux qui ont été obtenus par les méthodes variationnelles. Le but du calcul numérique est d'obtenir une bonne description des états du continuum ainsi que des états liés. Dans ce paragraphe nous étudierons donc les états du continuum des électrons et des trous. Nous utiliserons comme exemple la boîte, qui a déjà été utilisée dans le chapitre 2 ( $R=100 \text{ \AA}$ ,  $R_{top} = 80 \text{ \AA}$ ,  $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $d = 10 \text{ \AA}$ ,  $V_0 = 413 \text{ meV}$  pour les électrons,  $V_0 = 288 \text{ meV}$  pour les trous). Un premier renseignement important est la *densité d'états* du continuum, définie de la façon suivante (la dégénérescence due au spin

n'est pas considérée) :

$$\rho(E) = \sum_n \delta(E - E_n) \quad (6.1)$$

où  $E_n$  est l'énergie associée à l'état  $|n\rangle$ . Il faut distinguer entre deux contributions à la densité d'états du continuum : celle due à la couche de mouillage, et celle due à la barrière. La couche de mouillage est un puits quantique, de surface  $S = \pi R_b^2$  et d'épaisseur  $d$ . Tant que, pour les dimensions choisies, il y a qu'un état lié pour le mouvement en  $z$ , à l'énergie  $E_{WL}$ , la densité d'états est une fonction en marche d'escalier, qui vaut zéro pour  $E < E_{WL}$ , alors que pour  $E > E_{WL}$  elle vaut [2] :

$$\rho(E) = \frac{S}{4\pi} \left( \frac{2m^*}{\hbar^2} \right) \quad (6.2)$$

La densité d'états de la partie barrière, en revanche, est celle d'une particule libre dans un matériau bulk ; elle a donc l'expression suivante :

$$\rho(E) = \left( \frac{2m^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} \frac{SH_b}{4\pi^2} \sqrt{E - E_b} \quad (6.3)$$

où  $E_b$  est le seuil de la barrière. Comme nous l'avons déjà mentionné, la méthode numérique, à cause de l'introduction du cylindre extérieur, rend discrets les états du continuum. Pour obtenir une bonne description du continuum il faudrait alors faire une moyenne des résultats obtenus en considérant des cylindres de dimensions différentes. Cela équivaut à élargir les niveaux du continuum avec une largeur plus grande que la séparation énergétique moyenne entre les niveaux. On peut donc définir la densité d'états, pour les états d'une symétrie donnée, de la façon suivante (utilisant la représentation gaussienne de la delta de Dirac) :

$$D_l(E) = \sum_n \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_E} \exp\left(-\frac{(E - E_{nl})^2}{2\sigma_E^2}\right) \quad (6.4)$$

où la somme est sur tous les états de symétrie  $l$ . Cette définition est équivalente à la définition de la formule 6.1 dans la limite  $\sigma_E \rightarrow 0$ .

La figure 6.1 présente la densité d'états calculée pour le continuum de symétrie  $S$  des électrons (en trait continu) et des trous (en tireté). Pour les électrons on a utilisé  $\sigma_E = 15$  meV et pour les trous  $\sigma_E = 10$  meV. La largeur des gaussiennes a été choisie de façon à ce que, en augmentant sa valeur, les courbes ne changent pas d'allure. Les lignes verticales représentent le démarrage de la barrière pour les électrons (en trait continu) et pour les trous (en tireté). Les niveaux de trou sont moins espacés que les niveaux d'électron parce que les trous ont une masse effective plus grande. Les petites ondulations que l'on observe dans la figure 6.1 sont des effets dûs à l'approximation que l'on fait du continuum. Pour obtenir une meilleure approximation il faudrait considérer un cylindre extérieur plus grand, ainsi qu'un pas plus petit. Cela demande un effort numérique beaucoup plus

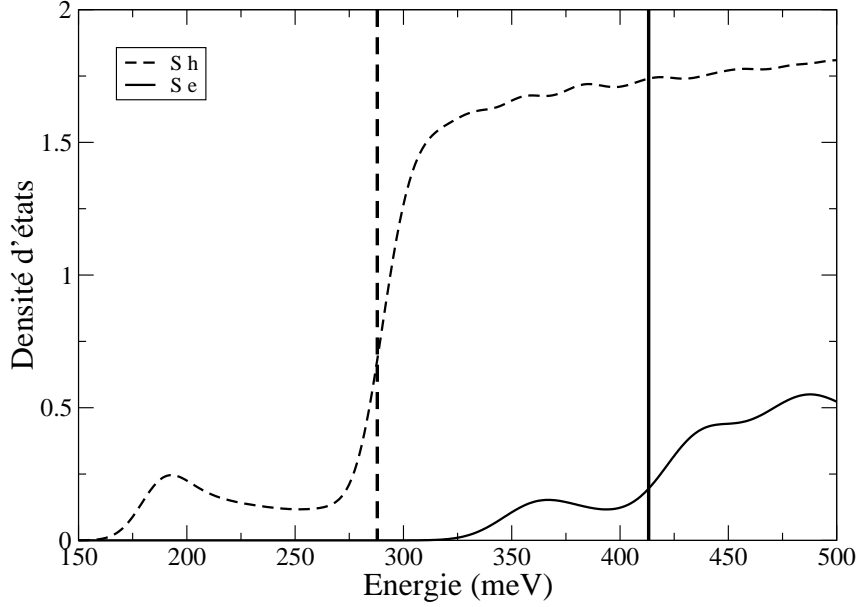


FIG. 6.1 – Densité d'états du continuum de symétrie  $S$  pour les électrons (trait continu) et les trous (en tireté).

important. Toutefois, si l'on compare les résultats obtenus avec les résultats analytiques des formules 6.2 et 6.3, on obtient les mêmes rapports entre les valeurs de la densité d'états des électrons et des trous pour les deux types de continua. Le résultat obtenu est donc proportionnel à la densité d'états calculée analytiquement. Cela veut dire qu'on ne pourra pas obtenir la probabilité d'absorption, mais seulement un spectre qui est proportionnel à la probabilité d'absorption.

La densité d'états  $D(E)$  tient seulement en compte les *énergies* des états du continuum. Elle n'est donc pas très différente pour les états des autres symétries. Pour avoir des renseignements sur la structure du continuum, il faut également considérer les fonctions d'onde. Une quantité plus pertinente est la densité d'états projetée sur la boîte ; cette dernière est définie de la façon suivante :

$$\rho_l(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_E} \sum_n \exp\left(-\frac{(E - E_{nl})^2}{2 \sigma_E^2}\right) \int_{\text{boite}} d\vec{r} |\Psi_{nl}(\vec{r})|^2 \quad (6.5)$$

où la somme est sur tous les états du continuum d'une symétrie donnée et l'intégrale est calculée dans la boîte. Le résultat de ce calcul pour les électrons et les trous dans la boîte d'exemple est présenté dans la figure 6.2 pour  $l = 0, 1, 2$  (symétrie  $S, P, D$ ). On peut remarquer la présence de plusieurs pics, qui correspondent à des états liés virtuels. L'existence de ces derniers avait déjà été prévue théoriquement dans les puits quantiques depuis longtemps (cf [3]). Il sont

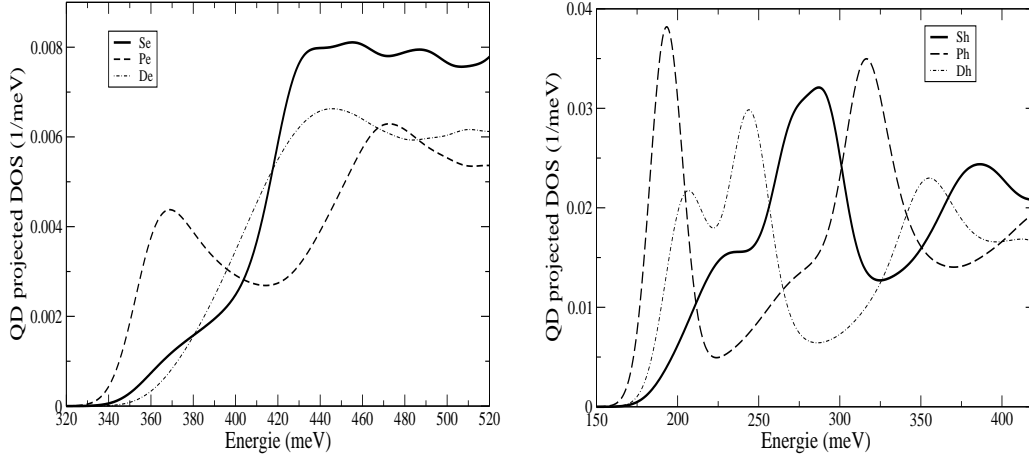


FIG. 6.2 – Densité d'états projetée sur la boîte pour les électrons (figure à gauche) et les trous (à droite).  $\sigma_E = 10$  meV

l'analogie des résonances de Fabry-Perot dans l'optique. Leur importance dans les puits quantiques de semiconducteur ou les boîtes quantiques a été également discutée (cf [4],[5]). Lelong *et al.* ont montré que le spectre d'absorption intrabande est fortement modulé par les résonances de Fano, qui résultent de l'interférence entre les états virtuels et le continuum plat, et ce dernier résultat s'accorde très bien avec des expériences de photocourant réalisées sur des boîtes de InAs/GaAs [5]. La boîte utilisée comme exemple est très grande. Il en résulte une très grande quantité d'états liés (pour les électrons il y a deux états liés de symétrie  $S$ , deux de symétrie  $P$ , etc. et encore plus pour les trous) et donc la structure du continuum est également assez compliquée. Dans la figure 6.3 la densité d'états des trous projetée dans la boîte est calculée dans une boîte moins confinante, qui a seulement deux états liés d'électron et de trou, l'un de symétrie  $S$ , l'autre de symétrie  $P$ . On peut observer que la première résonance de symétrie  $D$  se trouve à une énergie inférieure de celles de symétrie  $S$  et  $P$ . La raison est qu'il n'existe pas d'état lié  $D$ ; cet état virtuel est donc le premier "état lié" de symétrie  $D$ .

## 6.2 Ondes planes orthogonalisées

Dans ce paragraphe on se propose de chercher une description analytique des états du continuum. Les limites de cette modélisation seront discutées par la suite, en comparant les résultats obtenus par cette méthode, en terme de force d'oscillateur et de spectre d'absorption, avec ceux qui ont été obtenus par la méthode numérique.

Il faut d'abord distinguer entre deux types de continuum : le continuum bidi-

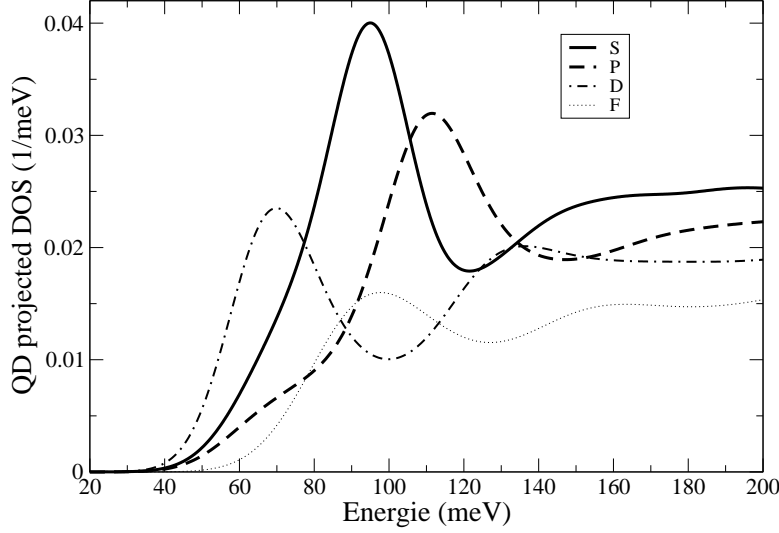


FIG. 6.3 – Densité d'états projetée dans la boîte pour les trous dans une boîte de  $\text{In}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{As}/\text{GaAs}$  ayant les dimensions suivantes :  $R = 110 \text{ \AA}$ ,  $R_{top} = 100 \text{ \AA}$ ,  $h = 25 \text{ \AA}$ ,  $d = 20 \text{ \AA}$ .  $\sigma_E = 10 \text{ meV}$ .

mensionnel (la couche de mouillage) et le continuum tridimensionnel (la barrière). On décrira les états des deux continua par la méthode des ondes planes orthogonalisées (OPW) [6] : les fonctions d'onde de la couche de mouillage sont exprimées en terme d'ondes planes, orthogonalisées aux états liés de la boîte ; celles de la barrière sont orthogonalisées également aux états de la couche de mouillage.

Les états de la couche de mouillage sont donc écrits sous la forme suivante :

$$\Psi_{\vec{k}}^{WL}(\vec{r}) = \Psi_{\vec{k}_\perp} - \sum_{nlj} \Psi_{nlj}(\vec{r}) \langle \Psi_{nlj} | \Psi_{\vec{k}_\perp} \rangle \quad (6.6)$$

où  $\vec{k}_\perp$  est un vecteur d'onde dans le plan de la couche de mouillage et la somme est sur tous les états liés de la boîte, décrits par les fonctions d'onde  $\Psi_{nlj}$ . La fonction  $\Psi_{\vec{k}_\perp}$  est donnée par l'expression suivante :

$$\Psi_{\vec{k}_\perp} = \frac{1}{\sqrt{S}} \exp(i\vec{k}_\perp \cdot \vec{\rho}) \varphi_{WL}(z) \quad (6.7)$$

où  $S$  est la surface de normalisation et  $\varphi_{WL}$  est la solution du problème d'un puits quantique, de même dimension verticale que la couche de mouillage. Il est possible de montrer que les fonctions  $\Psi_{\vec{k}}^{WL}$  forment une base :

$$\begin{aligned} \langle \Psi_{\vec{k}}^{WL} | \Psi_{\vec{k}'}^{WL} \rangle &= \\ &= \delta(\vec{k} - \vec{k}') - \sum_{n'l'j'} \langle \Psi_{\vec{k}_\perp} | \Psi_{n'l'j'} \rangle \langle \Psi_{n'l'j'} | \Psi_{\vec{k}'_\perp} \rangle + \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& - \sum_{nlj} \langle \Psi_{\vec{k}_\perp} | \Psi_{nlj} \rangle \langle \Psi_{nlj} | \Psi_{\vec{k}'_\perp} \rangle + \\
& + \sum_{nlj} \sum_{n'l'j'} \langle \Psi_{\vec{k}_\perp} | \Psi_{nlj} \rangle \langle \Psi_{nlj} | \Psi_{n'l'j'} \rangle \langle \Psi_{n'l'j'} | \Psi_{\vec{k}'_\perp} \rangle = \\
& = \delta(\vec{k} - \vec{k}') - \sum_{nlj} \langle \Psi_{\vec{k}_\perp} | \Psi_{nlj} \rangle \langle \Psi_{nlj} | \Psi_{\vec{k}'_\perp} \rangle \quad (6.8)
\end{aligned}$$

Le dernier terme de l'équation tend vers zéro quand  $S$  tend vers l'infini.

Les états du continuum barrière peuvent être écrits de différentes façons. S'il n'y avait pas les boîtes, les fonctions d'onde seraient le produit d'ondes planes (dans le plan) et des états dissociés d'un puits quantique  $\varphi_{k_z}^B$  [2] (en  $z$ ). De même que pour les états du continuum de la couche de mouillage, on doit s'assurer que les états de la barrière sont orthogonaux aux états de la boîte et aux états de la couche de mouillage. Une première façon d'obtenir les états de la barrière consiste donc à les écrire sous la forme :

$$\Psi_{\vec{k}_\perp, k_z}^B = \frac{1}{\sqrt{S}} \left( e^{i\vec{k}_\perp \cdot \vec{\rho}} \varphi_{k_z}^B - \sum_{nlj} \Psi_{nlj}(\vec{r}) \langle \Psi_{nlj} | e^{i\vec{k}_\perp \cdot \vec{\rho}} \varphi_{k_z}^B \rangle \right) \quad (6.9)$$

Par construction, ces fonctions sont orthogonales aux états liés. Il est possible de montrer qu'elles sont également orthogonales aux états de la couche de mouillage. Une autre façon de décrire les états du continuum 3D est d'écrire la partie en  $z$  comme une onde plane orthogonalisée à l'état lié de la couche de mouillage, de la même façon qu'on a fait pour la partie dans le plan :

$$\varphi_{k_z}^B(z) = \frac{e^{ik_z z}}{\sqrt{L_z}} - \varphi_{WL}(z) \left\langle \varphi_{WL}(z) \left| \frac{e^{ik_z z}}{\sqrt{L_z}} \right. \right\rangle \quad (6.10)$$

Comme pour la première méthode, l'orthogonalisation aux états liés de la boîte et aux états de la couche de mouillage est assurée pour le cas d'une seule boîte et d'une seule couche de mouillage. Dans la suite on utilisera cette dernière expression pour  $\varphi_{k_z}^B$ .

### 6.3 Force d'oscillateur

Dans le chapitre 3 nous avons rappelé que la force d'oscillateur des transitions intrabandes peut être écrite comme :

$$OS_{i \rightarrow f} = \frac{2m^*}{\hbar^2} (E_f - E_i) |\langle i | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle|^2 \quad (6.11)$$

Dans le chapitre 3 nous avons également montré que l'absorption intrabande dans les boîtes quantiques est très anisotrope, selon que la polarisation de la lumière est dans le plan de la couche de mouillage ou dans la direction de croissance. La

	$1S \rightarrow 1P$	$1S \rightarrow 2P$	$1S \rightarrow WL$	$1S \rightarrow B$	TOT
num	0.88	0.071	0.02	0.005	0.98
OPW	0.90	0.076	0.05	0.03	1.06
PW	0.90	0.076	7.05	13.8	21.83

TAB. 6.1 – Force d'oscillateur pour les transitions intrabandes de conduction. La lumière est polarisée dans le plan de la couche de mouillage.

force d'oscillateur des transitions lié-continuum a été estimée de façon indirecte, à l'aide de la règle de somme. Dans ce paragraphe la force d'oscillateur sera calculée explicitement dans le cadre de la méthode numérique. La force d'oscillateur totale sera également calculée grâce à la méthode "mixte" (pour les états liés) et par des ondes planes, orthogonalisées ou non (PW)(pour les états étendus). La vérification de la règle de somme sera un premier critère pour juger de la qualité des méthodes d'approximation des états étendus.

Considérons d'abord une polarisation dans le plan ( $\hat{\varepsilon} // \hat{x}$ ). Nous avons déjà observé que les seules transitions possibles depuis l'état fondamental sont celles vers les états de symétrie  $P$  à cause de l'intégration sur l'angle de l'élément de matrice  $\langle \Psi_{1S} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{r} | \Psi_{nl} \rangle$ . Nous avons également observé que la transition lié-lié  $1S \rightarrow 1P$  prend presque toute la force d'oscillateur. On trouve en effet pour les électrons :  $OS_{1S \rightarrow 1P} = 0.88$ . La deuxième transition permise,  $1S \rightarrow 2P$  a une force d'oscillateur douze fois plus petite :  $OS_{1S \rightarrow 2P} = 0.071$ . Le tableau 6.1 montre les résultats obtenus pour la force d'oscillateur des transitions intrabandes de conduction. Les contributions dues aux transitions vers la couche de mouillage et vers la barrière ont été distinguées. La première ligne montre les résultats obtenus par la méthode numérique. On peut voir que la contribution totale de la couche de mouillage est environ cinquante fois plus petite que celle due à la première transition permise, celle de la barrière est environ 150 fois plus petite. La somme des forces d'oscillateur de toutes les transitions permises jusqu'à l'énergie de 600 meV nous donne donc la valeur de 0.98 : la règle de somme est satisfaite. Dans la deuxième et dans la troisième ligne du tableau, la force d'oscillateur des transitions  $1S \rightarrow 1P$  et  $1S \rightarrow 2P$  a été calculée dans le cadre de la méthode variationnelle, tandis que celle des transitions  $1S \rightarrow continuum$  a été calculée par la méthode des ondes planes, orthogonalisées (deuxième ligne) ou non (troisième ligne). La méthode des ondes planes orthogonalisées donne des résultats qui s'accordent assez bien avec les résultats numériques. La règle de somme est respectée (dans la limite des approximation du calcul) : on obtient une force d'oscillateur totale depuis l'état fondamental de 1.06. En revanche, la description du continuum par des ondes planes  $2D$  (pour la couche de mouillage) et  $3D$  (pour la barrière) (sans tenir en compte la boîte) est très imprécise :  $OS_{1S \rightarrow WL} = 7.05$  et  $OS_{1S \rightarrow barriere} = 13.8$ .

Le calcul de la force d'oscillateur des transitions intrabandes de valence donne des résultats similaires à ceux des électrons :  $OS_{1S \rightarrow 1P} = 0.88$ ,  $OS_{1S \rightarrow 2P} = 0.057$



	$1S \rightarrow 2S$	$1S \rightarrow WL$	$1S \rightarrow B$	TOT
num	0.0014	0.0074	0.45	0.46
OPW	0	0.24	1.2	1.44
PW	0	0.57	3.51	4.08

TAB. 6.2 – Force d’oscillateur pour les transitions intrabandes de conduction. La lumière est polarisée selon la direction  $z$ .

et la force d’oscillateur totale jusqu’à l’énergie de 430 meV vaut 0.975.

Quand la polarisation est le long de l’axe  $z$ , les résultats obtenus sont complètement différents. Nous avons déjà souligné que seuls les états de symétrie  $S$  contribuent au calcul de la force d’oscillateur ; les états des autres symétries donnent une contribution nulle à cause de l’intégration sur l’angle de l’élément de matrice  $\langle \Psi_{1S} | z | \Psi_{nl} \rangle$ . Nous avons déjà montré dans le cadre de la méthode variationnelle (chapitre 3) que quand il n’y a pas d’états liés de type  $1Sj$ , avec  $j > 1$ , la contribution à la force d’oscillateur des transitions vers les états liés est formellement zéro. Cela est dû au fait que, par construction, les états de type  $nSj$  sont orthogonaux à l’état fondamental et donc l’intégrale en  $\rho$  vaut zéro. Dans le cas des électrons, le seul état lié  $S$ , à part l’état fondamental, est un état de type  $2S$ . La méthode variationnelle prévoit donc une force d’oscillateur  $OS_{1S \rightarrow 2S} = 0$ . Le tableau 6.2 montre, dans la première ligne, les résultats numériques obtenus pour la force d’oscillateur. La valeur calculée pour  $OS_{1S \rightarrow 2S}$  est cohérente avec le résultat variationnel :  $OS_{1S \rightarrow 2S} = 0.0014$ . La contribution des états de la couche de mouillage est  $OS_{1S \rightarrow WL} = 0.0074$  : la barrière prend donc toute la force d’oscillateur des transitions depuis la transition fondamentale. La force d’oscillateur totale, jusqu’à l’énergie de 640 meV, vaut 0.46. Le reste de la force d’oscillateur est donc pris par les transitions à plus haute énergie. Si l’on décrit le continuum par des ondes planes orthogonalisées, on s’attend à des résultats moins bons que ceux qui ont été obtenus en polarisation dans le plan, parce que la boîte quantique est un objet assez plat. Du moment que le seul état de type  $1Sj$  est l’état fondamental, il faut orthogonaliser seulement par rapport à ce dernier. Comme on peut voir dans le tableau, on obtient  $OS_{1S \rightarrow WL} = 0.24$  et  $OS_{1S \rightarrow barriere} = 1.2$ . La force d’oscillateur totale, calculée par la méthode des ondes planes orthogonalisées, vaut donc 1.44. Ceci est un résultat moins bon que celui obtenu quand la lumière est polarisée dans le plan de la couche de mouillage. Dans le tableau on peut également voir le résultat obtenu quand le continuum est approximé par des ondes planes. On peut remarquer que la différence entre les résultats obtenus par les ondes planes et par les ondes planes orthogonalisées est moins importante que dans le cas d’une polarisation dans le plan de la couche de mouillage.

Nous avons déjà vu que dans les systèmes de boîtes couplées verticalement l’existence d’états liés  $1Sj$ , avec  $j > 1$ , donne des résultats complètement différents pour la force d’oscillateur en polarisation  $z$ . Nous avons montré dans le chapitre 4 que la force d’oscillateur depuis l’état fondamental est dans ce cas ré-

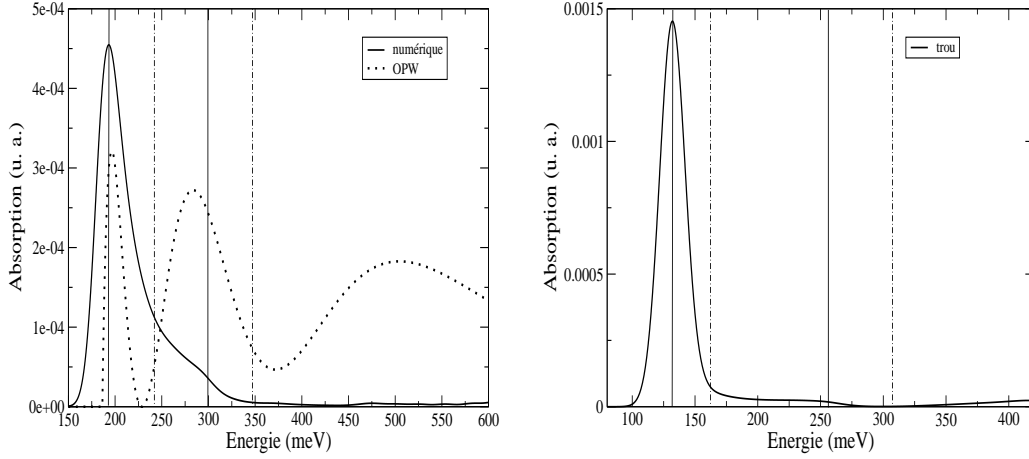


FIG. 6.4 – Polarisation dans le plan. A gauche : absorption intrabande de conduction calculée par la méthode numérique (en trait continu) et par la méthode OPW (en pointillé). A droite : absorption intrabande de valence calculée par la méthode numérique. Dans les deux figures  $\sigma_E = 10$  meV. Les lignes verticales donnent la position énergétique des maxima (trait continu) et des minima (en tireté) (comptée à partir du niveau lié fondamental) de la densité d'états projetée sur la boîte.

partie entre les transitions liées et le continuum. On obtient le même résultat pour les trous dans la boîte que l'on a considérée, parce qu'il y a deux états liés de symétrie  $S$ , à part l'état fondamental : l'un de type  $2S1$ , l'autre de type  $1S2$ , suivant la nomenclature de la méthode variationnelle. On trouve que la force d'oscillateur des transitions liées vaut :  $OS_{1S \rightarrow 2S} = 3 \cdot 10^{-2}$  et  $OS_{1S \rightarrow 1S2} = 0.44$ . La contribution des états de la couche de mouillage est de l'ordre de  $OS_{1S \rightarrow WL} = 8 \cdot 10^{-3}$ , celle des états de la barrière, jusqu'à l'énergie de 530 meV, est de  $7 \cdot 10^{-3}$ . Le reste de la force d'oscillateur est donc pris par les transitions à plus haute énergie.

## 6.4 Spectre d'absorption intrabande

Une fois la force d'oscillateur et la densité d'états connues, le spectre d'absorption intrabande est calculé de la façon suivante :

$$\alpha_l(E) \propto g_l \sum_n OS_{1S \rightarrow nl} \frac{\exp\left(-\frac{(E-E_{nl}+E_{1S})^2}{2\sigma_E^2}\right)}{\sqrt{2\pi}\sigma_E} \quad (6.12)$$

où la somme est sur tous les états  $n$  de symétrie  $l$ , et  $l = 0$  si la polarisation est le long de l'axe  $z$ ,  $l = \pm 1$  si la polarisation est dans le plan de la couche de mouillage ;  $g_l = 1$  si  $l = 0$ ,  $g_l = 2$  si  $|l| > 0$ . Supposons d'abord que la lumière soit polarisée dans le plan. Dans la figure 6.4 nous présentons l'absorption intrabande

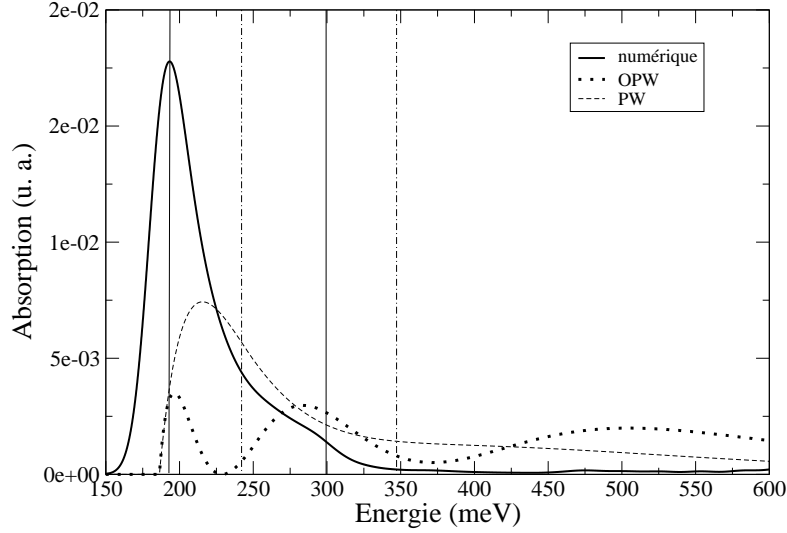


FIG. 6.5 – Absorption intrabande de conduction (pol. dans le plan) calculée avec les ondes planes (en tireté) comparée à celle calculée par la méthode OPW (en pointillé) et à celle calculée numériquement (ligne continue). Les lignes verticales indiquent la position énergétique des maxima (lignes continues) et des minima (en tireté) de  $\rho_1$ . Les intensités ont été normalisées à l'aire intégrée de chacune des courbes.

$1S \rightarrow \text{continuum}$  pour les électrons (figure à gauche, en trait continu) et pour les trous (à droite). Dans les deux figures nous indiquons, par des lignes verticales, la position en énergie des maxima (en trait continu) et des minima (en tireté) de la densité d'états projetée sur la boîte  $\rho_1$ , présentée figure 6.2. On peut voir que le pic de l'absorption correspond au premier maximum de  $\rho_1$  et que chaque changement de pente du spectre correspond à un maximum ou un minimum de  $\rho_1$ . Le fait que les pics de l'absorption sont à la même énergie que les pics de la densité d'état  $\rho_l$  n'est pas surprenant. Si on compare les deux expressions 6.5 et 6.12 on voit qu'elles sont le produit de deux facteurs. Le premier facteur est une fonction gaussienne, qui est une approximation de la vraie densité d'états, et qui est la même dans les deux cas, à part l'origine de l'énergie. Le deuxième facteur est dans le premier cas l'intégrale dans la boîte du module carré de la fonction d'onde; dans le deuxième cas c'est le module carré de l'intégrale de la fonction d'onde  $\Psi_{nl}$  fois la fonction d'onde de l'état fondamental  $\Psi_{1S}$ . Du moment que la fonction d'onde de l'état fondamental est fortement localisée dans la boîte, cette dernière intégrale est équivalente à une intégrale sur le volume de la boîte, où la fonction d'onde  $1S$  est localisée.

Dans la figure 6.4 nous avons également présenté le spectre d'absorption obtenu par la méthode OPW pour les électrons, obtenu de la façon suivante :

$$\alpha(E) = \alpha^{WL}(E) + \alpha^B(E) \quad (6.13)$$

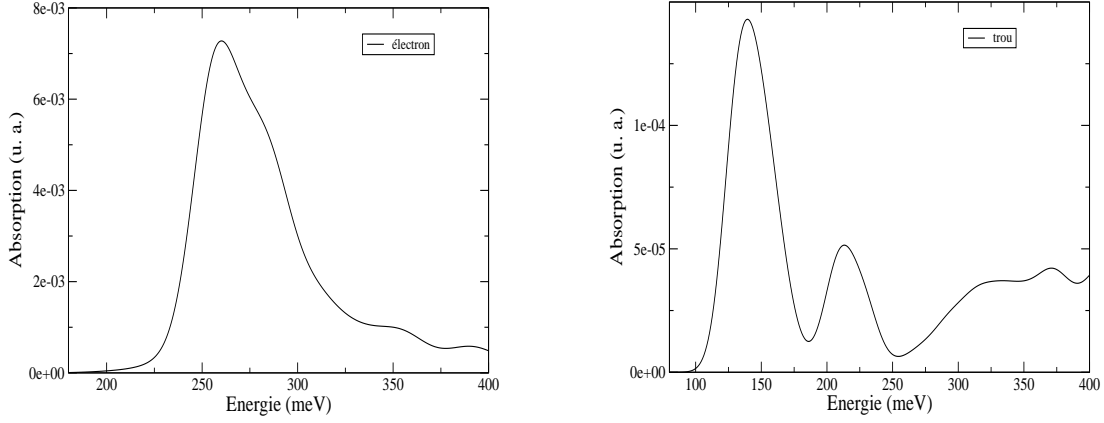


FIG. 6.6 – Absorption intrabande, polarisation en  $z$ , pour les électrons (à gauche) et pour les trous (à droite).

et :

$$\alpha^{WL}(E) \propto \sum_{\vec{k}_\perp} OS_{1S \rightarrow |\vec{k}_\perp\rangle} \delta \left( E_{1S1} + E - E_{WL} - \frac{\hbar^2 k_\perp^2}{2m_\perp} \right) \quad (6.14)$$

$$\alpha^B(E) \propto \sum_{\vec{k}_\perp, k_z} OS_{1S \rightarrow |\vec{k}_\perp, k_z\rangle} \delta \left( E_{1S1} + E - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_z} - \frac{\hbar^2 k_\perp^2}{2m_\perp} \right) \quad (6.15)$$

Les minima de ce spectre sont dus à l'orthogonalisation des ondes planes aux deux états  $1P$  et  $2P$ . L'orthogonalisation à l'état  $1P$  des ondes planes qui décrivent les états de la couche de mouillage provoque le noeud à environ 230 meV. L'orthogonalisation à l'état  $2P$  provoque le noeud à environ 370 meV ; l'intensité d'absorption pour cette valeur de l'énergie n'est pas zéro parce qu'il faut tenir compte de la contribution des transitions vers les états de la barrière. Du point de vue mathématique, l'origine des maxima et des minima du spectre d'absorption est donc à rechercher dans l'opération d'orthogonalisation. Leur position en énergie est toutefois compatible avec celle des minima et des maxima de  $\rho_1$ . La grosse différence entre les deux spectres est l'allure pour les grandes valeurs de l'énergie et le deuxième pic, qui a beaucoup plus d'importance que dans le calcul numérique. La différence sur le premier pic est à attribuer au fait que dans le calcul numérique la fonction delta est approximée par une fonction gaussienne. Nous avons également comparé ces résultats avec le spectre obtenu quand le continuum est approximé par des ondes planes. Rappelons que dans ce cas la force d'oscillateur est beaucoup plus grande que 1. On trouve donc que le spectre d'absorption obtenu a une intensité beaucoup plus grande que celle des spectres obtenus par la méthode numérique et par la méthode OPW. Pour pouvoir les comparer nous avons normalisé chacun des spectres à son intégrale. Le résultat apparaît dans la figure 6.5. Du moment qu'elles n'introduisent pas des noeuds

dans le spectre, les ondes planes donnent une meilleure approximation du spectre pour les grandes énergies. Par contre cette modélisation du continuum ne donne pas la bonne position en énergie pour le pic du spectre d'absorption.

Les spectres obtenus pour une polarisation en  $z$  ont une forme différente. Le continuum qui donne une contribution non nulle est celui de symétrie  $S$ . Les pics d'absorption que l'on voit en figure 6.6 correspondent donc à ceux de la densité d'états  $\rho_0$ . On peut observer que l'absorption due aux états de la barrière n'est pas négligeable comme dans le cas de la polarisation dans le plan.

## 6.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié les états du continuum des boîtes. Nous avons d'abord calculé la densité d'états et la densité d'états projetée dans la boîte. Cette dernière donne des renseignements importants sur la structure du continuum. Nous avons ensuite calculé la force d'oscillateur des transitions intrabandes. Nous avons comparé les résultats obtenus avec les résultats de l'approximation, qui consiste à calculer les états du continuum par la méthode des ondes planes orthogonalisées. Une fois la force d'oscillateur et la densité d'états connues, nous avons calculé le spectre d'absorption intrabande  $1S \rightarrow \text{continuum}$  en polarisation  $z$  et en polarisation dans le plan.

# Bibliographie

- [1] S.-W. Lee, K. Hirakawa, Y. Shimada, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1428 (1999).
- [2] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, Les Editions de Physique (1996).
- [3] D. Bohm, *Quantum theory*, Constable and Company LTD, London (1954).
- [4] G. Bastard, *Phys. Rev. B* **30**, 3547 (1984).
- [5] Ph. Lelong, S.-W. Lee, K. Hirakawa, H. Sakaki, *Phys. E* **7**, 174 (2000).
- [6] C. Kittel, *Quantum Theory of Solids*, Wiley (1987).



# Chapitre 7

## Spectres interbandes : rôle du continuum

A cause de la nature discrète de leurs niveaux d'énergie, les boîtes quantiques ont souvent été considérées comme des atomes artificiels. De nombreuses techniques expérimentales ont été employées pour obtenir le spectre de luminescence d'une boîte isolée. Les spectres ainsi obtenus ne sont pas affectés par les fluctuations de taille et de composition des boîtes sur l'échantillon, et les propriétés spécifiques des systèmes  $0D$  apparaissent clairement. Simultanément, c'est grâce aux techniques de spectroscopie résolue spatialement sur une boîte isolée que les limites du schéma "atome artificiel" ont été mises en évidence. Nombre d'expériences de PLE [1, 2, 3] ont montré l'existence, entre les pics des transitions lié-lié et le seuil du continuum, d'un fond continu. Les expériences de Kammerer *et al.* [1] montrent clairement que ce fond est une propriété intrinsèque de la couche de mouillage.

Après une brève introduction concernant la signature expérimentale et les propriétés du fond continu, son origine physique sera discutée. Nous montrerons qu'il est dû aux transitions "croisées" entre états liés de trou et états du continuum d'électron (états du continuum de trou et états liés d'électron). Les effets de l'interaction coulombienne électron-trou sur le spectre d'absorption interbande seront ensuite discutés. Nous calculerons également le spectre d'absorption interbande en présence de fluctuations de l'épaisseur de la couche de mouillage.

### 7.1 Le problème du fond continu

Dans les dernières années, l'étude de la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques a eu beaucoup d'importance dans la littérature à cause d'une application éventuelle des boîtes aux dispositifs. Dans le but de comprendre les mécanismes de relaxation dans les boîtes, Toda *et al.* [2] ont réalisé des expériences de NSOM (Near-field Scanning Optical Microscopy) sur des boîtes de InAs/GaAs.



Cette technique permet de réduire l'élargissement inhomogène des spectres, et donc d'avoir des renseignements sur les propriétés des boîtes uniques. Les auteurs ont montré l'existence d'un continuum d'états dans les spectres de photoluminescence d'excitation (PLE) d'une boîte isolée : la densité d'états augmente de façon graduelle à partir de la fin d'une large région à absorption zéro, jusqu'au seuil de l'absorption de la couche de mouillage. Ils ont montré que, si l'excitation est non-résonante, les porteurs excités relaxent à travers ce continuum vers l'état fondamental excitonique par émission de phonons. Ceci se révèle être un mécanisme de relaxation très efficace. Le problème est l'origine du fond continu observé. Toda *et al.* montrent qu'il est une propriété *intrinsèque* des boîtes isolées. Tant qu'il pénètre très profondément dans la région  $0D$ , les auteurs suggèrent qu'il puisse être dû à une sorte de passage entre la partie discrète ( $0D$ ) et la partie continue ( $2D$ ) du spectre.

Kammerer *et al.* [1] ont observé, de la même façon que Toda *et al.*, un fond continu entre la partie du spectre due aux transitions entre les états liés, et le seuil de la couche de mouillage. A partir de la comparaison entre l'intensité du signal de PLE de la transition fondamentale et celui de ce seuil, à différentes puissances d'excitation, les auteurs ont tentativement associé le fond continu avec des états de queue de bande de la couche de mouillage. Ils ont également supposé que l'origine de ce phénomène est à rechercher dans les fluctuations spatiales de l'épaisseur de la couche de mouillage. Un problème se pose dans cette interprétation : des fluctuations même importantes de l'épaisseur de la couche de mouillage peuvent difficilement expliquer un fond qui a une extension en énergie de plus que 50 meV. Dans l'article suivant (cf. [4]), grâce à des expériences de PLE effectuées à différentes températures, les auteurs ont trouvé une corrélation entre l'efficacité de l'élargissement de la raie de la transition excitée par les phonons acoustiques et l'intensité du fond continu. Ce dernier a le rôle d'un réservoir d'états pour les collisions entre les porteurs et les phonons acoustiques. Il s'agit donc d'un mécanisme similaire à celui qui provoque l'élargissement de l'état fondamental excitonique dans les puits quantiques. L'importance du fond continu sur le temps de décohérence de l'état fondamental est montré par Kammerer *et al.* dans un autre article [5]. Les auteurs ont comparé les spectres de PLE de deux échantillons différents de boîtes. La figure 7.1 présente les spectres obtenus. Les lignes en tireté indiquent les spectres de micro-PL : ces derniers sont des pics très fins (à 1.36 eV pour l'échantillon A et 1.32 eV pour l'échantillon B) et correspondent à l'émission de photoluminescence d'une boîte isolée. Dans le cas de l'échantillon B le signal de PLE (en trait continu) croît fortement depuis  $\simeq 1.34$  eV. Cette valeur correspond au seuil de la couche de mouillage. Pour des valeurs plus grandes de l'énergie, l'allure constante du spectre est cohérente avec l'absorption attendue par la couche de mouillage. Dans le cas de l'échantillon A, le seuil de la couche de mouillage se trouve à 1.42 eV, et les structures fines présentes à des énergies inférieures correspondent aux états excités de la boîte. Les deux spectres de PLE présentent un fond continu qui augmente de façon graduelle jusqu'au seuil de la

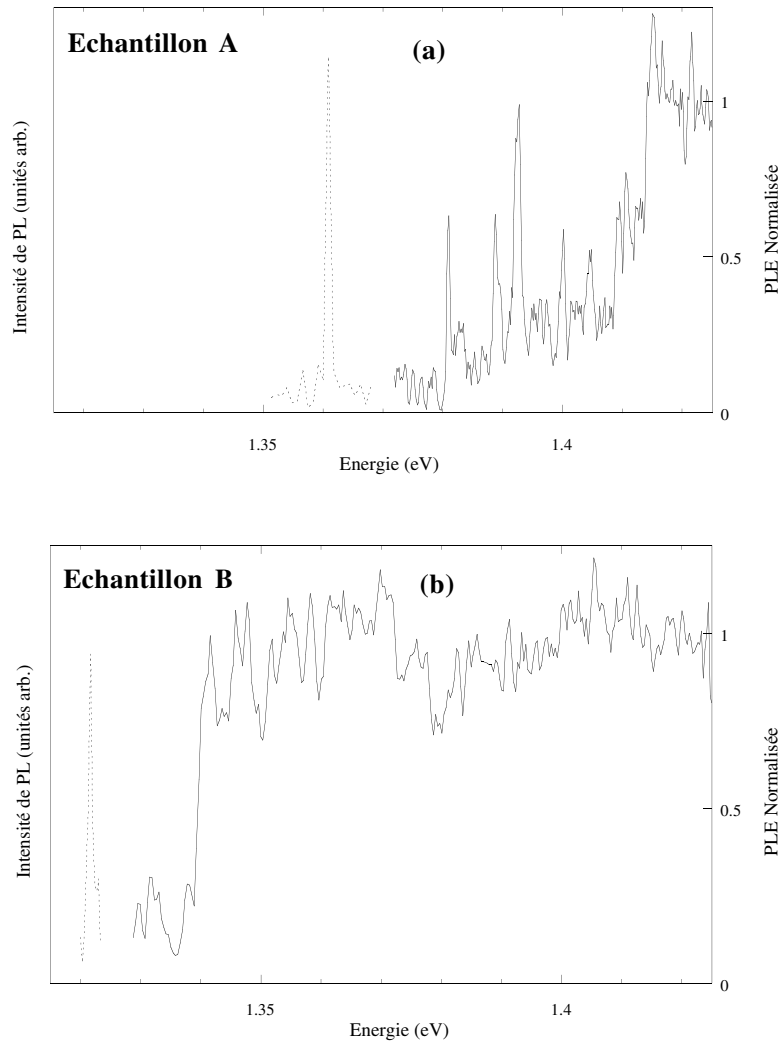


FIG. 7.1 – Spectres de micro-PL (en tireté) et de micro-PLE (en trait continu) obtenus à 10K pour une boîte quantique isolée de deux échantillons différents. Courtoisie de Cécile Kammerer.

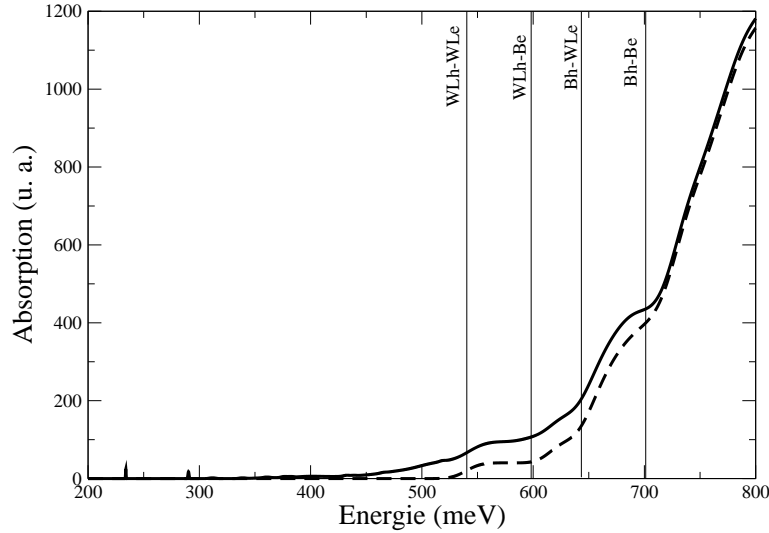


FIG. 7.2 – Spectre d’absorption interbande calculé pour une boîte quantique (en trait continu) et pour un puits de la même épaisseur que la couche de mouillage (en tireté). L’origine des énergies est prise au gap de la boîte.

couche de mouillage. Quand le fond continu est spectralement séparé de la transition fondamentale (échantillon A), le temps de décohérence est beaucoup plus lent que dans le cas de l’échantillon B, pour lequel le fond continu s’étend jusqu’à la transition fondamentale.

Les travaux expérimentaux résumés ci-dessus montrent l’importance du fond continu pour expliquer la relaxation des porteurs dans les boîtes. Ils montrent également qu’il est une propriété intrinsèque de la couche de mouillage. Nous discuterons dans le prochain paragraphe l’origine de ce fond continu : il est dû aux transitions croisées entre états liés et états étendus d’électron et de trou.

## 7.2 Transitions “croisées”

Dans les chapitres précédents nous avons étudié les transitions interbandes impliquant des états liés. Dans le chapitre 6 nous avons également étudié les états du continuum d’électron et de trou, ainsi que les transitions intrabandes depuis l’état fondamental vers les états du continuum. Dans ce chapitre nous étudierons le rôle du continuum d’électron et de trou dans les spectres interbandes. Nous montrerons que les transitions “croisées”, qui font intervenir à la fois un état lié et les états étendus, forment un fond continu, qui s’étend à partir des transitions lié-lié, jusqu’aux transitions continuum-continuum.

La figure 7.2 présente (en trait continu) le spectre d’absorption interbande

pour la boîte d'exemple, considérée dans le chapitre précédent ( $R = 100 \text{ \AA}$ ,  $R_{top} = 80 \text{ \AA}$ ,  $h = 30 \text{ \AA}$ ,  $d = 10 \text{ \AA}$ ,  $V_0 = 413 \text{ meV}$  pour les électrons,  $V_0 = 288 \text{ meV}$  pour les trous). Pour une symétrie  $l$  donnée, l'absorption interbande a été calculée de la façon suivante :

$$\alpha_l^{inter} = \frac{g_l}{\sqrt{2\pi}\sigma_E} \sum_{n_e} \sum_{n_h} \exp\left(-\frac{(E - E_{n_e,l} - E_{n_h,l})^2}{2\sigma_E^2}\right) |\langle \Psi_{n_e,l} | \Psi_{n_h,l} \rangle|^2 \quad (7.1)$$

où  $g_l = 1$  pour  $l = 0$  et  $g_l = 2$  pour  $|l| > 0$ . Nous avons choisi  $\sigma_E = 0.25 \text{ meV}$  pour la transition fondamentale,  $\sigma_E = 0.5 \text{ meV}$  pour la transition  $P$ ,  $\sigma_E = 2.5 \text{ meV}$  pour toutes les autres transitions lié-lié et  $\sigma_E = 10 \text{ meV}$  pour les transitions qui font intervenir un état du continuum d'électron ou de trou. L'élargissement sur les transitions liées tient compte de façon empirique de la largeur homogène des raies. L'interaction coulombienne électron-trou n'est pas prise en compte ; elle sera considérée par la suite. Le spectre de la figure 7.2 est la somme des intensités d'absorption des symétries  $S$ ,  $P$  et  $D$ . La figure présente également (en tireté) le spectre d'absorption obtenu pour un puits quantique de la même épaisseur que la couche de mouillage. Les lignes verticales indiquent le seuil de l'absorption des différents types de continua d'électron et de trou :  $2D-2D$ ,  $2D-3D$ ,  $3D-3D$ . On peut voir que, entre la partie due aux transitions lié-lié et la partie de l'absorption de la barrière, le spectre de la boîte montre une absorption plus importante par rapport à celle de la couche de mouillage. Cela implique que les transitions depuis un état lié vers les états du continuum (ou depuis les états du continuum vers un état lié) donnent une contribution importante au spectre. Soulignons que la contribution au spectre des états de symétries  $l > 2$  est négligeable seulement dans la partie jusqu'au seuil de la couche de mouillage. Au delà de ce seuil l'absorption due aux autres symétries n'est plus négligeable, mais elle contribue de la même façon au spectre de la boîte et à celui de la couche de mouillage. Pour ce qui concerne l'intervalle d'énergie situé entre les transitions lié-lié et la couche de mouillage, pour effectuer une comparaison entre les deux spectres on peut se restreindre aux contributions à l'intensité d'absorption des états  $S$ ,  $P$  et  $D$ .

La partie du spectre entre les transitions liées et le seuil de la couche de mouillage est particulièrement intéressante pour la comparaison avec les spectres expérimentaux. La figure 7.3 présente cette partie du spectre. Certaines des transitions entre un état lié de trou et un état lié d'électron sont indiquées dans la figure ; nous avons également indiqué par des lignes verticales le seuil des transitions entre un état lié de trou et le continuum (couche de mouillage ou barrière) des électrons, ainsi que celui des transitions entre le continuum de trou et un état lié d'électron. On peut remarquer la présence d'un fond continu, qui monte progressivement depuis les transitions entre états liés vers le seuil de la couche de mouillage ( $WLh - WLe$ ). Le spectre présente un changement de pente chaque fois que l'une des deux particules (électron ou trou) entre dans un continuum de type différent. Il est possible de remarquer que, à partir du seuil  $WLh - 1Se$ ,

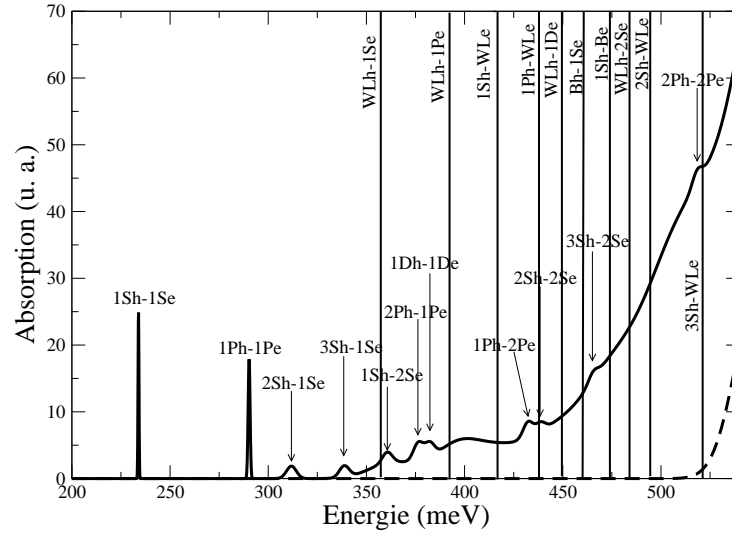


FIG. 7.3 – En trait continu : Spectre d’absorption interbande de la boîte quantique dans la région jusqu’au seuil de la couche de mouillage. En tireté : spectre d’absorption interbande d’un puits de la même épaisseur que la couche de mouillage.

les transitions lié-lié sont complètement insérées dans le fond continu. C’est donc la même allure que celle du fond continu observé dans les spectres expérimentaux. La comparaison avec le spectre d’absorption de la couche de mouillage (en tireté), qui a une intensité zéro dans cette région, permet d’exclure que le fond continu calculé soit dû à la méthode utilisée. Pour en comprendre l’origine physique considérons le cas des atomes. Les boîtes quantiques ont souvent été considérées comme des “*atomes artificiels*”, à cause de la nature discrète des niveaux d’énergie. Si l’on considère un atome monovalent, l’électron préexiste à l’excitation. Le spectre d’absorption peut être calculé en recourant à un modèle à un seul porteur ; le résultat obtenu est un spectre discret, suivi d’un continuum. C’est le même résultat obtenu quand on calcule le spectre d’absorption intrabande pour une boîte dopée (voir chapitre 6). Dans le cas de l’absorption interbande, la situation est différente : il n’y a pas de porteur avant l’excitation. Le spectre est obtenu par un modèle de paires électron-trou, et il est constitué par un spectre discret superposé à un continuum, suivi d’un continuum. Si l’on veut chercher une comparaison avec les atomes, il faut plutôt considérer un atome divalent, par exemple l’atome d’hélium. Les configurations excitées de l’atome d’hélium sont de la forme  $1s, n'l'$ . Ils existent également des configurations “doublement excitées” du type  $nl, n'l'$  (avec  $n, n' > 1$ ). Leur énergie est supérieure à l’énergie d’ionisation de l’atome, de sorte qu’elles sont sujettes aux transitions d’auto-ionisation : ces dernières donnent lieu à un ion  $\text{He}^+$  et un électron libre. La présence des états auto-ionisants dans le continuum ( $\text{He}^+, e^-$ ) a un effet observable sur le spectre

d'absorption du système : il est possible de voir des résonances superposées au continuum (cf. [6]).

### 7.3 Comparaison avec les spectres expérimentaux

L'origine du fond continu comprise, nous allons maintenant comparer les résultats théoriques aux résultats des expériences de Kammerer *et al.* ([5]). Ces auteurs ont montré qu'il est important de connaître l'extension en énergie du fond continu pour avoir des renseignements sur le temps de décohérence de l'état fondamental. La forme du spectre dépend fortement de la séparation en énergie entre les niveaux liés, donc de la forme de la boîte et du potentiel de confinement. C'est pour cette raison que nous avons essayé de calculer la forme du spectre d'absorption interbande pour les deux boîtes (échantillon A et B) dont on a présenté le spectre de PLE dans le paragraphe précédent. Le paramètre important pour obtenir un spectre comparable au spectre expérimental est la position en énergie des niveaux d'électron et de trou. Vue la difficulté numérique de considérer des boîtes de petites dimensions, nous avons changé la concentration d'In dans la boîte (donc le potentiel de confinement) pour obtenir la bonne position en énergie des transitions liées et du seuil de la couche de mouillage. Nous avons obtenu des valeurs d'énergie de transition assez proches des valeurs expérimentales, obtenues pour l'échantillon A, en considérant une boîte de  $\text{In}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{As}$ , avec les dimensions suivantes :  $R = 110 \text{ \AA}$ ,  $R_{top} = 100 \text{ \AA}$ ,  $h = 25 \text{ \AA}$ ,  $d = 20 \text{ \AA}$ . Le spectre d'absorption ainsi obtenu est présenté dans la figure 7.4. Les contributions au spectre des états de symétrie  $S$ ,  $P$ ,  $D$  et  $F$  ont été prises en compte, les autres étant négligeables dans l'intervalle d'énergie considéré. La transition fondamentale a été élargie de 0.25 meV, la transition  $P$  de 0.5 meV et toutes les autres de 2.5 meV. Comme dans le spectre expérimental, on obtient que le fond continu est séparé de la transition fondamentale par quelques dizaines de meV. Il est possible de remarquer que le fond continu démarre à une énergie plus basse que celle de la transition  $P$ .

Pour obtenir un spectre comparable à celui de l'échantillon B, nous avons considéré une boîte avec la même composition que la boîte considérée plus haut, avec les mêmes dimensions, mais avec une couche de mouillage plus épaisse ( $d = 30 \text{ \AA}$ ). Le spectre d'absorption calculé pour cette boîte est montré dans la figure 7.5. La seule transition lié-lié est la transition fondamentale, et les transitions croisées démarrent près de la transition fondamentale.

Grâce à l'introduction des transitions croisées on arrive donc à expliquer l'origine du fond continu observé expérimentalement. Les effets d'appauvrissement local de la couche de mouillage, ainsi que ceux de l'interaction coulombienne électron-trou, sur le spectre interbande, seront analysés par la suite. On verra

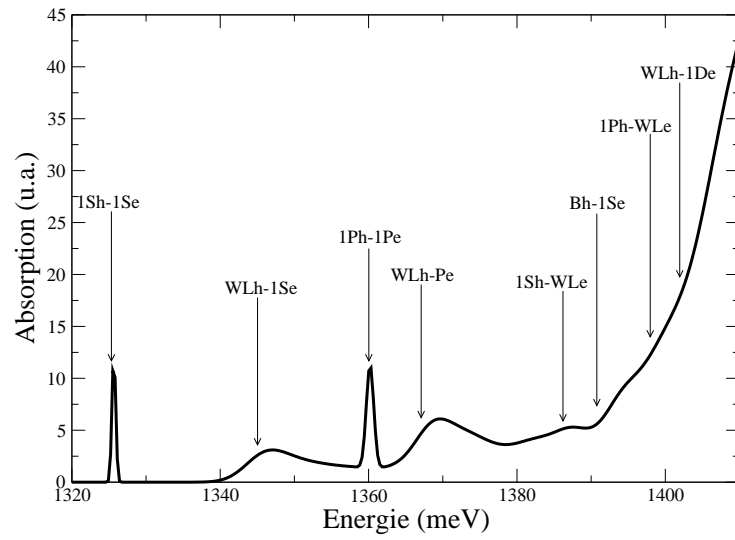


FIG. 7.4 – Spectre d'absorption interbande calculé pour simuler le spectre de PLE de l'échantillon A.

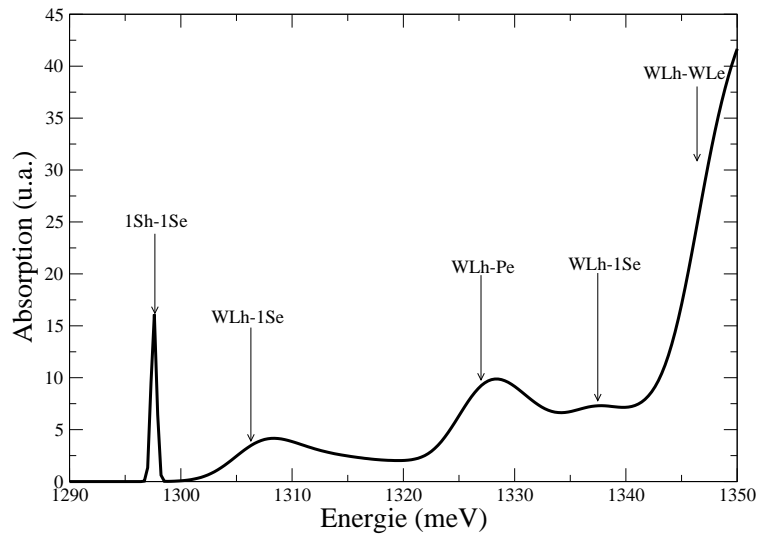


FIG. 7.5 – Spectre d'absorption interbande calculé pour simuler le spectre de PLE de l'échantillon B.

que ces effets ne changent pas l'allure du spectre.

Les calculs effectués ont été obtenus dans le cadre de la méthode numérique : le continuum est constitué d'une série de niveaux discrets, solutions du problème de la boîte dans un cylindre de rayon  $R_b = 1000 \text{ \AA}$  et de hauteur  $H_b = 400 \text{ \AA}$ . Les expériences de micro-PL, dont nous avons rappelé les résultats dans le premier paragraphe, ont été effectuées sur une boîte isolée sur l'échantillon. On pourrait alors dire que le rayon  $R_b$  correspond à la distance moyenne entre les boîtes. Une boîte dans un cylindre de rayon  $R_b$  correspond à une densité surfacique de boîtes de  $n_d = 0.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Ceci correspond à un échantillon de boîtes assez diluées. On peut se demander si l'allure du spectre d'absorption interbande, et en particulier le fond continu, dépend du choix de la surface du cylindre extérieur. Supposons donc de garder la surface  $S$  constante et de varier le nombre  $N_d$  de boîtes. L'intensité d'absorption des transitions lié-lié, ainsi que celle des transitions lié-continuum, est proportionnelle au nombre de boîtes. En revanche, les transitions continuum-continuum dépendent de la surface. En changeant le nombre de boîtes, le rapport entre l'intensité d'absorption des transitions lié-lié et celle des transitions lié-continuum reste constant ; en revanche, l'intensité d'absorption des transitions continuum-continuum reste constante avec la surface. L'allure du spectre jusqu'au seuil de la couche de mouillage est donc indépendante, en première approximation, de la densité de boîtes choisie pour le calcul.

Il faut également remarquer que dans le calcul du spectre d'absorption interbande nous n'avons pas considéré les états de trou léger. Les transitions entre états d'électron et états de trou léger renforcent l'intensité à la fois du fond continu et de l'absorption du continuum. On s'attend donc à ce que le rôle des transitions croisées dans le spectre d'absorption interbande ne soit pas modifié si l'on considère les états de trou léger.

## 7.4 Effet de l'interaction coulombienne

Dans ce paragraphe on se propose d'évaluer de combien l'interaction coulombienne électron-trou change la forme du spectre d'absorption interbande. Soit  $V_{coul}$  le potentiel d'interaction coulombienne, qui a l'expression suivante :

$$V_{coul} = -\frac{e^2}{\kappa |\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \quad (7.2)$$

où  $\kappa = 4\pi\epsilon_0\epsilon_r$ , et  $\epsilon_r$ , la constante diélectrique du matériau de la boîte, vaut 15.2 pour une boîte de InAs. Pour évaluer l'interaction coulombienne, nous avons calculé la valeur moyenne du potentiel coulombien sur l'état fondamental de trou,  $V_{coul}^{1Sh} = \langle 1S_h | V_{coul} | 1S_h \rangle$ . Nous avons ensuite résolu l'équation de Schrödinger pour les électrons en présence du potentiel  $V_{coul}^{1Sh}$ . Tant que le trou est dans l'état  $1S$ , seules les fonctions d'onde électroniques de symétrie  $S$  doivent être considérées. De la même façon, nous avons calculé la valeur moyenne du potentiel coulombien



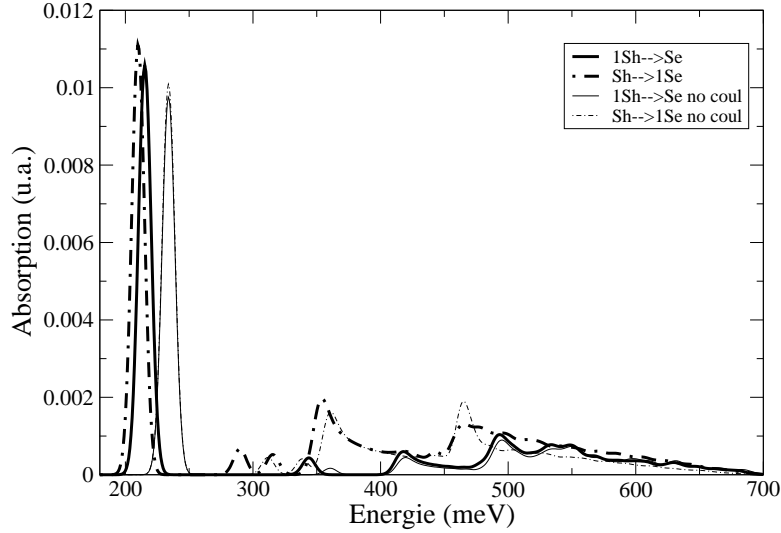


FIG. 7.6 – Comparaison entre les spectres d’absorption interbande avec et sans interaction coulombienne. Les gaussiennes sont élargies de  $\sigma_E = 5$  meV.

sur l’état fondamentale d’électron,  $V_{coul}^{1Se}$ , et nous avons résolu l’équation de Schrödinger pour les trous en présence de ce potentiel. Comme nous l’avons observé dans le chapitre 2, les fonctions variationnelles donnent une très bonne approximation pour l’état fondamental d’électron et de trou. Pour simplifier le calcul, nous avons donc utilisé les fonctions d’onde obtenues par la méthode variationnelle pour calculer la moyenne du potentiel coulombien sur l’état fondamental d’électron et de trou. L’intensité de l’absorption ainsi obtenue, pour la boîte considérée précédemment ( $R = 100$  Å,  $R_{top} = 80$  Å,  $h = 30$  Å,  $d = 10$  Å,  $V_0 = 413$  meV pour les électrons,  $V_0 = 288$  meV pour les trous), est présentée fig. 7.6. Nous avons indiqué par des traits épais les transitions  $1Sh \rightarrow Se$  (trait continu) et  $Sh \rightarrow 1Se$  (en tireté), en présence du potentiel coulombien moyenné ; les mêmes transitions, en absence d’interaction coulombienne, ont été indiquées par des traits minces. Nous observons d’abord que les deux pics correspondants à la transition  $1Sh \rightarrow 1Se$ , l’un calculé en moyennant l’interaction coulombienne sur l’état fondamental des trous, l’autre sur l’état fondamental des électrons, devraient coïncider. La séparation de quelques meV entre les deux pics donne la limite de notre approche. Cette séparation est due à la différence entre les énergies calculées par la méthode numérique et celles calculées par la méthode variationnelle. Si l’on compare ces courbes avec celles obtenues en absence d’interaction coulombienne, on peut remarquer que l’effet de l’interaction coulombienne est plus important sur les transitions entre deux états liés. On peut observer un décalage de  $\sim 20$  meV sur la transition fondamentale, et un décalage de plus en plus petit au fur et à mesure que les transitions font intervenir des états étendus.

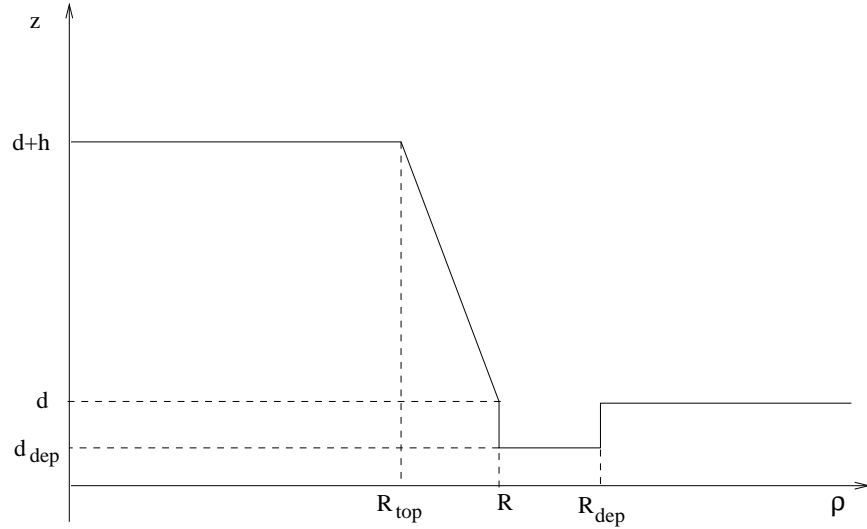


FIG. 7.7 – Schéma de la boîte considérée pour évaluer l'effet de l'appauvrissement local de la couche de mouillage.

L'interaction coulombienne augmente l'intensité de l'absorption pour des transitions qui font intervenir des états liés, mais elle ne change pas l'allure du spectre. Les considérations faites sur les transitions  $S$  sont également valables pour les transitions des autres symétries. On peut en conclure que le spectre d'absorption interbande, obtenu en considérant l'interaction coulombienne entre électron et trou, présente encore le fond continu, discuté dans les paragraphes précédents.

## 7.5 Fluctuations de l'environnement

Gerard *et al.* [7] ont observé expérimentalement que, pendant le processus de croissance, la formation d'une boîte quantique induit un appauvrissement local de la couche de mouillage. Kammerer *et al.* [1] ont supposé que cet effet d'appauvrissement local est à l'origine du fond continu présent dans leurs spectres expérimentaux. Dans les paragraphes précédents, nous avons indiqué une origine différente pour le fond continu. Dans ce paragraphe nous simulerons l'effet de l'appauvrissement pour en étudier les conséquences sur le spectre d'absorption.

La figure 7.7 présente un schéma de la boîte considérée : l'appauvrissement est simulé par une couche de mouillage moins épaisse au voisinage de la boîte. Les dimensions de la boîte sont les mêmes que celles utilisées pour obtenir le spectre 7.4 ; de plus  $R_{\text{dep}} = R + 20 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{dep}} = 10 \text{ \AA}$ . Le résultat pour le calcul du spectre d'absorption est présenté en tireté dans la figure 7.8. Seules les contributions  $S$  et  $P$  au spectre d'absorption ont été considérées (les contributions dues

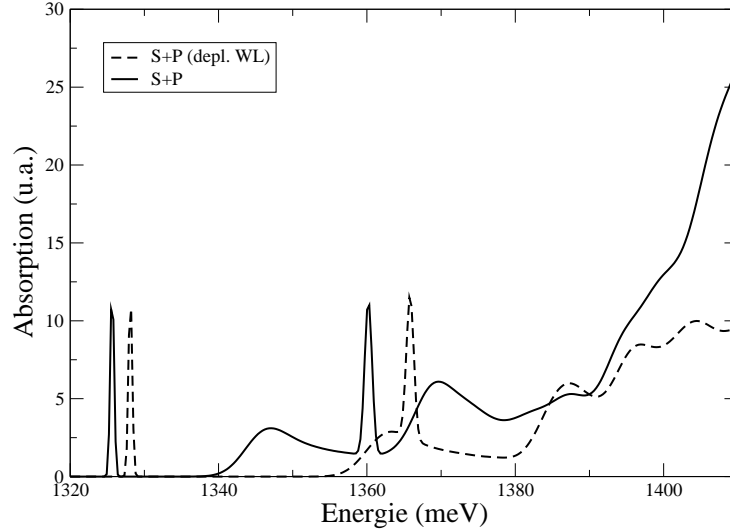


FIG. 7.8 – Contributions  $S$  et  $P$  au spectre d'absorption interbande en présence d'un effet d'appauvrissement local de la couche de mouillage (en tireté), comparée au spectre obtenu dans le cas d'une couche de mouillage d'épaisseur uniforme (en trait continu).

aux autres symétries ont comme seul effet celui d'augmenter le fond). Ce spectre est comparé à celui obtenu pour une couche de mouillage d'épaisseur uniforme (seulement les contributions  $S$  et  $P$ ), en trait continu. On peut remarquer que, en présence d'appauvrissement, le pic correspondant à la transition  $P$  se trouve encore sur le fond continu dû aux transitions  $WLh - 1Se$ ; la différence, par rapport au cas où l'épaisseur de la couche de mouillage est uniforme, est que le fond continu est plus loin en énergie de la transition fondamentale ( $\sim 20$  meV en plus). L'intensité du fond est presque trois fois plus petite au voisinage du seuil de la couche de mouillage. Cela est dû au fait que vider la couche de mouillage au voisinage de la boîte crée une barrière pour les fonctions d'onde du continuum les empêchant de pénétrer dans la boîte. Nous pouvons conclure que les propriétés du fond continu, en particulier son intensité et son extension en énergie, dépendent fortement de la morphologie de la boîte et de son environnement.

## 7.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié le problème de l'origine du fond continu observé expérimentalement dans les spectres de micro-PLE et NSOM. Nous avons brièvement exposé les résultats de quelques expériences réalisées sur des boîtes uniques; nous avons ainsi présenté les motivations expérimentales de nos calculs. Nous avons ensuite calculé le spectre des transitions interbandes : nous avons

montré que l'origine du fond continu est à rechercher dans les transitions croisées, qui font intervenir états liés et états étendus. Nous avons comparé les spectres obtenus à ceux qui ont été obtenus par les expériences de Kammerer *et al.* [5]. Nous avons ensuite étudié les effets sur le spectre d'absorption de l'interaction coulombienne électron-trou. Nous avons également discuté les effets sur le spectre d'un appauvrissement local de la couche de mouillage.



# Bibliographie

- [1] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, J. M. Gérard, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 207401 (2001).
- [2] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, Y. Arakawa, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114 (1999).
- [3] J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaître, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, T. F. Krauss, *Phys. Rev. B* **63** 073307 (2001).
- [4] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, A. Lemaître, J. M. Gérard, *Phys. Rev. B* **65**, 033313 (2001).
- [5] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel, J. M. Gérard, soumis à *Phys. Rev. Lett.* (2002).
- [6] Karplus and Porter, *Atoms and Molecules*, pag. 187 *et suiv*, Benjamin Cummings (1970).
- [7] J. M. Gérard, J. B. Genin, J. Lefebvre, J. M. Moison, N. Lebouche, F. Barthe, *J. Cryst. Growth* **150**, 351 (1995).



# Chapitre 8

## Conclusion

Les boîtes quantiques sont des systèmes très intéressants tant du point de vue de la physique fondamentale, que de leur application éventuelle en opto-électronique. La croissance auto-organisée de boîtes de semiconducteurs III-V a connu un très fort développement ces dernières années. Cependant, il manque encore, de nos jours, des techniques de caractérisation qui permettent d'en connaître les propriétés avec précision. En conséquence, les modèles théoriques ne disposent pas de renseignements précis sur les dimensions, la composition, le champ de contrainte des boîtes. Des modèles approximatifs pour le calcul des états énergétiques s'imposent, pour interpréter nombre d'expériences menées sur les boîtes.

Dans ce travail nous avons développé deux méthodes de calculs des états énergétiques dans les boîtes de In(Ga)As/GaAs. Les deux méthodes s'insèrent dans le cadre de la théorie de la masse effective à une seule bande, et elles ont été présentées dans le chapitre 2. La méthode, que l'on a appelée "mixte", se base sur la séparabilité des fonctions d'onde des états liés en ce qui concerne le mouvement dans le plan et dans la direction de croissance. En revanche, les états du continuum ont été étudiés grâce à un calcul numérique, par la méthode des différences finies.

La méthode "mixte" a d'abord été utilisée dans le chapitre 3 pour le calcul des états liés dans une boîte isolée. Nous avons ensuite calculé la force d'oscillateur et les règles de sélection pour les transitions intrabandes. Nous avons montré qu'il faut distinguer entre les excitations polarisées dans le plan et celles polarisées verticalement ; notre calcul montre que dans une boîte isolée l'absorption est très anisotrope. Du point de vue expérimental, des techniques de sonde locale, comme le STM, prétendent à l'observation directe des fonctions d'onde d'électron et de trou. Nous avons montré la modélisation de plusieurs types d'expériences réalisées à l'aide du STM par Johal *et al.* aux laboratoires NNL de Lecce, pour obtenir des "images" de différents états d'une boîte de InGaAs.

Pour plusieurs applications, il est nécessaire de disposer d'une grande concentration de boîtes quantiques. Pour l'obtenir il est possible de réaliser des échantillon à plusieurs couches de boîtes. Dans le chapitre 4 nous avons appliqué la



méthode “mixte” au calcul des états électroniques dans des structures de boîtes quantiques empilées. Nous avons étudié le couplage entre deux boîtes en fonction de l’épaisseur de la barrière qui les sépare. Nous nous sommes intéressés en particulier au régime de boîtes fortement couplées. Dans ce régime nous avons étudié les niveaux d’énergie en fonction du nombre de boîtes, jusqu’à la situation limite d’un super-réseau de boîtes. Nous avons ensuite calculé la force d’oscillateur et les règles de sélection pour les transitions intrabandes, montrant que l’anisotropie typique des boîtes uniques diminue considérablement dans le cas des boîtes fortement couplées.

Toute structure qui contient des boîtes quantiques ressent les effets de champ électrique : il peut être dû aux charges résiduelles qui se trouvent autour de la boîte, ou bien il peut être appliqué volontairement, par exemple si les boîtes se trouvent dans la partie intrinsèque d’une structure  $p - i - n$ . Dans le chapitre 5 nous avons étudié les effets du champ électrique sur des boîtes simples ou couplées verticalement. Nous avons d’abord supposé que la composition des boîtes est uniforme : nous avons étudié l’effet Stark sur les structures de boîtes fortement couplées, en ce qui concerne les niveaux d’énergie et le spectre d’absorption. Nous avons montré que les systèmes de boîtes couplées verticalement sont aussi polarisables que les puits quantiques, avec une propriété en plus : le confinement dans le plan. Ces structures se révèlent donc très prometteuses pour la réalisation de dispositifs. Pour interpréter des expériences effectués sur des structures  $p - i - n$  contenant des boîtes, nous avons introduit une non-uniformité dans la composition des boîtes. Nous avons montré que cela peut amener, dans certaines conditions, à une inversion du dipôle électron-trou dans la boîte.

Après avoir étudié les états liés dans les boîtes, dans le chapitre 6 nous nous sommes intéressés aux états du continuum. Grâce à la méthode numérique nous avons calculé la densité d’états du continuum de la couche de mouillage ainsi que de celui de la barrière. Nous avons également calculé la force d’oscillateur et le spectre d’absorption pour les transitions intrabandes. En revanche, le rôle du continuum dans le spectre d’absorption interbande a été étudié dans le chapitre 7. Ce travail a été mené pour étudier l’origine physique du fond continu, entre la partie du spectre due aux transitions liées et le seuil de la couche de mouillage, observé dans des expériences de micro-PL et de NSOM. Nous avons montré qu’il est dû aux transitions croisées entre états liés et états étendus d’électron et de trou. Ce calcul pourrait être ensuite utilisé pour déterminer le temps de décroissance de l’état excité pour des boîtes de tailles différentes, avec une extension différente en énergie du fond continu.

Nous désirons finalement souligner que le fond continu, observé dans les spectres interbandes, ne peut pas être expliqué tant que la boîte quantique est considérée comme un atome artificiel. De la même façon, en ce qui concerne les transitions intrabandes, le modèle “atome artificiel” n’est pas capable d’interpréter les expériences de magnéto-absorption, comme celles réalisées par Hameau *et al.* dans le Laboratoire de Physique de la Matière Condensée. Comme Olivier

Verzelen l'a montré dans le même travail, les électrons sont dans ce cas fortement couplés avec les phonons optiques. En conclusion, ces derniers résultats sur les spectres intrabandes, avec les nôtres sur les spectres interbandes, montrent que le modèle "atome artificiel" est trop simple pour décrire de façon adéquate les propriétés des boîtes quantiques.



# Annexe A

## Liste de publications

1. A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, G. Bastard, *Energy levels and far-infrared absorption of multi-stacked dots*, Physica E **11**, 41 (2001).
2. A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, H. Sakaki, G. Bastard, *Electronic structure, Stark effect and optical properties of multi-stacked dots*, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 1955 (2001).
3. A. Vasanelli, R. Ferreira, H. Sakaki, G. Bastard, *Stark effect and electro-optical properties of strongly stacked dots*, Solid State Comm. **118**, 459 (2001).
4. T. K. Johal, R. Rinaldi, A. Passaseo, R. Cingolani, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard, *Direct imaging of InGaAs quantum dots by Scanning Tunnelling Spectroscopy*, Nanoscale Spectroscopy and its applications to semiconductor research, Lecture Notes in Physics (Springer Verlag Heidelberg) (2002).
5. T. K. Johal, R. Rinaldi, A. Passaseo, R. Cingolani, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard, *Imaging of the electronic states of artificial atoms by scanning tunnelling spectroscopy*, Phys. Rev. B **66**, 075336 (2002).
6. A. Vasanelli, R. Ferreira, R. Cingolani, H. Sakaki, G. Bastard, *Electric field effects in stacked dots*, Phys. Stat. Sol. (a) **190**, 551 (2002).
7. M. De Giorgi, R. Rinaldi, T. Johal, G. Pagliara, A. Passaseo, M. De Vittorio, M. Lomascolo, R. Cingolani, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard, *Engineering the electronic structure and the optical properties of semiconductor quantum dots*, à paraître.



# Annexe B

## Communications en conférences

1. A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, G. Bastard, *Energy levels and far-infrared absorption of multi-stacked dots*, Atoms, molecules and quantum dots in laser fields : fundamental processes, Pisa (Italy), 12-16/06/2000.
2. A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, H. Sakaki, G. Bastard, *Electronic structure, Stark effect and optical properties of multi-stacked dots*, 25<sup>th</sup> International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS25), Osaka (Japan), 17-22/09/2000.
3. A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, H. Sakaki, G. Bastard, *Electronic structure, Stark effect and optical properties of multi-stacked dots*, International Symposium on Formation, Physics and Device Application of Quantum Dot Structures (QDS 2000), Sapporo (Japan), 10-14/09/2000.
4. T. K. Johal, R. Rinaldi, A. Passaseo, R. Cingolani, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard, *Direct imaging of InGaAs quantum dots by Scanning Tunnelling Spectroscopy*, 1<sup>st</sup> International Workshop on Nano-scale Spectroscopy and its Applications to Semiconductor Research, Trieste (Italy), 11-14/12/2000.
5. A. Vasanelli, R. Ferreira, R. Cingolani, H. Sakaki, G. Bastard, *Electric field effects in stacked dots*, Optics and Excitons in Confined Systems (OECS7), Montpellier (France), 3-7/09/2001.
6. A. Vasanelli, R. Ferreira, R. Cingolani, H. Sakaki, G. Bastard, *Electro-optical effects in single and multi-stacked dots*, International Symposium of Compound Semiconductors (ISCS 2001), Tokyo (Japan), 1-4/10/2001.