



HAL
open science

Nature du désordre et propriétés optiques des excitons dans les fils quantiques semiconducteurs : de la boîte au fil

Thierry Guillet

► **To cite this version:**

Thierry Guillet. Nature du désordre et propriétés optiques des excitons dans les fils quantiques semiconducteurs : de la boîte au fil. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002. Français. NNT : . tel-00006929

HAL Id: tel-00006929

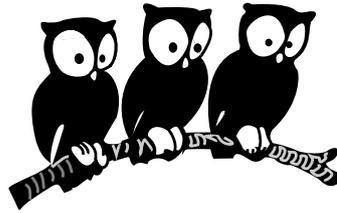
<https://theses.hal.science/tel-00006929>

Submitted on 21 Sep 2004

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.

GROUPE DE PHYSIQUE DES SOLIDES



THÈSE

Spécialité : Physique des Solides

présentée à l'Université Paris VI

pour obtenir le titre de
docteur de l'Université Paris VI
par

Thierry GUILLET

Nature du désordre et propriétés optiques des excitons dans les fils quantiques semiconducteurs : de la boîte au fil

Soutenue le 20 juin 2002 devant le jury composé de :

M.	Henri Mariette	Rapporteur
M.	Vincenzo Savona	Rapporteur
M.	Benoît Deveaud-Plédran	Examineur
M.	Gérald Bastard	Examineur
M.	Claude Aslangul	Examineur
Mme.	Valia Voliotis	Co-directrice de thèse
M.	Roger Grousson	Directeur de thèse

Un grand Merci

À Valia et Roger, duo indissociable, pour m'avoir accueilli dans leur cercle, pour la complicité qui s'est rapidement instaurée dans notre petit groupe, pour la confiance et la grande liberté qu'ils m'ont accordée; merci pour la passion pour la Physique que nous avons partagée; et tout simplement pour le plaisir que j'ai éprouvé à travailler avec eux durant ces trois années. À Roger, plus particulièrement, pour sa générosité et son goût pour la belle optique. À Valia, pour sa joie communicative.

À Xue-Lun Wang, à qui cette thèse doit tant, et qui m'a impressionné par son grand savoir-faire dans cette alchimie que reste pour moi la croissance des échantillons; qui, avec Mutsuo Ogura, m'a guidé à travers l'univers japonais lors de mon séjour à Tsukuba, toujours disponible et attentif.

À Robson Ferreira, pour sa pédagogie et sa patience; pour m'avoir plus appris lors de nos nombreuses discussions que la lourde bibliographie qui clôt cette thèse; pour avoir pris le temps de se plonger dans nos résultats expérimentaux, puis de me guider dans mes interprétations théoriques.

À Monique, qui sait si bien démonter et remonter sous nos yeux ébahis tous les ressorts de l'horlogerie Coulombienne; dont j'ai aussi apprécié le franc-parler.

À Benoît Deveaud, pour avoir enduré d'interminables discussions lors de nos rencontres, de Tsukuba à Montpellier; et pour m'avoir permis de réaliser avec Jean-Daniel Ganière les expériences de luminescence résolue en temps à Lausanne.

À Michel Schott, avec qui discuter de Physique est toujours un plaisir; avec Claudette Lapersonne et Jeanne Berréhar, il nous a grand-ouvert les portes du monde merveilleux des polymères, où tout marche tellement mieux que dans l'ancien monde des semiconducteurs.

À l'équipe du quatrième étage, où la vie, rythmée par la capricieuse machine à café, est toujours agréable; à Catherine, Maria, Christophe, Frédéric, Philippe et Vincent; à Michel, toujours disponible et à l'écoute; à Dimitri aussi, artiste ès cryostats.

Aux deux Jérôme, toujours prêts à venir courir derrière un ballon; l'un pour ses discussions enflammées et sa profusion d'idées; l'autre, compagnon de route de ces trois années, pour nos franches rigolades. A François, à qui je confie le cœur serré la lourde tâche d'être aux petits soins pour l'expérience de microlum'. A Claire, à Benoît, qui vont peut-être prendre des vacances un de ces jours.

Aux membres du jury, et en particulier à mes rapporteurs, qui ne savaient pas à quoi ils s'engageaient lorsqu'ils ont accepté de relire cette (courte) thèse.

À tous ceux qui m'ont entouré durant ces trois années ...

Table des matières

Introduction	7
1 Présentation des fils quantiques	11
1.1 Zoologie	12
1.2 Les fils gravés en V : structure et croissance	15
1.3 Le confinement des porteurs dans le fil quantique	17
1.3.1 Structure de bandes des matériaux massifs	17
Approximation de la masse effective	17
Cas d'un alliage	18
1.3.2 Structure de bandes du fil en V	18
Approximation de la fonction enveloppe	18
Le confinement et le moment orbital des porteurs: le mélange de bandes	19
Approximation adiabatique	20
Simulation numérique	20
Retour à un modèle simple: le fil à barrières infinies	20
1.3.3 Densité d'états et masse effective des porteurs dans la direction libre	22
1.4 L'exciton	25
1.4.1 L'exciton purement 1D	25
En dimension D quelconque	25
En dimension $D = 1$	27
1.4.2 L'exciton quasi-1D	27
Potentiel coulombien effectif	28
Résolution exacte d'un hamiltonien effectif "naïf"	29
Corrections pour l'hamiltonien effectif réel	31
Couplage inter sous-bandes	31
Résultats numériques	31
Retour aux fils quantiques en V	36
L'exciton dans les fils de polymère 3BCMU	37
1.5 Les fils quantiques et la lumière	38
1.5.1 Spectre d'absorption	38
Absorption des porteurs libres	38
Absorption et polarisation de la lumière	39
Absorption des excitons et des états corrélés par l'interaction coulombienne	39
Mesure de l'absorption	40
1.5.2 Luminescence	41
1.5.3 Spectre d'excitation (PLE)	42

1.6	Conclusion	44
2	Dispositif expérimental	45
2.1	L'optique	47
2.1.1	Les sources laser et l'excitation	47
2.1.2	Le microscope: de l'élargisseur de faisceau à l'objectif	47
	Observation visuelle de l'échantillon	48
	Polarisation et discrimination de la luminescence	48
2.2	La spectroscopie	50
2.2.1	Spectres de luminescence: μ -PL	50
2.2.2	μ -PL résolue temporellement	50
2.2.3	Spectres d'excitation: μ -PLE	51
2.3	L'imagerie	52
2.3.1	Imagerie de la luminescence	52
	L'utilisation du spectromètre-imageur	52
	De l'importance des aberrations	53
	Vers l'imagerie en éclairage uniforme	53
2.3.2	Imagerie par balayage de l'excitation	54
2.3.3	Des spectres "typiques" aux conclusions générales	56
2.4	La cryogénie	57
3	Le désordre dans les fils quantiques	59
3.1	La caractérisation du désordre en imagerie	61
3.1.1	Fils quantiques de l'ancienne génération	61
	Analyse statistique de la carte et transformée de Fourier	61
3.1.2	Fils quantiques de la nouvelle génération	68
3.1.3	Conclusion	75
3.2	Progrès des techniques de croissance	77
3.2.1	L'attaque chimique du substrat après gravure	77
3.2.2	Nouvelle source d'arsenic	78
3.2.3	Alignement de la gravure sur la direction cristallographique $[01\bar{1}]$	78
3.3	Nature des états selon le type de désordre	82
3.3.1	Compétition avec l'interaction Coulombienne	82
3.3.2	Régimes 0D et 1D	82
3.3.3	Simulation du potentiel désordonné	83
	Modèle de boîtes simples	83
	Cas d'un potentiel aléatoire gaussien	83
3.3.4	A propos de la "répulsion de niveaux"	85
3.4	Signatures du désordre résiduel	90
3.4.1	Champs piézo-électriques internes	90
	Evaluation du champ piézo-électrique dans les fils en V	90
	Effet de la composante du champ piézo-électrique perpendiculaire à l'axe du fil	92
	Effet de la composante du champ piézo-électrique parallèle à l'axe du fil	92
	Mise en évidence de l'existence de ce champ dans certains échantillons de fils en V	95
3.4.2	Le désordre résiduel statique	96
	Rugosité des interfaces à l'échelle atomique	96

Le désordre d'alliage	97
Les impuretés	97
Simulation du désordre statique	98
3.4.3 Le désordre résiduel dynamique	98
Collisions Coulombiennes avec les impuretés	101
Collisions avec des charges	101
3.4.4 Signatures expérimentales	102
En imagerie	102
Luminescence à très faible puissance d'excitation	103
Influence d'un éclairage annexe par un laser Helium-Néon	104
3.4.5 A propos de la localisation d'Anderson dans les fils quantiques en V	106
3.4.6 Conclusion sur le désordre résiduel	107
3.5 Conclusion	109
4 Un exciton seul dans un fil quantique	111
4.1 Interaction d'échange et structure fine	113
4.1.1 Introduction	113
4.1.2 Interaction d'échange dans un fil quantique idéal	114
4.1.3 Structure fine des excitons dans les fils quantiques en régime 0D .	116
Résultats expérimentaux	116
L'interaction d'échange et les excitons localisés	118
Tentative de corrélation entre structure fine et propriétés de localisation	120
4.1.4 L'interaction d'échange dans les fils quantiques en régime 1D	125
4.1.5 Conclusion	125
4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température	129
4.2.1 Influence de la température sur les spectres de μ -PL	129
Fils quantiques en régime 0D	129
Fils quantiques en régime 1D	131
4.2.2 Présentation de l'interaction exciton-phonons	133
Cadre théorique et hypothèses	134
Hamiltonien d'interaction	135
Règle d'or de Fermi pour des excitons libres	136
Couplage piézo-électrique	137
Règle d'or de Fermi pour des excitons localisés	139
4.2.3 Elargissement homogène par interaction avec les phonons	139
Excitons libres - Fils quantiques en régime 1D	139
Excitons localisés - Fils quantiques en régime 0D	142
4.2.4 Les polarons	142
Excitons localisés - Fils quantiques en régime 0D	143
Excitons libres - Fils quantiques en régime 1D	150
4.2.5 Discussion	154
4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique	157
4.3.1 L'équilibre thermique local	157
Relaxation initiale de la paire photocréée	157
Queue haute énergie des spectres de luminescence	158
Temps de vie radiatif	162
4.3.2 L'équilibre thermique global	167

	Diffusion spatiale des porteurs	167
	Evolution en température du spectre de macro-luminescence . . .	167
	Spectres de PLE et dépendance en température du Stokes shift .	172
4.3.3	Conclusion	178
5	Des excitons en interaction dans un fil quantique	181
5.1	Aperçu des théories à N corps dans les fils quantiques	182
5.1.1	Le traitement à N corps de l'interaction Coulombienne	182
	L'exemple "simple" du gaz dense d'électrons	182
	Le gaz dense de paires électron-trou	183
	La limite diluée du gaz d'excitons	184
	La transition de Mott	184
5.1.2	La statistique des porteurs: liquide de Fermi ou de Tomonaga-Luttinger?	185
5.1.3	Les modèles théoriques dans les fils quantiques	185
	Le modèle de S. Benner et H. Haug	186
	Le modèle de D.W. Wang et S. Das Sarma	186
	Le modèle de M. Stopa	186
	Le modèle de C. Piermarocchi et F. Tassone	187
	Approche en terme d'excitons	187
5.1.4	En guise de conclusion	188
5.2	Les fils en régime 0D	189
5.2.1	Spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation	189
5.2.2	Le biexciton	191
5.2.3	Le fond continu: A propos du "plasma électrons-trous"	194
5.2.4	Les collisions de type effet Auger dans une boîte	195
5.3	Les fils en régime 1D	196
5.3.1	Le régime dilué	196
	Dans les îlots "typiques"	196
	Dans les îlots très étendus	198
5.3.2	Le régime intermédiaire	200
	Spectres de luminescence	200
	Diffusion des porteurs	202
5.3.3	Le régime dense	203
	Spectres de luminescence	203
	Dynamique temporelle	205
5.3.4	Comparaison avec les résultats expérimentaux antérieurs	207
5.3.5	Discussion	209
	Conclusion	213
	Références bibliographiques	215

Introduction

L'élaboration des premières couches minces semiconductrices, au début des années 1970, a ouvert le vaste champ de recherche, aussi bien fondamentale qu'appliquée, des hétérostructures semiconductrices. Les puits quantiques furent les premières structures réalisées. Elles se distinguent du matériau massif par leur caractère bi-dimensionnel (2D) et la quantification partielle des excitations électroniques induite par le confinement. De nombreux efforts ont ensuite été réalisés pour réduire la dimensionnalité des structures et obtenir des fils quantiques (1D) et des boîtes quantiques (0D). Les boîtes quantiques et les nanocristaux sont aujourd'hui très répandus et font l'objet de nombreux travaux. Les fils quantiques sont pour leur part moins "populaires", en particulier en raison des difficultés d'élaboration.

Ceux-ci présentent pourtant de nombreux attraits, liés aux spécificités de la physique des systèmes uni-dimensionnels, qui les différencient des structures de dimensions 2 et 3. La densité d'états des excitations électroniques y est singulière et se traduit par une plus grande interaction avec la lumière, i.e. une force d'oscillateur et des non-linéarités optiques accrues. Les processus de diffusion et de collision y sont fortement inhibés, limitant les processus de dissipation dans les composants opto-électroniques, et augmentant la cohérence des excitations. La symétrie réduite se traduit par une forte anisotropie des propriétés optiques. Les phénomènes de localisation prennent une importance particulière en présence de désordre. D'un point de vue fondamental, la description du système ne peut pas être simplement adaptée des modèles mis en œuvre en dimensions 2 et 3. Le phénomène de localisation d'Anderson et la description statistique en terme de liquide de Tomonaga-Luttinger sont entièrement spécifiques aux systèmes 1D, et leur mise en évidence expérimentale dans les hétérostructures semiconductrices est encore débattue à ce jour.

La conception d'hétérostructures réalisant un confinement quantique uni-dimensionnel des excitations électroniques repose sur l'élaboration d'objets dont la taille, dans deux directions, est inférieure à la dizaine de nanomètres. La fabrication de ces structures doit donc être particulièrement bien contrôlée, avec une précision de l'ordre de la monocouche atomique, et leurs propriétés physiques et optiques sont très sensibles à la qualité et l'homogénéité des processus de croissance. Au cours de cette thèse, nous avons étudié, dans le cadre d'une collaboration entamée en 1996, des fils quantiques semiconducteurs dits "en V", élaborés par Xue-Lun Wang et Mutsuo Ogura au Photonics Research Institute de Tsukuba (Japon). Nous devons souligner leur grande expertise en matière d'épitaxie, qui leur a permis d'améliorer de manière continue la qualité des structures fabriquées et de se placer parmi les meilleures équipes dans le domaine des fils quantiques semiconducteurs.

Les études antérieures, en particulier les travaux de thèse de Joël Bellessa, ont démontré que les inhomogénéités de taille et de composition se traduisent dans les fils quantiques par la localisation des excitations électroniques, et donc par une réduction de

la dimensionnalité du système : le fil quantique ne serait en fait qu'une collection de boîtes quantiques, c'est-à-dire une collection d'objets 0D ! Néanmoins, les progrès réalisés par X.L. Wang dans l'élaboration des fils quantiques lui ont permis de réduire de manière importante ces inhomogénéités, et de réaliser ainsi des fils quantiques dans lesquelles le désordre n'est plus de même nature et les excitations électroniques sont délocalisées. Cette thèse a eu pour double objectif, d'une part, de mettre en évidence le changement des propriétés de localisation entre ces deux générations de fils quantiques, et de les relier aux améliorations des propriétés structurales; et d'autre part de comparer les propriétés électroniques et optiques des fils quantiques de chaque génération, d'un point de vue expérimental comme théorique.

La compréhension des propriétés physiques des nanostructures nécessite de connaître le rôle de l'inhomogénéité, et plus généralement du désordre, dans ces systèmes. L'étude des propriétés macroscopiques, recueillies sur un échantillon entier, est souvent rendue difficile par la dispersion des résultats expérimentaux due aux fluctuations de taille et de composition sur l'échantillon, et appelée élargissement inhomogène. Ce type d'expériences ne donne pas accès à la nature du désordre, et n'en présente que des signatures indirectes. Les techniques d'étude locales sont alors particulièrement intéressantes car elles permettent de s'affranchir de l'élargissement inhomogène lorsque leur résolution spatiale est comparable avec les longueurs caractéristiques du désordre. Il est ainsi possible d'étudier les propriétés intrinsèques et locales des nanostructures, et leur distribution statistique. Leur dépendance spatiale peut être analysée, et fournir une image des propriétés de l'échantillon. Enfin, lorsque les échantillons forment une collection d'objets similaires, ces techniques permettent d'isoler l'un d'entre eux et de l'étudier individuellement. Cette thématique "Nano-Objets Individuels" est actuellement en plein essor. Dans l'étude des propriétés optiques de nanostructures, les deux techniques à sonde locale existantes sont fondées sur la microscopie, l'une en champ proche (Scanning near-field optical microscope – SNOM) et l'autre en champ lointain (micro-photoluminescence – μ -PL). L'essentiel des travaux présentés dans cette thèse sont le fruit de l'expérience de micro-photoluminescence à basse température développée au laboratoire, et des techniques d'imagerie associées que nous avons mises en place. Cette expérience est couplée aux techniques classiques de spectroscopie. L'imagerie en μ -PL des propriétés spectroscopiques locales des fils quantiques nous a permis de différencier la nature du désordre et les régimes de localisation dans les deux générations de fils quantiques, d'en mesurer les grandeurs caractéristiques et de comprendre avec X.L. Wang quelles en sont les origines structurales.

Les propriétés électroniques et optiques des fils quantiques dépendent de manière importante de la nature du désordre. Selon qu'ils sont localisés ou délocalisés, les excitons — les excitations électroniques élémentaires dans les semiconducteurs non dopés — interagissent en effet différemment entre eux et avec leur environnement. Nous avons étudié les propriétés des excitons en régime linéaire — lorsqu'ils sont peu nombreux et n'interagissent pas entre eux — et en régime non-linéaire — lorsque leurs interactions deviennent non négligeables — en nous attachant à identifier les caractéristiques communes et les différences entre les deux générations de fils quantiques. Dans le régime linéaire, nous nous sommes principalement intéressés, tant du point de vue expérimental que théorique, à la structure de spin de l'exciton, qui reflète la symétrie réduite de la géométrie des fils quantiques; à l'interaction avec les phonons, qui est accrue en raison du fort confinement dans ces structures et donne lieu à une recombinaison radiative assistée par phonons acoustiques des excitons, interprétée en terme de polarons; et

aux propriétés thermodynamiques des excitons dans le fil, dont le temps de vie fini et l'inhibition de la relaxation à 1D freine l'établissement de l'équilibre thermique. L'étude du régime non-linéaire a permis de mettre en évidence un comportement des excitons à faible densité différent selon le régime de localisation. Dans le domaine des très fortes densités, après avoir présenté des expériences qui permettent de mieux comprendre la nature des excitations, et en particulier la stabilité de l'exciton, nous comparons les résultats obtenus avec les modèles théoriques récemment développés et les replaçons dans le débat actuel sur l'existence d'une transition de Mott et le mécanisme d'émission laser dans les fils quantiques.

Ce mémoire s'articule comme suit :

Le premier chapitre consiste en une présentation des différents types de fils quantiques, puis une description plus précise des fils étudiés, et un rappel de leurs propriétés les plus générales — confinement, interaction avec la lumière, influence de la dimensionnalité. Un accent particulier sera porté sur l'étude théorique de l'interaction Coulombienne — singulière à 1D — et de l'exciton dans les fils quantiques. Cette étude a été menée avec Monique Combescot au sein de l'équipe.

Le deuxième chapitre présente les techniques expérimentales que nous avons mises en œuvre. Les aspects optique et cryogénique de l'expérience de micro-photoluminescence et de ses développements en imagerie seront décrits, ainsi que les techniques de spectroscopie et leur adaptation à la microscopie.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude du désordre et de la localisation dans les deux générations de fils quantiques, en particulier sa mise en évidence en imagerie et sa modélisation.

Le quatrième chapitre porte sur l'étude des propriétés excitoniques en régime linéaire et sur la comparaison des deux générations de fils quantiques. Il est divisé en trois études indépendantes traitant de la structure fine de l'exciton, de son interaction avec les phonons et des équilibres thermiques dans le fil quantique. Les études théoriques associées, de même que la modélisation du désordre présentée au chapitre 2, ont été menées en collaboration avec Robson Ferreira, du Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (Ecole Normale Supérieure, Paris).

Le dernier chapitre s'intéresse au régime non-linéaire dans les fils quantiques. Les signatures des interactions exciton-exciton dépendent de manière importante du régime de localisation dans le domaine des faibles densités. Le régime des fortes densités est étudié dans les fils quantiques de la nouvelle génération.

Chapitre 1

Présentation des fils quantiques

Les fils quantiques semiconducteurs forment une classe d'hétérostructures dont les propriétés, au moins dans leurs caractéristiques les plus générales, reflètent la spécificité de leur dimensionnalité. Nous présenterons au cours de ce chapitre les grandes lignes de leur structure électronique et de leurs propriétés optiques, en adoptant pour chacune d'entre elles un point de vue général puis en se focalisant sur les fils quantiques en V que nous avons étudiés.

Dans une première section, nous présenterons un panorama large, s'étendant jusqu'aux semiconducteurs organiques, des nanostructures de dimension 1, c'est-à-dire dans lesquelles les excitations électroniques sont confinées dans deux directions et ne sont dispersives que dans la troisième. Dans le domaine des semiconducteurs, de nombreuses solutions ont été développées au cours des quinze dernières années obtenir des structures 1D en adaptant les technologies d'épitaxie, beaucoup plus adaptées à la fabrication de puits quantiques et autres structures 2D. La deuxième section sera consacrée plus spécifiquement aux fils quantiques sur substrat gravé en V que nous avons étudiés, et aux méthodes de croissance développées par Xue Lun Wang, du Photonics Research Institute de Tsukuba (Japon), pour les fabriquer.

La troisième section est consacrée à la présentation rapide du confinement des porteurs dans les deux directions perpendiculaires au fil, et à sa modélisation dans les matériaux semiconducteurs inorganiques. Les états confinés dans les fils quantiques en V seront obtenus par une simulation numérique permettant d'obtenir les fonctions d'onde spatiales mais aussi leurs composantes de spin, en particulier pour les trous de la bande de valence.

La quatrième section introduit l'exciton, c'est-à-dire l'état lié d'un électron et d'un trou dans la direction libre du fil, par l'interaction Coulombienne. Ce travail, réalisé avec Monique Combescot, est destiné à faire apparaître le caractère singulier de l'interaction Coulombienne à une dimension, contrairement aux systèmes de dimensions 0, 2 ou 3. Nous nous sommes attachés à traiter ce problème de manière analytique, en évitant l'approche variationnelle tout en tenant compte de l'épaisseur finie du fil quantique, qui atténue la singularité de l'exciton. Les résultats numériques sont obtenus de manière générale puis adaptés aux fils en V .

Enfin, dans la dernière section, nous présenterons l'interaction entre les excitations électroniques du fil quantique et la lumière, et la relierons avec les expériences optiques réalisées dans la pratique: spectres d'absorption, de luminescence et d'excitation de la luminescence.

1.1 Zoologie

L'étude des propriétés électroniques de nanostructures de dimension 1 constitue un champ vaste et très diversifié où cohabitent plusieurs domaines de la physique. Les différentes études se divisent en effet en deux grandes classes : l'optique et le transport. De plus, en dehors des hétérostructures semiconductrices qui sont l'objet de cette thèse, les structures étudiées sont très variées : les propriétés de transport des nanotubes de carbone sont l'objet d'intenses recherches, alors que l'étude de leurs propriétés optiques ne fait que débiter; le transport sur les molécules d'ADN en est lui à ses débuts; de nombreux matériaux organiques ont enfin été développés, polymères, agrégats, molécules isolées, étudiés du point de vue chimique, optique et en transport.

Un bon exemple en est le polydiacétylène BCMU développé par C. Lapersonne et M. Schott au sein du laboratoire. C'est une molécule polymère en matrice cristalline dont les propriétés optiques semblent particulièrement prometteuses et seront évoquées dans ce mémoire.

A l'intérieur du domaine des semiconducteurs, de nombreuses solutions ont été développées pour confiner les porteurs suivant deux directions par l'utilisation de deux matériaux de gaps différents, la barrière et le puits, et ainsi obtenir une structure 1D. Elles ont pour point commun d'utiliser les techniques d'épitaxie, destinées à la croissance de puits quantiques, sur des substrats sur lesquels un motif artificiel (clivage, lithographie, ...) ou "naturel" (auto-organisation) introduit une direction préférentielle et modifie le processus de croissance :

- Les fils gravés : L'une des premières méthodes retenue a été la gravure d'un échantillon comportant un puits quantique (Fig. 1.1.a), par attaque chimique sélective, pour obtenir une bande de faible largeur (entre 30 et 100 *nm*). Les fils ainsi obtenus sont donc larges et peu confinants, et les différentes sous-bandes sont peu séparées énergétiquement [1, 2].
- Les super-réseaux latéraux : Une autre méthode envisagée initialement a été la croissance sur des surfaces vicinales, légèrement désorientées par rapport à la direction cristallographique. En favorisant un processus de croissance au cours duquel le matériau puits s'accumule au bord des marches présentes sur la surface vicinale, on obtient des fils quantiques en chacun de ces bords de marches [3, 4]. Des processus de croissance similaires peuvent être obtenus sur des surfaces non vicinales où un réseau de marches a été imprimé sur le substrat [5] (Fig. 1.1.b).
- Les fils en T : ces structures sont obtenues par croissance d'un puits quantique, qui est clivé perpendiculairement au puits. La croissance d'un nouveau puits quantique est alors reprise sur la face clivée, donnant naissance au T [6, 7] (Fig. 1.1.c). Les porteurs se confinent à l'intersection des deux puits, qui constitue donc le fil quantique.
- Les fils auto-organisés : lorsque le désaccord de paramètre de maille entre le substrat et le matériau épitaxié est important, les contraintes sont importantes et la croissance ne se déroule pas de manière planaire. Les modes de croissance du type Stranski-Krastanov donnent généralement lieu à des boîtes quantiques, mais en préparant le substrat et en changeant les conditions de croissance il est possible d'obtenir des boîtes très anisotropes analogues à des fils quantiques [8] (Fig. 1.1.d).
- Les fils en Zig-Zag : ils sont obtenus par croissance d'un puits quantique sur la surface (311) du GaAs, dont la reconstruction induit la formation de zones plus

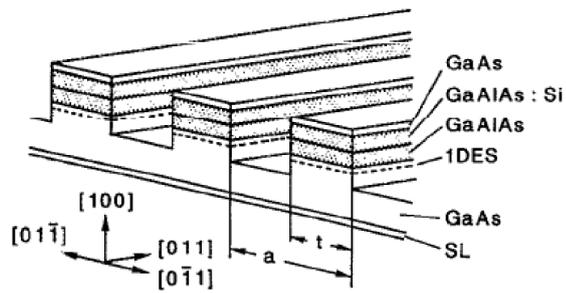
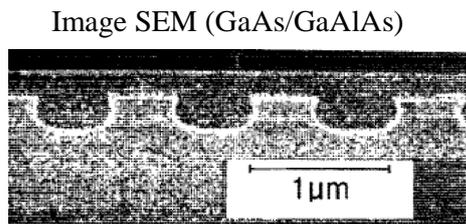
épaisses en forme de zig-zag [9]. Ces structures comportent donc un fil quantique “brisé”, non rectiligne, ainsi que des points quantiques à chaque “coin” du zig-zag. Ces deux types d’objets émettent de la luminescence à des longueurs d’onde différentes, ce qui permet leur caractérisation mais aussi la réalisation d’expériences de diffusion [10].

- Les fils gravés en V : pour réaliser ces structures le substrat est préalablement gravé de sillons en forme de V [11, 12]. La croissance d’un puits quantique sur ce substrat gravé génère un film dont l’épaisseur n’est pas constante, et est plus importante au fond du V, ce qui donne lieu au confinement des porteurs dans cette zone.

L’intégralité de ce travail de thèse a été réalisé sur ce dernier type d’échantillons, dont nous allons donc décrire la croissance et la structure de manière plus approfondie. Les fils en T et les fils en V sont ceux pour lesquels le confinement est le plus fort tout en conservant des hétéro-interfaces bien maîtrisées.

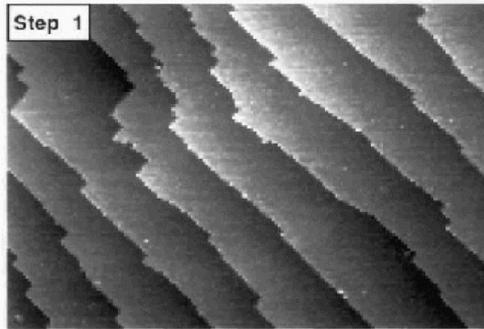
1.1 Zoologie

a) Les fils gravés

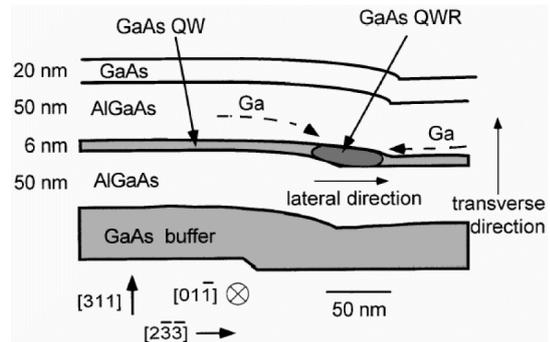


b) Les fils sur surfaces vicinales

Image RHEED d'une surface (CdTe/CdMnTe)

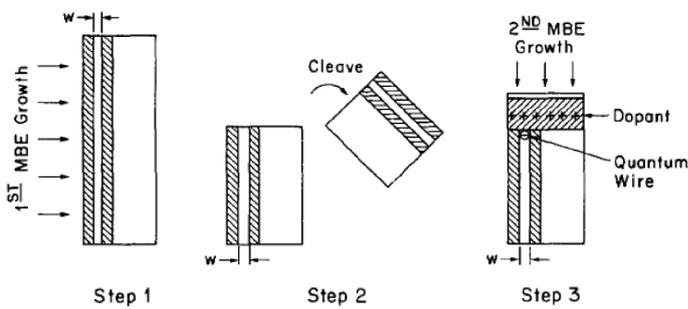


Mode de croissance



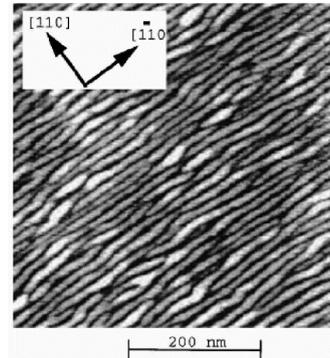
c) Les fils en T

Mode de fabrication



d) Les fils auto-organisés

Image AFM, InAs/InAlAs sur InP



e) Les fils en Z

Images par cathodoluminescence à l'énergie des transitions des fils et des boîtes

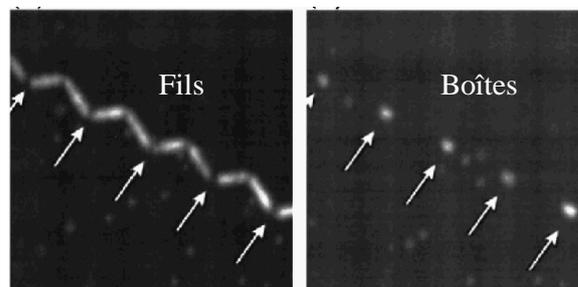


FIG. 1.1 – Les différents types de fils quantiques semiconducteurs (D'après les articles suivants: a) [1], b) [4, 5], c) [6], d) [8], e) [9])

1.2 Les fils gravés en V : structure et croissance

Les fils quantiques étudiés sont des hétérostructures non dopées de GaAs et d'alliage GaAlAs. La différence de gaps entre les deux matériaux, environ 600 meV , permet de confiner les porteurs, électrons et trous, dans le matériau de plus faible gap, le GaAs. Ils sont fabriqués par Xue Lun Wang, dans l'équipe *Quantum Nanostructures* de Mutsuo Ogura, au Photonics Research Institute de Tsukuba¹, et sont étudiés au GPS dans le cadre d'une collaboration débutée en 1996.

La croissance de ces fils se déroule de la façon suivante : des sillons en forme de V sont gravés sur un substrat de GaAs (100) par photo-lithographie. Ils sont espacés de $5 \mu\text{m}$ et profonds d'environ $1 \mu\text{m}$. La croissance est alors réalisée par une technique de dépôt en phase vapeur de composés organo-métalliques (MOCVD) [13, 14, 15] : tout d'abord une couche-tampon de GaAs, puis une barrière de $\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$, un puits de GaAs et une nouvelle barrière de $\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$ (Fig. 1.2). Pour les mesures d'optique, l'échantillon subit ensuite une attaque chimique destinée à supprimer les puits GaAs sur les faces (100) et (111), de telle sorte que l'essentiel de la luminescence émise par l'échantillon provient des fils quantiques.

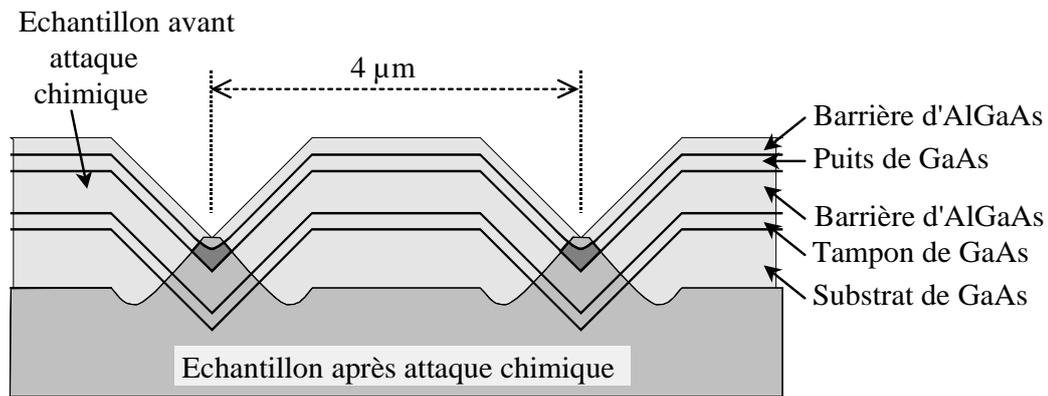


FIG. 1.2 – Croissance des échantillons

Une image de l'échantillon obtenue par microscope électronique en transmission haute résolution (HRTEM) est présentée sur la figure 1.3. Cette technique donne accès à la composition chimique, avec une résolution quasiment atomique, sur une coupe de l'échantillon. L'épaisseur du film GaAs est plus épaisse au fond du V (5 nm dans les fils que nous avons étudiés). Les porteurs, confinés par le matériau barrière dans la direction de croissance z , le sont aussi dans la direction latérale y car leur énergie de confinement est plus faible dans la zone plus épaisse au fond du V (cf Sec. 1.3.2). Les facettes cristallographiques, visibles sur l'image 1.3.b, attestent de la grande qualité de la croissance. Enfin, en raison des vitesses de migration légèrement différentes des atomes de Ga et Al sur les flans du V, un puits quantique vertical se forme au centre du V, dans lequel la concentration d'Al est réduite à 0,34. Ce puits quantique est visible sur l'image TEM, sous la forme d'une bande verticale plus sombre centrée sur le V.

Le processus de croissance a été amélioré de manière continue au cours des dernières

1. Le Photonics Research Institute fait partie du National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST) et est installé à Tsukuba, au Japon. Le projet est financé par le programme CREST de la Japan Science and Technology Corporation (JST).

1.2 Les fils gravés en V : structure et croissance

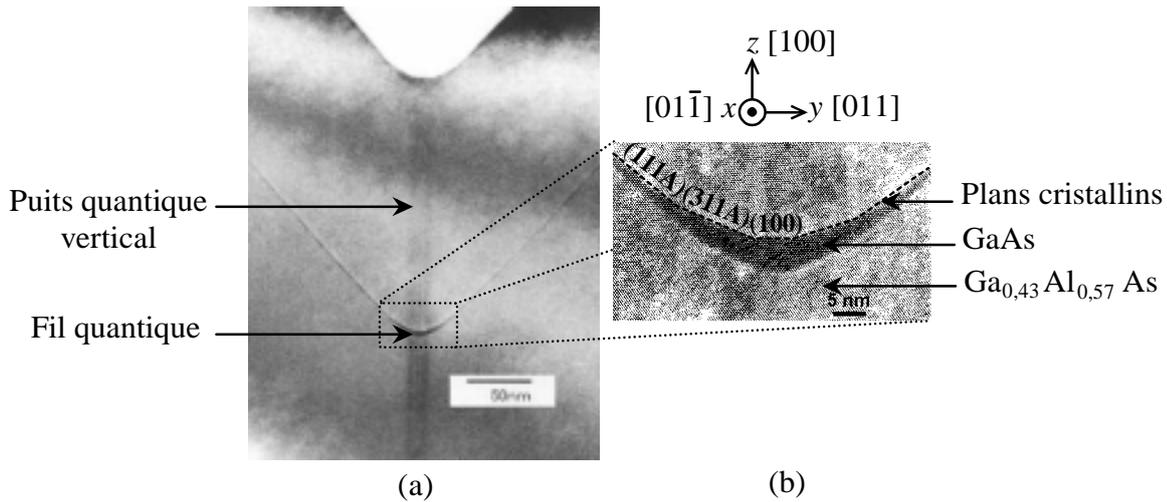


FIG. 1.3 – (a) Image par microscope électronique en transmission (TEM) et (b) TEM haute résolution d'un fil quantique en V

années par nos collaborateurs japonais. X.L. Wang utilise depuis 1996 la technique de croissance par modulation de flux [13]: la croissance est réalisée par cycles au cours desquels sont déposés du Ga pendant 1s, qui relaxe durant 1s, puis l'As pendant 1s, qui relaxe lui aussi durant 1s. Le contrôle et la calibration des flux de Ga et As permet de diminuer le nombre de défauts générés lors de la croissance. Nous présenterons les principaux progrès réalisés ainsi que les améliorations induites sur les propriétés optiques et électroniques que nous avons mises en évidence dans la section 3.2.

1.3 Le confinement des porteurs dans le fil quantique

1.3.1 Structure de bandes des matériaux massifs

Approximation de la masse effective

La compréhension des propriétés optiques et de diffusion des porteurs dans les échantillons étudiés nécessite la connaissance de la structure de bande des excitations électroniques [16, p 31] [17, p 157]. Les matériaux semiconducteurs utilisés sont à gap direct, c'est-à-dire que les états de plus basse énergie de sa bande de conduction et ceux de plus haute énergie de sa bande de valence sont situés au même point de la zone de Brillouin, en l'occurrence en son centre aussi appelé point Γ . Les transitions optiques sont verticales, c'est-à-dire qu'elles se font à vecteur d'onde des électrons constant, et ont donc lieu au voisinage du point Γ . Nous limiterons donc la description de la structure de bande des électrons au voisinage du point Γ .

Les fils quantiques étudiés sont composés d'arseniure de gallium GaAs, qui cristallise dans une structure blende de zinc : les atomes de Ga et ceux d'As forment deux sous-réseaux cubiques à faces centrées, décalés d'un quart de la grande diagonale du cube. Les atomes de Ga possèdent 3 électrons ($4s^2 4p^1$) sur leur couche externe, ceux d'As 5 ($4s^2 4p^3$). Ils s'hybrident pour former des liaisons tétraédriques entre un atome et ses quatre plus proches voisins, donnant lieu à des orbitales liantes et antiliantes (cf figure 1.4). Dans une première approche, ces orbitales peuvent servir de base à la description de la structure de bande des électrons par la méthode des liaisons fortes. La bande de valence est constituée des états liants, celle de conduction des états antiliants. Le couplage spin-orbite lève la dégénérescence des orbitales p .

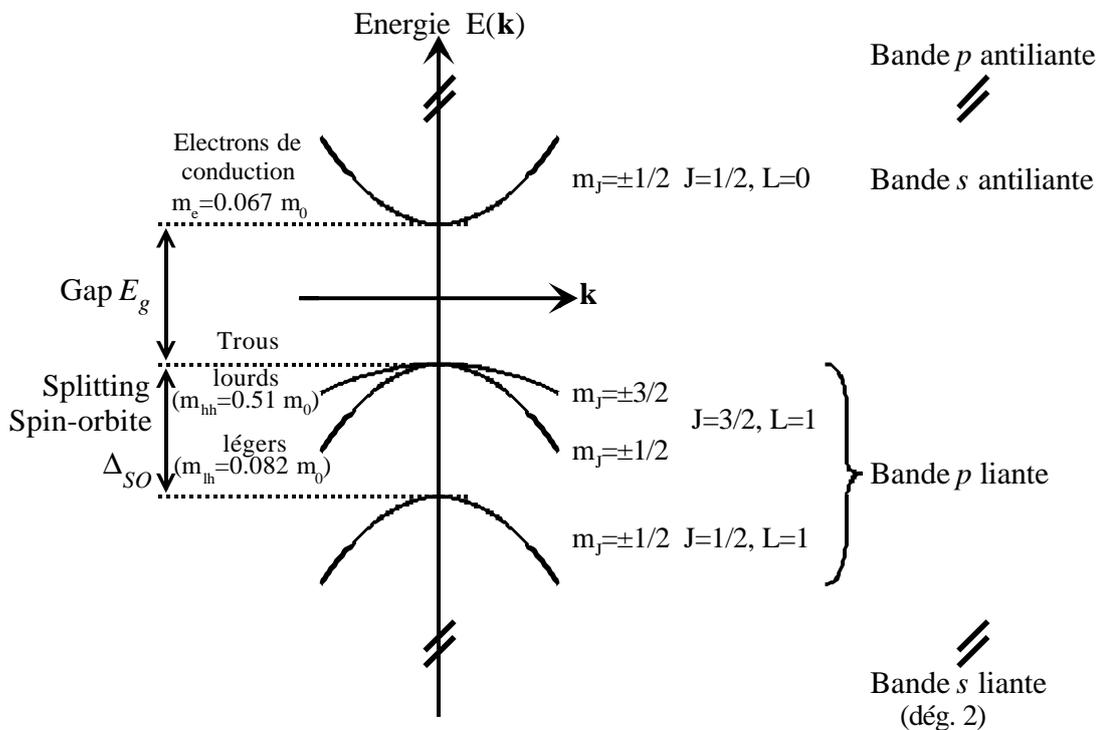


FIG. 1.4 – Structure de bande des électrons et des trous dans le GaAs massif, au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ dans l'approximation de la masse effective

1.3 Le confinement des porteurs dans le fil quantique

La structure de bande ainsi trouvée est parabolique et justifie l'approximation de la masse effective: les bandes sont décrites par leur énergie en $k = 0$ et leur courbure \hbar^2/m^* , où m^* est la masse effective des électrons dans la bande². Des méthodes analytiques et numériques plus poussées (pseudo-potentielle, $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$, ...) permettent d'affiner cette description et de l'étendre à toute la zone de Brillouin [16, p 35].

La définition d'une masse effective pour les trous est plus complexe pour deux raisons: d'une part leur dispersion en énergie présente autour du point Γ des courbures différentes selon les directions cristallographiques; d'autre part la description de leur moment orbital nécessite la prise en compte simultanée des bandes de trous lourds et légers et de leur couplage. Lorsque cela sera nécessaire, nous utiliserons donc pour les décrire l'hamiltonien de Luttinger [18, 19] avec les paramètres suivants pour le GaAs: $\gamma_1 = 6,85$, $\gamma_2 = 2,10$, $\gamma_3 = 2,90$ [20].

Cas d'un alliage

Les barrières délimitant les fils quantiques sont constituées d'alliage $\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$. Dans le réseau cristallin décrit précédemment, près de la moitié des atomes de gallium sont remplacés par des atomes d'aluminium, selon une distribution aléatoire. Les atomes d'aluminium possèdent les mêmes propriétés électroniques ($3s^23p^1$) que ceux de gallium, et ne modifient que quantitativement les propriétés décrites précédemment: le gap de $\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$ est supérieur de 620 meV à celui de GaAs, d'où son rôle de barrière (cf table 1.3.1).

	Confinement (meV)			Masse effective	
	Electron	Trou lourd	Electron + trou	Electron	Trou lourd
GaAs	1018	501	1519	0,067 m_0	0,5 m_0
$\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$	1432	708	2140	0,092 m_0	0,5 m_0

TAB. 1.1 – *Caractéristiques des matériaux massifs du puits et de la barrière, à $T = 2 K$.*

1.3.2 Structure de bandes du fil en V

Approximation de la fonction enveloppe

Dans les hétérostructures semiconductrices, les porteurs sont soumis à un potentiel variant sur deux échelles de longueur distinctes: l'échelle atomique (potentiel créé par les ions, de période le paramètre de la maille cristalline, soit $a_0 = 5,65 \text{ \AA}$ pour GaAs [21]) et l'échelle de longueur des hétérostructures (taille des fils). L'approximation de la fonction enveloppe [16, p 63] consiste à séparer ces deux contributions du potentiel: en un point de l'hétérostructure éloigné des interfaces entre matériaux (à l'échelle atomique), les électrons et les trous sont décrits par l'Hamiltonien du matériau massif présent en ce point. Leur fonction d'onde peut alors s'écrire sous la forme:

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_n F_n(\mathbf{r}) u_{n,\mathbf{k}=0}(\mathbf{r}), \quad (1.1)$$

où $u_{n,\mathbf{k}=0}(\mathbf{r})$ est la fonction de Bloch des électrons de la $n^{\text{ième}}$ bande dans le matériau massif et $F_n(\mathbf{r})$ la fonction enveloppe, solution de l'Hamiltonien effectif

2. Les masses effectives sont exprimées en fonction de la masse m_0 de l'électron libre.

$$H_n^{Env} = \frac{\mathbf{p}^2}{2m^*} + V_n. \quad (1.2)$$

Le potentiel V_n , lentement variable à l'échelle atomique, décrit la géométrie et la composition des matériaux de l'hétérostructure. Pour une structure simple, non dopée et sans champ électrique, il prend localement la valeur du gap dans le matériau. Ce modèle suppose également que cette décomposition est possible sur les seules fonctions de Bloch en $\mathbf{k} = 0$.

Dans le cas des fils quantiques, V_n dépend de y et de z , les directions confinées, mais pas de x , la direction libre :

$$H_n^{Env} = \frac{\mathbf{p}_x^2}{2m^*} + \left(\frac{\mathbf{p}_y^2}{2m^*} + \frac{\mathbf{p}_z^2}{2m^*} + V_n(y,z) \right) = \frac{\mathbf{p}_x^2}{2m^*} + H_{n,2D}^{Env}. \quad (1.3)$$

Les fonctions enveloppe propres sont donc libres suivant x et s'écrivent $F_n(\mathbf{r}) = f_n(y,z)e^{ik_x x}$, où les f_n sont les fonctions propres de l'hamiltonien effectif 2D $H_{n,2D}^{Env}$. Les énergies propres associées sont $\frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} + E_n^{Conf}$.

L'approximation de la fonction enveloppe est valable tant que le confinement est réellement quantique, c'est-à-dire qu'il donne lieu à un spectre discret d'états confinés (un puits très large est en effet plus proche du matériau massif), et tant que les deux échelles de longueur sont bien séparables (un puits trop fin sera mal décrit) [22].

Dans le cas des fils quantiques en V, leur forme ne permet pas de mener simplement et analytiquement le calcul des états confinés et de leurs énergies. Le potentiel V_n^{2D} prend en effet 3 valeurs différentes dans les trois domaines de la structure identifiés sur l'image TEM 1.3 : le puits, la barrière et le puits quantique vertical. En prenant pour origine des énergies la valeur du gap dans GaAs, il vaut 0 dans le fil en V, 323 meV dans le puits quantique vertical et 414 meV dans la barrière (Fig. 1.5).

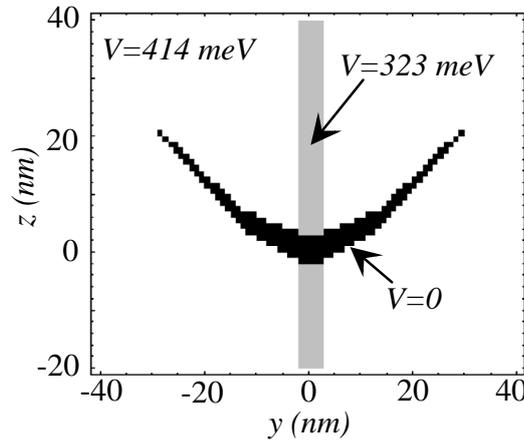


FIG. 1.5 – Potentiel effectif vu par les électrons dans l'approximation de la fonction enveloppe, dans le cas d'un fil quantique en V

Le confinement et le moment orbital des porteurs : le mélange de bandes

Si cette description est valide dans l'étude des états d'électrons dans la bande de conduction, dont les deux états de spin $m_s = \pm 1/2$ ne sont pas couplés, elle doit être

1.3 Le confinement des porteurs dans le fil quantique

adaptée pour calculer les états de trous de la bande de valence, et tenir compte du couplage entre trous lourds et trous légers [19, 23]. En ne considérant que les états de trous $J = 3/2$, qui sont dégénérés en $k = 0$ dans le matériau massif (fig 1.4), les fonctions d'onde des trous s'écrivent

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_{m_j=\pm 3/2, \pm 1/2} f_{m_j}(\mathbf{r}) u_v^{m_j}(\mathbf{r}).$$

L'hamiltonien $H_{v,2D}^{Env}$ n'est pas diagonal dans cette base, et les états propres sont mélangés en moment orbital m_j .

Deux méthodes peuvent être utilisées pour diagonaliser l'hamiltonien $H_{n,2D}^{Env}$: la première, l'approximation adiabatique, est partiellement analytique et sera présentée simplement; la deuxième, entièrement numérique, sera plus détaillée et ses résultats seront utilisés dans la suite du mémoire. Nous nous ramènerons enfin au cas simple d'un fil à barrières infinies, dont les solutions analytiques sont plus simples à utiliser.

Approximation adiabatique

Elle consiste à considérer que le fil quantique est un puits d'épaisseur variant lentement suivant y . Les électrons sont donc confinés suivant z , et leur énergie de confinement E dépend lentement — de manière adiabatique — de y . $E(y)$ peut être approximé par un potentiel harmonique au voisinage de $y = 0$, ce qui induit un confinement des électrons suivant y , dont l'énergie peut être à son tour calculée [11].

Les résultats de ce calcul sont similaires à ceux obtenus numériquement ci-après, et ne seront pas présentés. Leur fiabilité est bonne uniquement pour les premiers états confinés, les états excités étant mal décrits.

Simulation numérique

Cette méthode consiste à diagonaliser sur une base d'ondes planes l'hamiltonien 1.3 à deux dimensions, séparément pour les électrons et les trous [24]. Le couplage entre trous lourds et trous légers dans la bande de valence a été pris en compte. Les détails sur la technique de simulation figurent dans la thèse de J. Bellessa [23].

Les résultats présentés ci-après concernent un fil de 5 nm d'épaisseur, sur lequel nous avons effectué l'essentiel des expériences présentées. Les fonctions d'onde des deux premiers états de la bande de conduction sont représentés, ainsi que le troisième état de la bande de valence, sur la figure 1.6. Celui-ci présente en effet un mélange de bande important, et l'on peut remarquer que les composantes lourdes et légères, de poids comparables, ont spatialement des parités différentes : l'orthogonalité de la fonction d'onde h3 avec les états h1 et h2 impose en effet que la composante lourde ait deux noeuds spatialement, et soit similaire à e3, alors que les composantes légères de h1 et h2 sont très faibles et permettent à celle de h3 de n'avoir aucun noeud, et d'être similaire à e1. Les énergies des premiers états d'électron et de trou, et le mélange de bandes de ces derniers, sont répertoriés dans la table 1.3.2.

Retour à un modèle simple : le fil à barrières infinies

Dans la suite de ce mémoire, nous aurons souvent besoin de décrire des électrons et des trous confinés dans un fil quantique pour aborder d'autres problèmes. Il sera le plus souvent nécessaire de décrire uniquement la première sous-bande, plus rarement la deuxième.

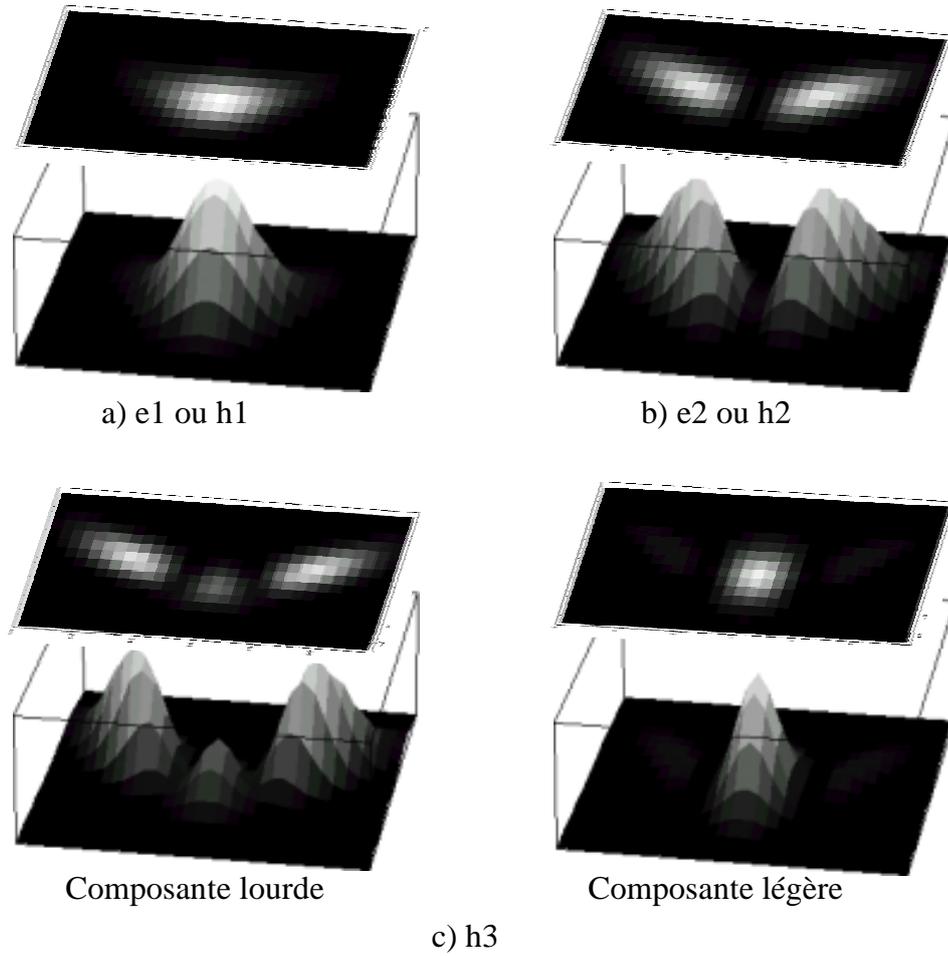


FIG. 1.6 – *Fonctions d'onde (a, b) des deux premiers états de la bande de conduction et (c) du troisième état de la bande de valence décomposé en ses composantes trou lourd et trou léger pour un fil quantique en V de 5 nm d'épaisseur. Les échelles verticales des composantes lourdes et légères sont identiques.*

	Electron		Trou	
	Energie (meV)	Energie (meV)	Trou lourd	Trou léger
1er état	112	33	96 %	4 %
2ème état	161	50	79 %	21 %
3ème état	188	58	62 %	38 %
4ème état	219	66	47 %	53 %

TAB. 1.2 – *Energies calculées pour les premiers niveaux confinés dans un fil quantique en V de 5 nm d'épaisseur (par rapport au bas de bande du GaAs massif)*

1.3 Le confinement des porteurs dans le fil quantique

Seules les fonctions d'onde des premiers états confinés et la différence d'énergie entre les premières sous-bandes seront alors nécessaires. Il est donc intéressant de décrire ces états dans un modèle très simplifié, qui contient déjà leurs propriétés physiques essentielles.

Le modèle de fil quantique le plus simple est celui du **fil cylindrique à barrières infinies**. Le potentiel effectif V_n^{2D} est dans ce cas infini pour $r > R$, où R est le rayon du fil, et vaut 0 pour $r < R$. Les états propres sont caractérisés par deux nombres quantiques $n = 1, 2, 3, \dots$ et $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ [25]. Leurs fonctions d'onde s'écrivent en coordonnées polaires³

$$f_{n,m}^{cyl}(r, \theta) = \begin{cases} \frac{J_m(z_m^{(n)} r/R) e^{im\theta}}{\sqrt{\pi} R J_{m+1}(z_m^{(n)})} & \text{pour } r < R \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (1.4)$$

et leur énergie vaut $E_{n,m}^{cyl} = z_m^{(n)} \hbar^2 / (2m^* R^2)$, où m^* est la masse effective des porteurs. Les premiers états confinés sont donc ($n = 1, m = 0$) d'énergie rapportée à $\hbar^2 / (2m^* R^2)$, $z_0^{(1)} \approx 2,40$; ($n = 1, m = \pm 1$) d'énergie $z_1^{(1)} \approx 3,83$; ($n = 1, m = \pm 2$) d'énergie $z_2^{(1)} \approx 5,14$; ($n = 2, m = 0$) d'énergie $z_0^{(2)} \approx 5,52$.

Un autre modèle simple et analytique, le **fil quantique à section rectangulaire et barrières infinies**, permet de rendre compte de l'anisotropie du fil. De la même manière, le potentiel effectif est dans ce modèle infini en dehors d'un rectangle de côtés L_y et L_z centré sur l'origine, et nul à l'intérieur. Les états propres sont caractérisés par deux nombres quantiques $n_y = 1, 2, \dots$ et $n_z = 1, 2, \dots$. Leurs fonctions d'onde s'écrivent

$$f_{n_y, n_z}^{rect}(y, z) = \begin{cases} \sqrt{\frac{2}{L_y}} \cos\left(\frac{\pi y}{L_y}\right) \sqrt{\frac{2}{L_z}} \cos\left(\frac{\pi z}{L_z}\right) & \text{pour } |y| < L_y/2 \text{ et } |z| < L_z/2 \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (1.5)$$

et leur énergie vaut $E_{n_y, n_z}^{rect} = n_y^2 \hbar^2 \pi^2 / (2m^* L_y^2) + n_z^2 \hbar^2 \pi^2 / (2m^* L_z^2)$, où m^* est la masse effective des porteurs.

Lorsqu'une description simple de l'état fondamental du potentiel de confinement des porteurs sera nécessaire, nous utiliserons celui d'un fil rectangulaire de dimensions $L_y = 15,6 \text{ nm}$ et $L_z = 7,6 \text{ nm}$, de fonction d'onde relativement similaire à celle trouvée par la simulation numérique (pour l'état fondamental uniquement). Comme le montre la figure 1.7, la fonction d'onde de l'état fondamental de l'électron ou du trou dans le premier état confiné, calculées numériquement au paragraphe précédent, est en effet bien reproduite par celle obtenue dans ce fil rectangulaire à barrières infinies.

1.3.3 Densité d'états et masse effective des porteurs dans la direction libre

L'effet le plus important de la dimensionnalité du système, dont vont découler de nombreuses propriétés, est la singularité de la densité d'états des excitations dans la direction du fil. Les électrons et les trous sont libres suivant l'axe du fil dans la description que nous avons adoptée jusqu'à présent. Leurs états propres sont donc des ondes planes de vecteur d'onde k_x , et la contribution correspondante à l'énergie cinétique est $\hbar^2 k_x^2 / 2m^*$. Ils sont quantifiés en $k_x = n_x 2\pi / L_Q$ où L_Q est la longueur de quantification et $n_x = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \pm L_Q / 2a_0$. La densité d'états correspondante, constante dans l'espace des k_x , est donc en énergie proportionnelle à $1/\sqrt{E}$:

$$\rho(E) = \frac{L_Q}{2\pi \hbar} \sqrt{\frac{m^*}{2E}}$$

3. $z_m^{(n)}$ désigne le $n^{\text{ième}}$ zéro de la fonction de Bessel J_m .

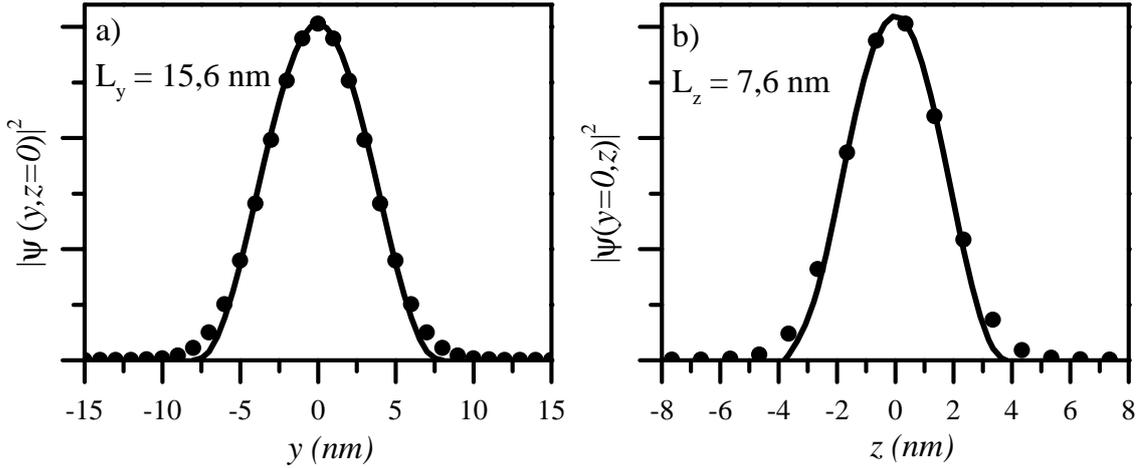


FIG. 1.7 – Coupes en $z = 0$ (a) et $y = 0$ (b) de la fonction d'onde de l'électron $e1$ calculée numériquement (points) et leur approximation par la fonction d'onde $f_{1,1}^{rect}(y,z) = 2/\sqrt{L_y L_z} \cos(\pi y/L_y) \times \cos(\pi z/L_z)$ d'un fil rectangulaire à barrières infinies, avec $L_y = 15,6$ nm et $L_z = 7,6$ nm.

Sa singularité en $E = 0$ est caractéristique de la dimension 1, les densités d'états de systèmes de dimensions 2 et 3, respectivement constante et proportionnelle à \sqrt{E} , étant régulières en $E = 0$ (Fig. 1.8). Le cas des systèmes non dispersifs, de "dimension 0", de densité d'états discrète, est lui à part. La singularité de la densité d'états 1D est cependant atténuée dans les systèmes réels, en particulier par la localisation et les corrélations coulombiennes dans le cas des fils quantiques que nous étudions. Notons cependant qu'au sein de l'équipe François Dubin et al. a mis en évidence une telle densité d'états, pour la première fois dans un système semiconducteur, dans les molécules de polymère conjugué 3BCMU en étudiant en μ -PL la forme des répliques vibroniques du spectre de luminescence d'une molécule unique [26].

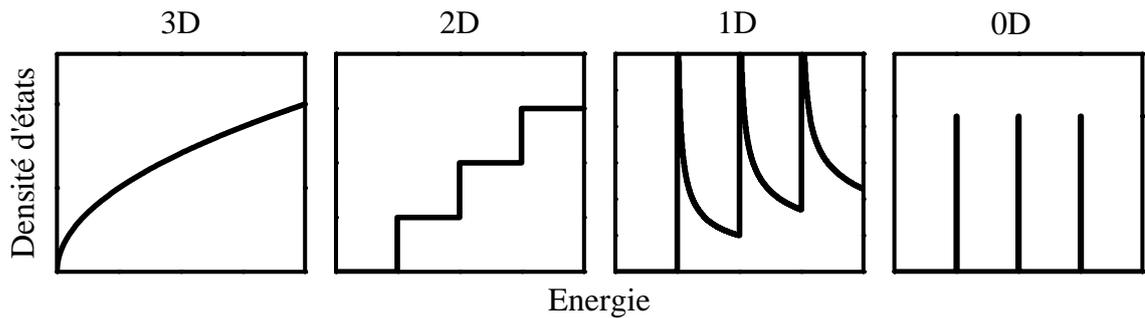


FIG. 1.8 – Densité d'états en fonction de la dimension du système.

Le paramètre important de la dispersion de l'énergie cinétique des porteurs dans la direction libre est leur masse effective. La masse effective des électrons est bien sûr $m_e^* = 0,067 m_0$. La détermination de la masse effective des trous est plus complexe. Dans le cas des puits quantiques [16, p 141], les états propres de trous en $k=0$ sont purement lourds ou légers, et leur masse effective est différente de celle obtenue dans le matériau massif (m_0/γ_1). Dans le plan du puits, elle est donnée en fonction des paramètres de

1.3 Le confinement des porteurs dans le fil quantique

Luttinger par $m_0/(\gamma_1+\gamma_2) \approx 0,11 m_0$ pour les trous lourds et $m_0/(\gamma_1-\gamma_2) \approx 0,21 m_0$ pour les trous légers. Notons que les dénominations de trous lourds et légers sont relatives aux masses effectives prises dans la direction z du confinement, soit $m_0/(\gamma_1 - 2\gamma_2) \approx 0,45 m_0$ pour les trous lourds et $m_0/(\gamma_1 + 2\gamma_2) \approx 0,08 m_0$ pour les trous légers. Dans le cas des fils quantiques, les états propres des trous dans les différentes sous-bandes sont mélangés de spin, et leur masse effective dépend donc de la sous-bande considérée. Il peut paraître raisonnable de prendre pour valeur de son inverse la moyenne des inverses des masses de trous lourd et léger, pondérés par les poids respectifs des composantes lourde et légère dans sa fonction d'onde. Les dispersions des porteurs peuvent être obtenues de manière plus rigoureuse dans un modèle tenant compte du confinement dans les deux directions y et z et de l'hamiltonien $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ à 3D, y compris dans la direction x du fil [27]. Néanmoins, en ce qui concerne la première sous-bande que nous étudierons préférentiellement, son caractère essentiellement "trou lourd", à 96% dans le cas d'un fil en V de 5 nm d'après nos simulations, justifie de prendre pour masse effective celle des trous lourds, soit $m_{h1}^* = 0,11 m_0$.

1.4 L'exciton

Les électrons et les trous confinés dans le fil quantique interagissent par l'interaction coulombienne. Un électron et un trou peuvent ainsi former un état lié de type hydrogénoïde, l'exciton. Dans le cas d'électrons et de trous non confinés (semiconducteur massif), l'énergie de liaison de cet état lié est analogue à celle de l'hydrogène et vaut $E_n = -R_X/n^2$ pour le $n^{\text{ième}}$ exciton, où R_X est le Rydberg effectif dans le matériau. Mais lorsque la dimension du système est réduite, c'est-à-dire dans les puits, les fils et les boîtes quantiques, la nature et l'énergie des excitons est modifiée, et dépend de manière importante de la dimensionnalité. Le cas des boîtes quantiques est d'ailleurs singulier car l'électron et le trou sont déjà liés par le confinement, et l'interaction coulombienne se contente de modifier l'énergie des états confinés.

Les excitons dans les fils quantiques présentent quant à eux la particularité de ne pas pouvoir se déduire d'un modèle purement 1D dans un fil sans épaisseur. Comme nous le verrons dans la première section, le modèle purement 1D ne prévoit pas d'état fondamental pair, à la différence d'un modèle purement 2D. L'explication intuitive en est la suivante: il est impossible pour un électron de passer par-dessus un trou à 1D, alors qu'il peut en faire le tour à 2D. Cela implique que la fonction d'onde de l'exciton doit être nulle en $x=0$ à 1D (x désigne le mouvement relatif), alors que ce n'est pas le cas à 2D. Dans la deuxième section nous étudierons donc l'exciton dans un fil d'épaisseur finie, et présenterons les résultats numériques obtenus dans ce modèle.

Nous nous sommes attachés dans cette étude à ne pas utiliser de technique variationnelle tout en gardant une forme analytique aux résultats aussi longtemps que possible. Les nombreuses études variationnelles présupposent en effet la forme de la fonction d'onde (une gaussienne en général) et ne sont valables que pour l'état fondamental de l'exciton [28]. Les travaux analytiques sont pour leur part réalisés en prenant pour potentiel Coulombien une forme approchée sans que soit estimée l'erreur ainsi réalisée, et masque en partie l'effet de l'anisotropie de la section du fil [29, 30, 31]. A l'opposé, les études numériques traitent le plus souvent sur un pied d'égalité le confinement des porteurs et l'interaction coulombienne, et masquent la physique de l'exciton [32].

1.4.1 L'exciton purement 1D

En dimension D quelconque

Dans un souci de généralité nous allons traiter l'exciton dans une dimension $D = 1, 2, 3$ quelconque. Dans le référentiel du mouvement relatif entre l'électron et le trou, l'hamiltonien du système s'écrit

$$H = \frac{p^2}{2\mu} - \frac{e^2}{r}, \quad (1.6)$$

où $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$ est la masse réduite du système. En utilisant l'expression du laplacien en coordonnées sphériques, on obtient pour un état propre d'énergie E :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{r^{D-1}} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^{D-1} \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{e^2}{r} \right) \psi_E^{(D)}(r) = E \psi_E^{(D)}(r). \quad (1.7)$$

La résolution de cette équation, réalisée par Landau et Lifschitz [33, §36] et reprise par H. Haug et S. Koch [34], présente des difficultés particulières pour $D = 1$, que nous avons soulevées récemment [35]. Nous en présenterons ici un rapide aperçu.

1.4 L'exciton

En suivant les notations de Landau, cette équation est réécrite avec un paramètre énergétique λ et la coordonnée radiale ρ , tous deux sans dimensions, en fonction du Rydberg effectif R_X et du rayon de Bohr a_X :

$$\varphi''_{\lambda,D} + \frac{D-1}{\rho} \varphi'_{\lambda,D} + \left(\frac{\lambda}{\rho} - \frac{1}{4} \right) \varphi_{\lambda,D} = 0. \quad (1.8)$$

avec

$$E = -\frac{R_X}{\lambda^2} \quad (1.9)$$

$$r = \frac{\lambda \rho a_X}{2} \quad (1.10)$$

et

$$R_X = \frac{\hbar^2}{2\mu a_X^2} = \frac{e^2}{2a_X} \quad (1.11)$$

$$a_X = \frac{\hbar^2}{\mu e^2} \quad (1.12)$$

Dans le GaAs, en tenant compte de la constante diélectrique relative $\epsilon_r = 12,85$ et en prenant pour masse effective des trous confinés supposés lourds $m_{h1} = 0,11 m_0$ (cf Sec. 1.3.2), ces grandeurs valent $R_X = \mu e^4 / (2(4\pi\epsilon_0\epsilon_r)^2 \hbar^2) \approx 3,4 \text{ meV}$, et $a_X = 4\pi\epsilon_0\epsilon_r \hbar^2 / (\mu e^2) \approx 160 \text{ \AA}$.⁴

Les états liés correspondent aux valeurs propres λ réelles, et les états de diffusion aux valeurs imaginaires. L'équation 1.8 s'écrit pour $\rho \rightarrow \infty$,

$$\varphi''_{\lambda,D} - \varphi_{\lambda,D}/4 = 0,$$

dont les solutions sont $e^{\pm\rho/2}$. Cela nous amène à poser :

$$\varphi_{\lambda,D}(\rho) = e^{-\rho/2} g_{\lambda,D}(\rho). \quad (1.13)$$

$g_{\lambda,D}(\rho)$ satisfait alors l'équation différentielle des fonctions hypergéométriques dégénérées :

$$z f'' + (c - z) f' - a f = 0,$$

avec $a = (D-1)/2 - \lambda$ et $c = D-1$. Les solutions de cette équation sont $F(a,c,z)$ et $x^{1-c} F(a-c+1, 2-c, z)$ [36], où

$$F(a,c,z) = 1 + \frac{a}{c} \frac{z}{1!} + \frac{a(a+1)}{c(c+1)} \frac{z^2}{2!} + \dots \quad (1.14)$$

Mais ces solutions sont pathologiques pour les valeurs entières négatives de c pour la première, et les valeurs positives pour la deuxième. Dans les cas qui nous intéressent, où c vaut 0,1,2 (i.e. $D = 1,2,3$), la deuxième fonction ne peut être utilisée. Un autre couple de solutions [38] est constitué des fonctions $F(a,c,z)$ et $U(a,c,z)$, U ayant pour développement en série

$$U(a,c,z) = z^{-a} G(a, a+1-c, -z)$$

4. Ces valeurs sont celles qui doivent être considérées lorsque l'on considère un fil quantique (cf Sec. 1.3.3). L'exciton du GaAs massif est en effet obtenu avec une masse effective du trou égale à $0,5 m_0$, pour lesquelles $R_X = 4,8 \text{ meV}$ et $a_X = 110 \text{ \AA}$.

avec

$$G(a, \gamma, z) = 1 + \frac{a\gamma}{1!z} + \frac{a(a+1)\gamma(\gamma+1)}{2!z^2} + \dots$$

Ce couple de solutions est valable dans les cas $D = 2, 3$ mais pour $D = 1$ les fonctions ne sont pas indépendantes. Néanmoins, l'équation 1.8 de départ présente une symétrie $(\lambda, \rho) \leftrightarrow (-\lambda, -\rho)$ que l'on peut exploiter. Si $e^{-\rho/2}U((D-1)/2 - \lambda, D-1, \rho)$ est solution, alors $e^{\rho/2}U((D-1)/2 + \lambda, D-1, -\rho)$ l'est aussi, et ces deux solutions sont indépendantes. Enfin, pour les états liés, la fonction d'onde doit tendre vers 0 pour $\rho \rightarrow \infty$, ce qui n'est le cas que pour la première solution que si $a = (D-1)/2 - \lambda$ est entier négatif, et n'est jamais le cas de la deuxième solution proposée. En conclusion, les fonctions d'onde correspondant à des états liés et solution de l'éq. 1.8 s'écrivent

$$\varphi_{\lambda, D}(\rho) = Ae^{-\rho/2}U((D-1)/2 - \lambda, D-1, \rho), \quad (1.15)$$

avec $\lambda = n + (D-1)/2$ où $n = 0, 1, 2, \dots$. On retrouve ainsi les fonctions d'onde des états liés hydrogénoïdes en dimension D et leurs énergies :

$$E_{n, D}^{Coul} = -\frac{R_X}{(n + (D-1)/2)^2} \quad (1.16)$$

En dimension $D = 1$

Si la résolution que nous venons de présenter est valable pour $D = 1, 2, 3$, le cas du fil quantique apparaît de nouveau comme pathologique. L'état fondamental ($n = 0$) de l'exciton pour $D = 1$ a en effet une énergie $-\infty$! Cela peut se voir en prenant la limite $\rho \rightarrow 0$ de l'éq. 1.8, $(D-1)\varphi'_\lambda + \lambda\varphi_\lambda = 0$, qui impose pour $D = 1$ et $\lambda \neq 0$ que la fonction d'onde s'annule en 0 et interdit les fonctions d'ondes paires, de type S. Notons que pour l'état fondamental la transformation 1.9 n'est pas valide pour $\lambda = 0$. La résolution directe de l'hamiltonien 1.7 aboutit cependant à la même conclusion : les seuls états de l'exciton solutions de cet hamiltonien sont impairs, et d'éventuels états pairs devraient avoir une dérivée seconde infinie en $\rho = 0$ [35]. Cela est dû à la singularité non intégrable du potentiel Coulombien à 1D, contrairement aux cas des dimensions supérieures.

Les états pairs de l'exciton ne peuvent donc être obtenus que comme par passage à la limite. Nous venons de voir qu'il est possible de considérer la limite $D \rightarrow 1^+$ du modèle de l'exciton en dimension D quelconque, même s'il est toujours délicat d'interpréter des résultats obtenus en dimension non entière [37]. Nous allons maintenant considérer la limite d'un fil quantique de diamètre $R \rightarrow 0$, plus accessible à notre compréhension.

1.4.2 L'exciton quasi-1D

La singularité de l'exciton 1D que nous venons de décrire est liée de manière intrinsèque à la limite 1D exacte. En effet, dans les fils quantiques réels, la taille finie des dimensions latérales du fil atténue la singularité en $1/r$ du potentiel et permet de retrouver un état excitonique fondamental de type S. En reprenant l'explication donnée en introduction de cette section, l'électron peut de nouveau "faire le tour" du trou en raison de la largeur finie non nulle du fil quantique. Nous étudierons l'influence de la taille du fil, mais aussi celle de sa forme et de son anisotropie, sur deux cas simples : le fil cylindrique et le fil rectangulaire, dont on fera varier le rapport d'aspect.

Potentiel coulombien effectif

Nous allons tenir compte de la largeur finie du fil en reprenant l'hamiltonien de l'éq. 1.3 pour un électron et un trou, et en les faisant interagir par l'interaction coulombienne. L'hamiltonien total du système s'écrit alors :

$$H = H_{e,2D}^{Env} + H_{h,2D}^{Env} + \frac{\mathbf{p}_{\mathbf{x}_e}^2}{2m_e^*} + \frac{\mathbf{p}_{\mathbf{x}_h}^2}{2m_h^*} - \frac{e^2}{\sqrt{(x_e - x_h)^2 + (\vec{\rho}_{e,2D} - \vec{\rho}_{h,2D})^2}} \quad (1.17)$$

$$= H_{e,2D}^{Env} + H_{h,2D}^{Env} + \frac{\mathbf{P}_X^2}{2m_X} + \frac{\mathbf{p}_x^2}{2\mu} - \frac{e^2}{\sqrt{x^2 + (\vec{\rho}_{e,2D} - \vec{\rho}_{h,2D})^2}}, \quad (1.18)$$

où X et x désignent respectivement le centre de masse et le mouvement relatif de l'exciton, et m_X et μ les masses totale et réduite de l'exciton. En reprenant les notations de la section précédente, les fonctions d'onde de l'électron et du trou dans les deux directions confinées seront notées f_{e,n_e} et f_{h,n_h} respectivement et leurs énergies E_{e,n_e} et E_{h,n_h} . Le mouvement du centre de masse, libre suivant X , commute avec les autres termes de l'hamiltonien. Les états propres de H peuvent alors être développés sous la forme

$$\psi_E(X, x, \vec{\rho}_e, \vec{\rho}_h) = e^{iK_X X} \sum_{n_e, n_h} \varphi_{E, n_e, n_h}(x) f_{e, n_e}(\vec{\rho}_e) f_{h, n_h}(\vec{\rho}_h),$$

$$\text{soit } |\psi_E\rangle = |K_X\rangle \otimes \sum_{n_e, n_h} |\varphi_{E, n_e, n_h}\rangle \otimes |f_{e, n_e}\rangle \otimes |f_{h, n_h}\rangle,$$

et l'équation aux valeurs propres $H|\psi_E\rangle = E|\psi_E\rangle$ s'écrit

$$0 = \sum_{n_e, n_h} \left(\frac{\hbar^2 K_X^2}{2m_X} + E_{e, n_e} + E_{h, n_h} + \frac{P_x^2}{2\mu} - \frac{e^2}{\sqrt{x^2 + (\vec{\rho}_e - \vec{\rho}_h)^2}} - E \right) |\varphi_{E, n_e, n_h}\rangle \otimes |f_{e, n_e}\rangle \otimes |f_{h, n_h}\rangle.$$

Il est alors judicieux de faire apparaître les éléments de matrice de l'interaction coulombienne entre les différentes sous-bandes :

$$V_{n_e, n_h, n'_e, n'_h} = \left\langle f_{h, n_h} \left| \otimes \left\langle f_{e, n_e} \left| \frac{-e^2}{\sqrt{x^2 + (\vec{\rho}_e - \vec{\rho}_h)^2}} \right| f_{e, n'_e} \right\rangle \otimes \left| f_{h, n'_h} \right\rangle \right. \quad (1.19)$$

$$V_{n_e, n_h, n'_e, n'_h}(x) = \int d\vec{\rho}_e d\vec{\rho}_h f_{h, n_h}^*(\vec{\rho}_h) f_{e, n_e}^*(\vec{\rho}_e) \frac{-e^2}{\sqrt{x^2 + (\vec{\rho}_e - \vec{\rho}_h)^2}} f_{e, n'_e}(\vec{\rho}_e) f_{h, n'_h}(\vec{\rho}_h).$$

Les éléments diagonaux V_{n_e, n_h, n_e, n_h} correspondent au potentiel coulombien effectif entre un électron de la sous-bande n_e et un trou de la sous-bande n_h . L'équation aux valeurs propres se simplifie alors en

$$\left(H_{n_e, n_h}^{Coul} - E_{n_e, n_h}^{Coul} \right) |\varphi_{E, n_e, n_h}\rangle + \sum_{(n'_e, n'_h) \neq (n_e, n_h)} V_{n_e, n_h, n'_e, n'_h} |\varphi_{E, n'_e, n'_h}\rangle = 0 \quad (1.20)$$

où H_{n_e, n_h}^{Coul} est l'hamiltonien effectif de l'interaction coulombienne dans la sous-bande (n_e, n_h) :

$$H_{n_e, n_h}^{Coul} = \frac{P_x^2}{2\mu} + V_{n_e, n_h, n_e, n_h}(x). \quad (1.21)$$

L'énergie propre totale est $E = \frac{\hbar^2 K_X^2}{2m_X} + E_{e, n_e} + E_{h, n_h} + E_{n_e, n_h}^{Coul}$.

Nous résoudrons donc dans un premier temps cet hamiltonien effectif, et traiterons le couplage inter sous-bandes de l'équation 1.20 en perturbation au premier ordre. Ceci est justifié si les éléments de matrice entre sous-bandes différentes, et a fortiori l'énergie de liaison de l'exciton, sont petits devant la différence d'énergie de confinement entre lesdites sous-bandes. En d'autres termes, l'hamiltonien 1.21 est unidimensionnel, ce qui signifie que l'on a factorisé la fonction d'onde du système en une partie latérale confinée et une partie axiale suivant x , correspondant à l'exciton. Cela n'est valide que si l'extension de l'exciton est supérieure à la dimension latérale du fil, c'est-à-dire si le rayon du fil est inférieur au rayon de Bohr excitonique : $R/a_X < 1$. Nous estimerons les limites sur R/a_X de la validité de notre modèle.

Résolution exacte d'un hamiltonien effectif "naïf"

Comme nous le verrons dans les développements numériques de ce modèle, le potentiel effectif peut être écrit :

$$V_{n_e, n_h, n_e, n_h}(x) = -\frac{e^2}{|x| + b(|x|)},$$

où $b(x)$ est une fonction qui dépend de la sous-bande considérée et décroît d'une valeur $b(0)$ finie à 0 pour $x \rightarrow \infty$. Nous allons dans un premier temps étudier le cas où $b(x)$ est prise égale à une constante b_{n_e, n_h}^* , ce qui nous permettra de mener les calculs de manière analytique. Nous tiendrons ensuite compte de manière perturbative de la forme réelle de $b(x)$ et justifierons cette approximation.

En reprenant l'étude de la section 1.4.1 en substituant le potentiel $-e^2/|x|$ par $-e^2/(|x| + b_{n_e, n_h}^*)$, l'équation différentielle 1.8 régissant la fonction d'onde de l'exciton devient

$$\varphi_\lambda'' + \left(\frac{\lambda}{\rho + \beta_\lambda} - \frac{1}{4} \right) \varphi_\lambda = 0 \text{ pour } \rho > 0 \quad (1.22)$$

$$\varphi_\lambda'' + \left(-\frac{\lambda}{\rho - \beta_\lambda} - \frac{1}{4} \right) \varphi_\lambda = 0 \text{ pour } \rho < 0. \quad (1.23)$$

La constante b_{n_e, n_h}^* a été rendue sans dimension en posant $\beta_\lambda^* = 2b_{n_e, n_h}^*/(\lambda a_X)$, qui dépend de λ par construction. Les solutions de ce système sont :

$$\varphi_\lambda(\rho > 0) = Ae^{-(\rho + \beta_\lambda^*)/2} U(-\lambda, 0, \rho + \beta_\lambda^*) \quad (1.24)$$

$$\varphi_\lambda(\rho < 0) = Be^{-(\rho + \beta_\lambda^*)/2} U(-\lambda, 0, -\rho + \beta_\lambda^*). \quad (1.25)$$

Les valeurs propres λ sont imposées par la continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée en $\rho = 0$, qui se traduit par l'annulation de $\varphi_\lambda(0)$ (fonctions d'onde impaires) ou de sa dérivée première $\varphi_\lambda'(0)$ (fonctions d'onde paires, absentes du modèle purement 1D).

La résolution de ces dernières équations, pour un potentiel effectif de paramètre b^* donné, fournit le paramètre λ et donc les énergies et fonctions d'onde des états excitoniques associés (Fig. 1.9).

Le paramètre b^* est une fonction croissante des dimensions latérales du fil quantique, comme nous le verrons dans l'étude numérique. Les petites valeurs de b^* correspondent donc aux fils minces devant le rayon de Bohr 3D a_X , pour lesquels nous retrouverons la différence de comportement asymptotique entre les états pairs et impairs en x décrite au paragraphe précédent. L'état fondamental, pair, voit son énergie tendre vers $-\infty$. L'énergie des autres états pairs et impairs tend vers $-R_X/n^2$ avec n entier. Nous retrouvons ici le résultat obtenu en prenant la limite $D \rightarrow 1^+$ de l'exciton en dimension quelconque.

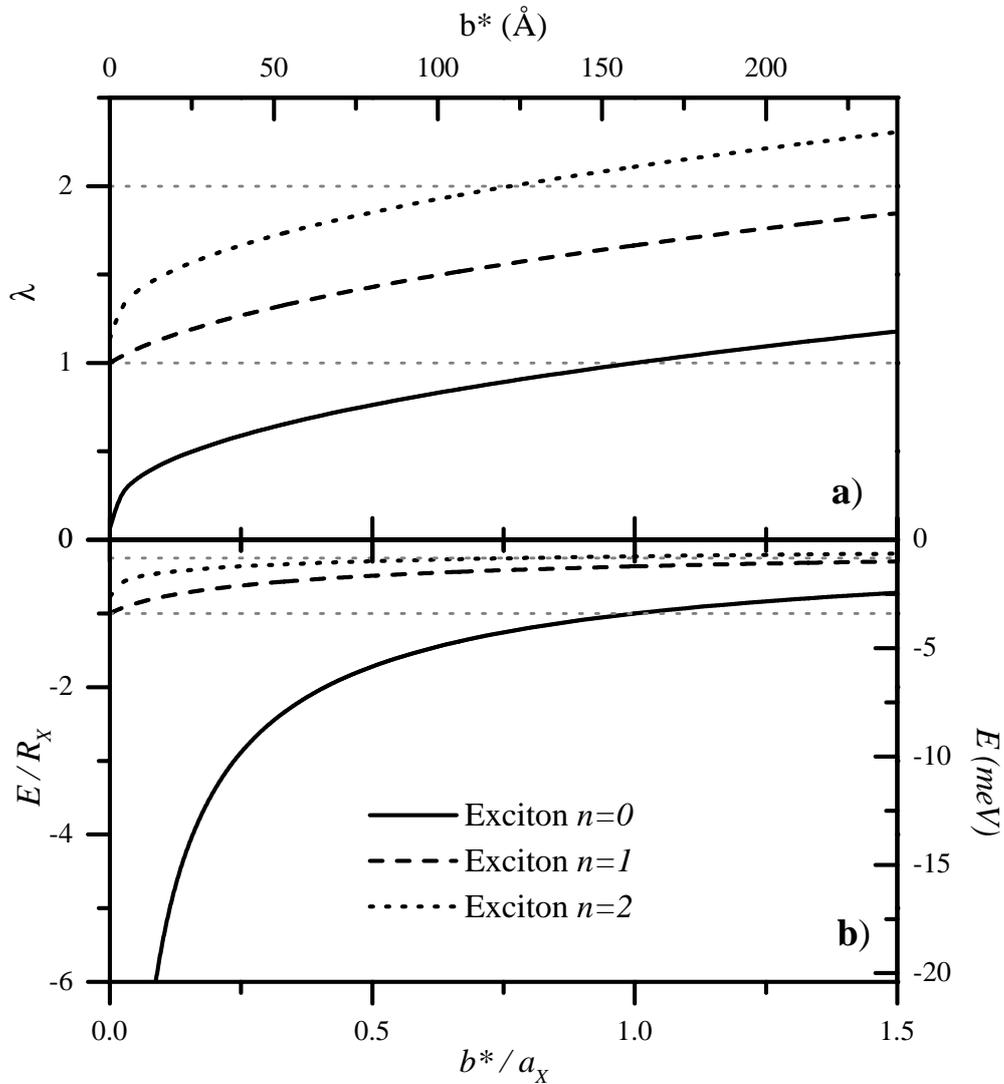


FIG. 1.9 – (a) Paramètre λ de l'énergie et (b) énergie de l'exciton en fonction du paramètre b^* d'élargissement du potentiel coulombien $-e^2/(|x| + b^*)$, dans la première sous-bande ($n_e = 1, n_h = 1$). Les droites tiretées fines représentent les deux premiers états de l'exciton 3D ($\lambda = 1, 2$).

Corrections pour l'hamiltonien effectif réel

Le potentiel naïf choisi au paragraphe précédent, s'il permet de mener à bien de manière contrôlée les calculs, n'est qu'une approximation du potentiel effectif $V_{n_e, n_h, n_e, n_h}(x)$ réel. L'énergie excitonique trouvée dépend de plus de manière cruciale du choix de b^* . Une simple interpolation du potentiel par $-e^2/(|x| + b^*)$ ne sera pas satisfaisante car b^* est l'élargissement moyen du potentiel vu par l'exciton, et dépend donc de l'extension de la fonction d'onde excitonique. Pour un paramètre b^* donné, nous pouvons cependant écrire la correction à l'état excitonique n_X en perturbation au premier ordre au potentiel naïf :

$$D_{n_X, n_e, n_h}(b^*) = \left\langle \varphi_{n_X, n_e, n_h} \left| V_{n_e, n_h, n_e, n_h}(x) - \frac{-e^2}{|x| + b^*} \right| \varphi_{n_X, n_e, n_h} \right\rangle.$$

Le paramètre b^* peut alors être choisi pour annuler cette correction au premier ordre de l'état fondamental de l'exciton dans la sous-bande : $D_{n_X=0, n_e, n_h}(b_{n_e, n_h}^*) = 0$, de telle sorte que l'approximation soit correcte à l'ordre 1 dans cette sous-bande. Cela peut s'apparenter à une technique variationnelle de calcul de l'exciton, mais ici la forme de la fonction d'onde n'est pas posée a priori. De plus, le paramètre b_{n_e, n_h}^* est déterminé par l'état fondamental uniquement, et les énergies des états excités de l'exciton sont calculées en fonction de lui et corrigées au premier ordre ensuite. Cela permet d'obtenir la fonction d'onde de l'état excité de manière beaucoup plus valide que par les techniques variationnelles, qui sont plus adaptées au seul calcul de l'état fondamental.

Couplage inter sous-bandes

Le couplage inter sous-bandes (Eq. 1.20) est une perturbation au second ordre à l'hamiltonien effectif. La correction en énergie associée s'écrit donc :

$$E_{n_X, n_e, n_h}^{Coul(2)} = \sum_{n'_X, (n'_e, n'_h) \neq (n_e, n_h)} \frac{\left| \left\langle \varphi_{n_X, n_e, n_h} \left| V_{n_e, n_h, n'_e, n'_h}(x) \right| \varphi_{n'_X, n'_e, n'_h} \right\rangle \right|^2}{E_{n_X, n_e, n_h} - E_{n'_X, n'_e, n'_h}}.$$

Il est à noter que les intégrales $V_{n_e, n_h, n'_e, n'_h}(x)$ définies par l'éq. 1.19, et avec elles les éléments de matrice mis en jeu, sont soumises à des règles de sélection très strictes, en particulier dans les géométries simples que nous avons considérées. Dans le cas du fil cylindrique, les états confinés ont pour indices (n, m) (sec. 1.3.2, Eq. 1.4) et seuls les termes tels que $m'_e + m'_h = m_e + m_h$ sont non nuls. Si l'on considère en particulier l'exciton dans la sous-bande la plus basse ($n_e = n_h = 1, m_e = m_h = 0$), les premiers termes non nuls impliquent les sous-bandes ($n_e = n_h = 1, m_e = \pm 1, m_h = \mp 1$) et ($n_e = 1, n_h = 2, m_e = m_h = 0$)⁵. Dans le cas d'un fil rectangulaire, nous tiendrons compte du couplage entre les deux premières sous-bandes ($n_{e,y} = n_{h,y} = n_{e,z} = n_{h,z} = 1$) et ($n_{e,y} = 1, n_{h,y} = 2, n_{e,z} = n_{h,z} = 1$) (cf Eq. 1.5).

Résultats numériques

Deux géométries simples ont été considérées : la dépendance en la taille du fil, c'est-à-dire la dimension latérale des états confinés, a été étudiée dans le cas d'un fil cylindrique

5. On suppose ici $m_h > m_e$, c'est-à-dire une énergie de confinement plus faible pour les trous que pour les électrons dans la sous-bande $n = 2$.

1.4 L'exciton

de rayon R ; l'influence de la forme et de l'anisotropie des états confinés a été étudiée dans le cas d'un fil à section rectangulaire, de dimensions $L_y = \sqrt{\pi\eta}R$ et $L_z = \sqrt{\pi\eta^{-1}}R$, de même aire πR^2 que le fil cylindrique mais d'anisotropie $\eta = L_y/L_z$.

Dans chacun des cas, le potentiel effectif $V_{n'_e=n_e, n'_h=n_h}$ a été calculé numériquement dans la bande (n_e, n_h) , et approximé de manière parfaite par $-e^2/(|x| + b(|x|))$ avec

$$b(x) \approx \frac{b}{\frac{1+\frac{x}{b}}{1+x(\frac{1}{c}+\frac{b}{a})} + x\frac{b}{a}} \quad (1.26)$$

où les constantes a , b et c dépendent de la sous-bande considérée. Le potentiel ainsi approximé reproduit les deux premiers termes des développements limités en 0 et ∞ du potentiel calculé :

$$V_{n_e, n_h; n'_e, n'_h}(x \rightarrow 0) \approx -\frac{e^2}{b_{n_e, n_h; n'_e, n'_h}} \left(1 - \frac{x}{c_{n_e, n_h; n'_e, n'_h}} + O(x^2) \right) \quad (1.27)$$

$$V_{n_e, n_h; n'_e, n'_h}(x \rightarrow \infty) \approx -\frac{e^2}{x} \left[\delta_{n_e, n'_e} \delta_{n_h, n'_h} - \frac{a_{n_e, n_h; n'_e, n'_h}}{x^2} + O\left(\frac{1}{x^4}\right) \right] \quad (1.28)$$

Le potentiel calculé numériquement et son approximation sont représentés sur la figure 1.10. Il est à noter que le potentiel effectif ne dépend pas de la forme cylindrique ou rectangulaire, mais essentiellement de l'aire de la section du fil pour les faibles anisotropies ($0,5 < \eta < 2$). Les fils plus anisotropes se rapprochent progressivement d'une géométrie de type puits quantique et la singularité du potentiel en $x = 0$ y est davantage atténuée.

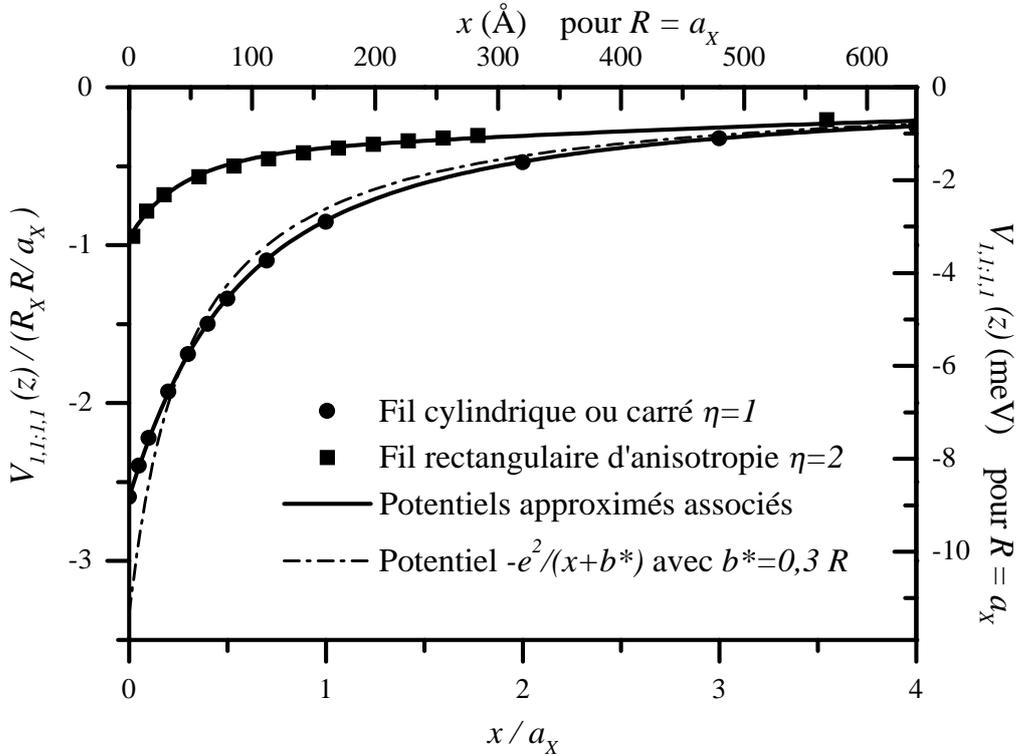


FIG. 1.10 – Potentiel effectif $V_{n'_e=n_e=1, n'_h=n_h=1}(x)$ et son approximation pour un fil cylindrique et des fils rectangulaires d'anisotropies $\eta = 1$ et 2.

Les niveaux excitoniques ont ensuite été calculés dans le cadre du modèle “naïf” décrit précédemment, en choisissant le paramètre d’élargissement du potentiel coulombien b^* tel que $D_{n_X=0,n_e,n_h}(b_{n_e,n_h}^*) = 0$ (sec 1.4.2). Le paramètre b^* ainsi calculé est proportionnel à R en première (et très bonne) approximation (Fig 1.11), comme postulé dans [34].

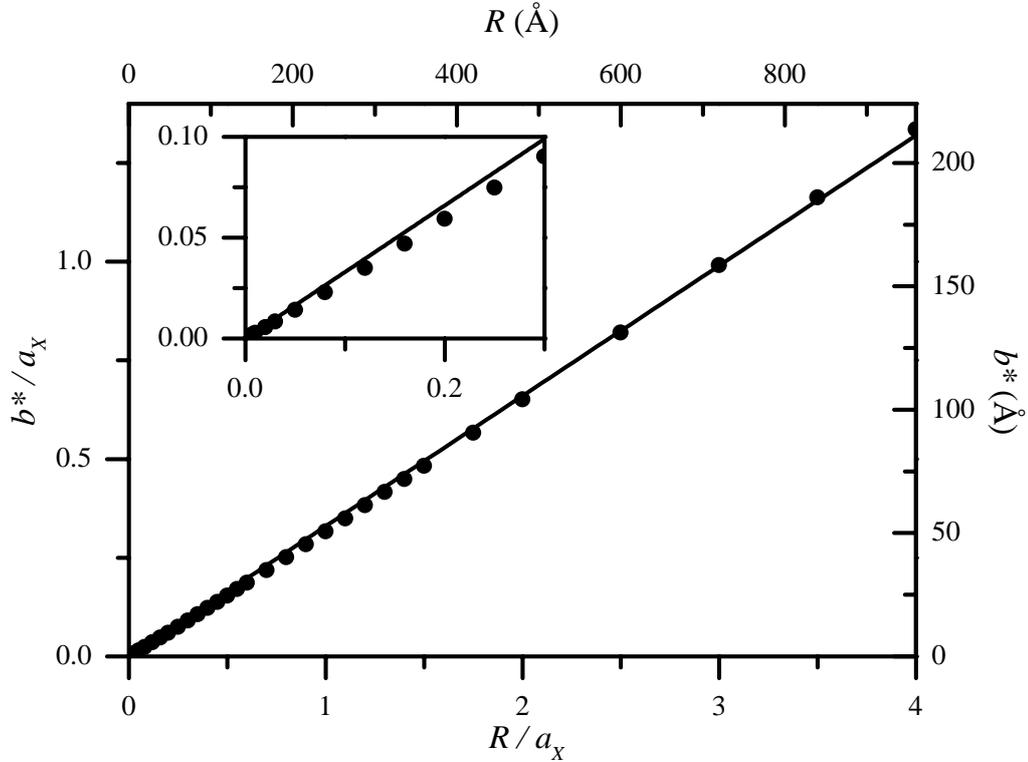


FIG. 1.11 – Dépendance en R du paramètre b^* du potentiel effectif naïf. La droite représente l’approximation linéaire $b^* = 0,33 R$.

Une fois le paramètre b^* calculé pour la sous-bande considérée, les énergies des différents états excitoniques sont évaluées (d’après Fig. 1.9) et corrigées au premier ordre par le terme $D_{n_X,n_e,n_h}(b_{n_e,n_h}^*)$, non nul pour $n_X \neq 0$. Le paramètre λ de l’énergie et l’énergie correspondante sont présentés en figure 1.12.

L’état fondamental, pair en x , est singulier pour $R \rightarrow 0$, comme prévu par la théorie de l’exciton purement 1D développée précédemment, alors que pour les autres états, pairs et impairs en x , le paramètre λ tend vers des valeurs entières pour $R \rightarrow 0$.

La limite $R \rightarrow \infty$ devrait correspondre au matériau massif ($\lambda = n$, $E = -R_X/n^2$). Ce n’est pas le cas mais notre modèle n’est valide que dans la limite $R/a_X < 1$ (cf Sec. 1.4.2). Pour les valeurs de R supérieures à $2 a_X$, le couplage inter-sous-bandes devient trop important et notre approche à une seule sous-bande n’est plus adaptée, comme le montre la figure 1.13.

Les fonctions d’onde de l’exciton ainsi trouvées sont essentiellement caractérisées par leur indice n_X , qui correspond à leur nombre de noeuds, et par leur extension spatiale. Celle-ci peut être évaluée par le rayon de Bohr de l’exciton, défini comme étant l’écart-type de la fonction d’onde: $a_X^{1D} = \sqrt{\langle \varphi_{n_X,n_e,n_h} | x^2 | \varphi_{n_X,n_e,n_h} \rangle}$. Celui-ci est représenté sur la figure 1.14, pour les premiers états excitoniques.

La dépendance de l’énergie de l’exciton en fonction de l’anisotropie η d’un fil rectangulaire est du deuxième degré, et presque négligeable pour les faibles anisotropies. Elle

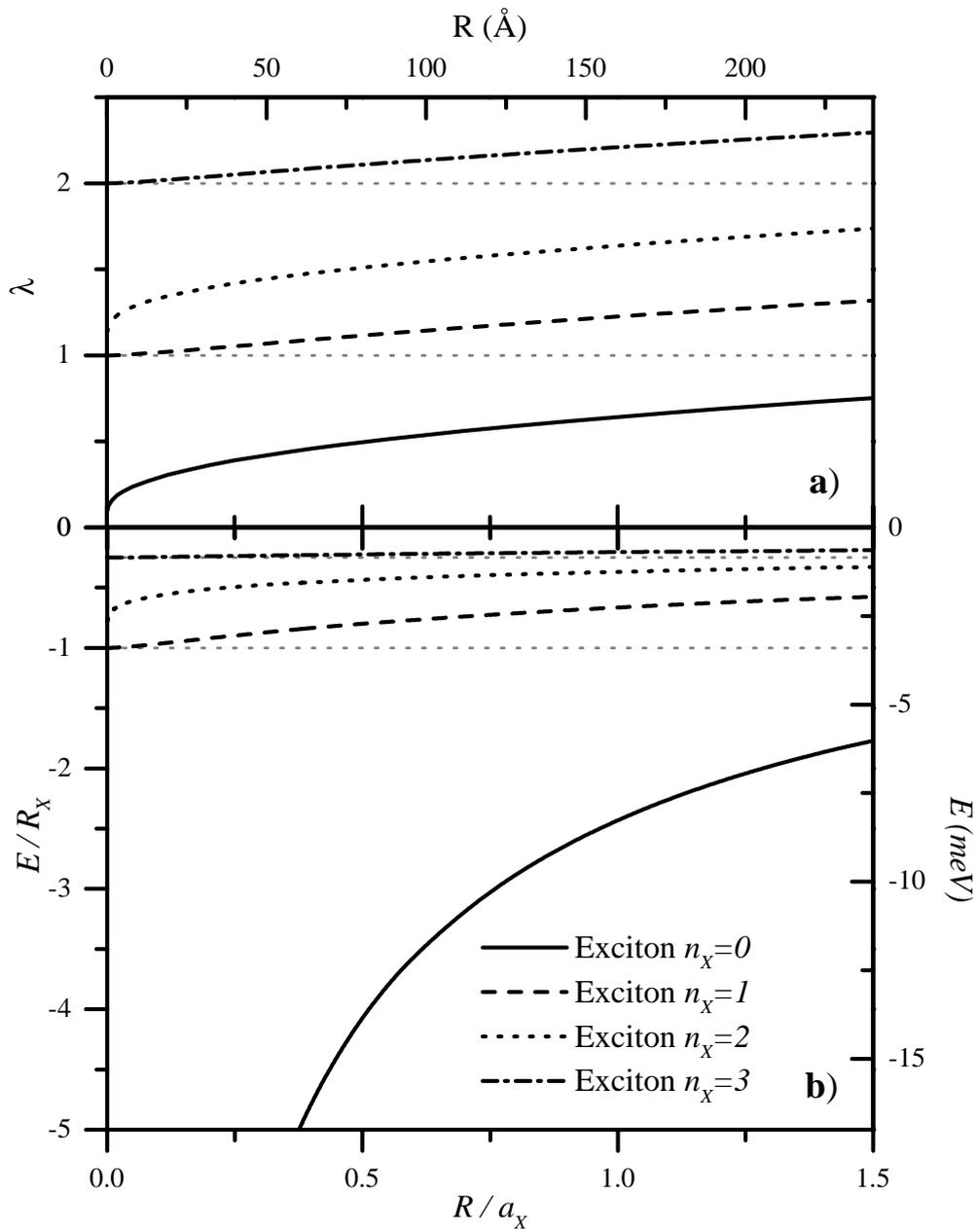


FIG. 1.12 – Dépendance en R du paramètre λ (a) et de l'énergie (b) des niveaux excitoniques, pour un fil cylindrique ou carré.

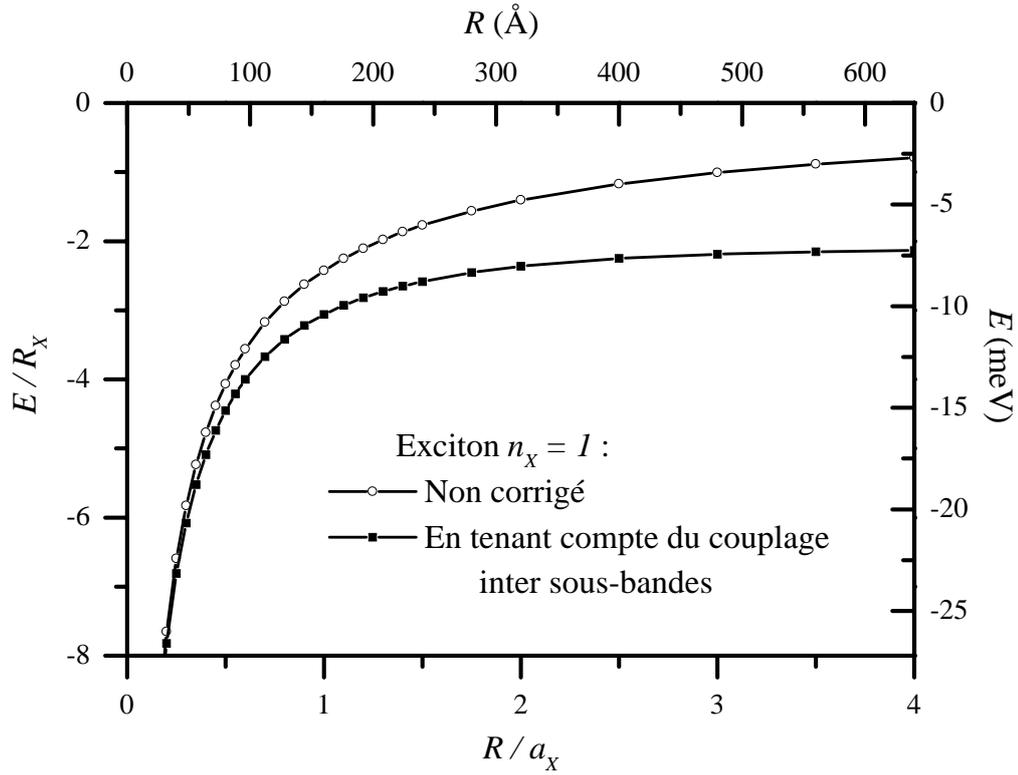


FIG. 1.13 – Dépendance en R du couplage inter sous-bandes, pour l'exciton $n_x = 0$ dans un fil cylindrique ou carré.

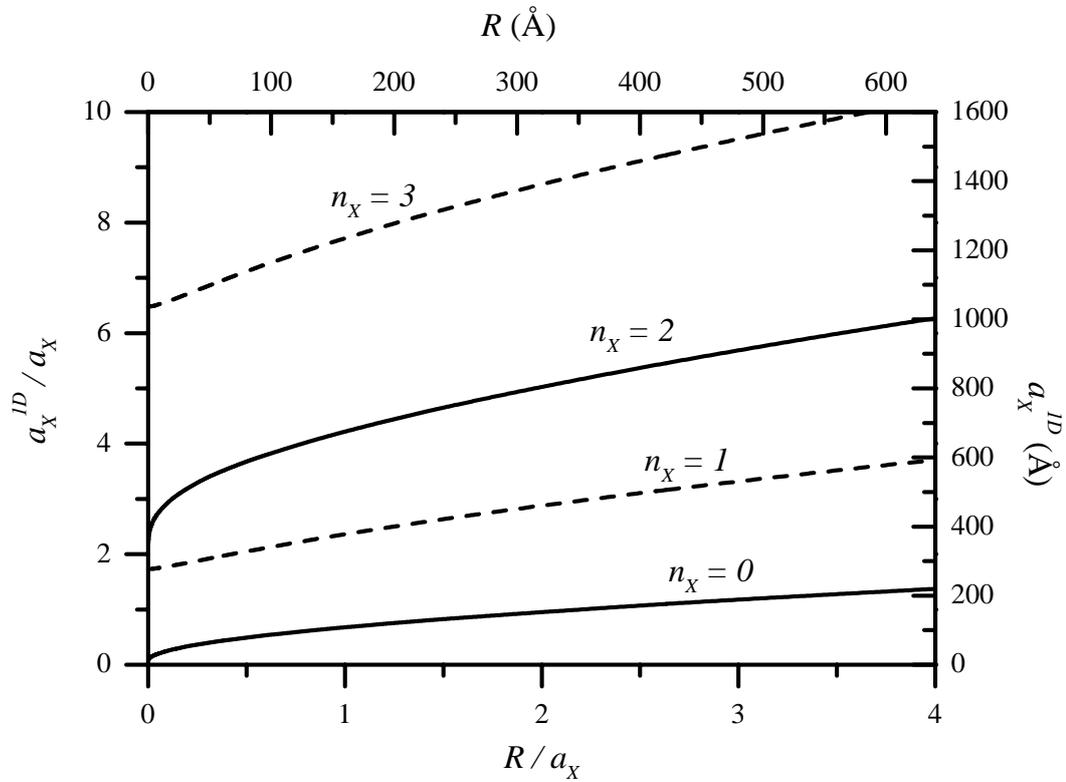


FIG. 1.14 – Rayon de Bohr des premiers états de l'exciton, dans un fil cylindrique ou carré.

1.4 L'exciton

est présentée sur la figure 1.15. Le modèle n'est plus valide pour les grandes anisotropies, et en particulier la décroissance de l'énergie de confinement pour $\eta > 100$ n'est pas significatif. La condition de validité de notre modèle, pour un fil rectangulaire, n'est en effet plus $R < a_X$ mais $L_y < a_X$ et $L_z < a_X$.

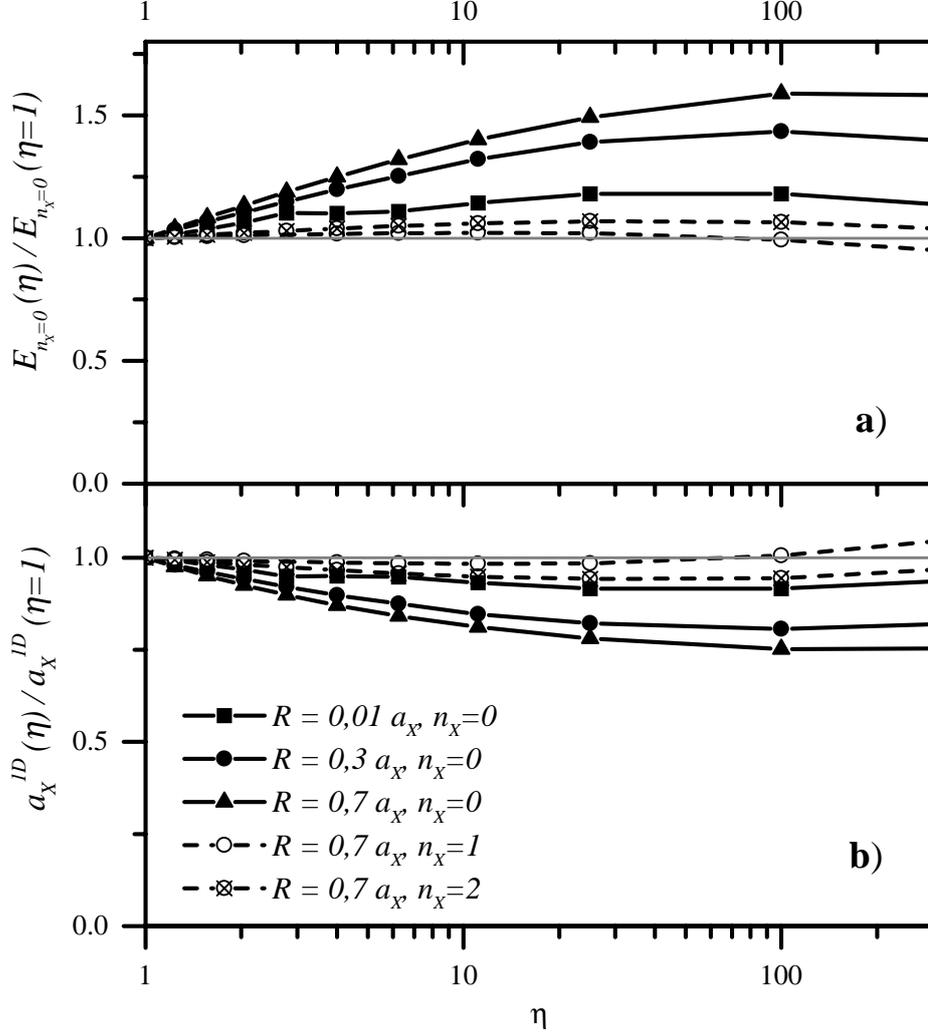


FIG. 1.15 – Influence de l'anisotropie η d'un fil rectangulaire sur l'énergie (a) et le rayon de Bohr (b) de l'exciton.

Retour aux fils quantiques en V

Dans le cas des fils quantiques que nous avons étudiés, le rayon du fil, avec les notations précédentes, est⁶ $R = \sqrt{L_y L_z / \pi} \approx 60 \text{ \AA}$, soit $R/a_X \approx 0,4$, et son anisotropie $\eta = L_y/L_z \approx 2$. Le paramètre λ vaut 0,45 et 1,15 pour les deux premiers états excitoniques, dont les énergies valent $-4,9 R_X \approx -17 \text{ meV}$ et $-0,8 R_X \approx -3 \text{ meV}$ respectivement. Pour l'état fondamental, nous pouvons tenir compte des corrections dues à l'anisotropie (+11%) et au couplage inter sous-bandes (+7%). L'énergie de liaison de l'exciton est donc de 20 meV environ. Son rayon de Bohr est $a_X^{1D} \approx 70 \text{ \AA}$. Le potentiel Coulombien effectif

6. Le fil rectangulaire à barrières infinies équivalent à nos fils en V, défini au paragraphe 1.3.2, à pour dimensions $L_y \approx 160 \text{ \AA}$ et $L_z \approx 80 \text{ \AA}$.

et les deux premiers états excitoniques sont représentés sur la figure 1.16. Nous pouvons remarquer que la fonction d'onde de l'état fondamental est plus concentrée autour de $x = 0$ que ne le serait une gaussienne, qui est souvent utilisée comme fonction d'essai dans les calculs variationnels, et que la fonction d'onde réelle est beaucoup plus proche d'une exponentielle $e^{-|x|/a}$.

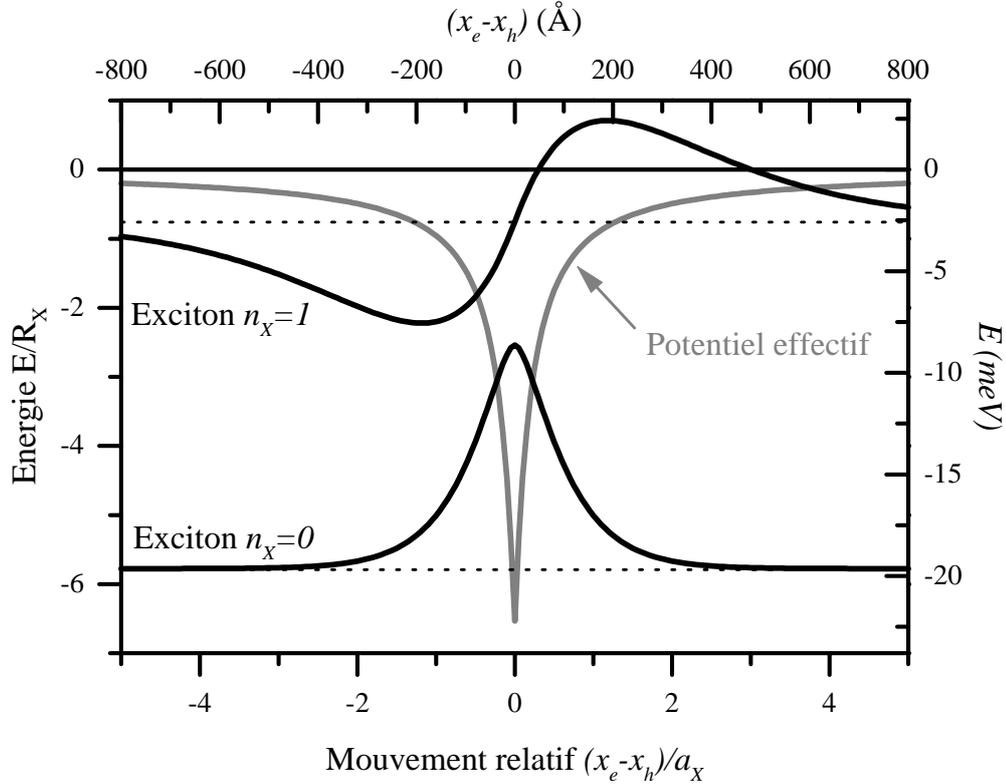


FIG. 1.16 – Potentiel effectif et fonctions d'onde excitoniques dans un fil quantique en V d'épaisseur 50 Å .

L'exciton dans les fils de polymère 3BCMU

Dans le cadre de ce modèle, l'exciton peut facilement être calculé dans les fils de polymères 3BCMU étudiés au laboratoire. Les caractéristiques de ce matériau, moins bien connues que dans les semiconducteurs III-V, sont les suivantes : la masse effective des électrons et des trous est de l'ordre de $0,1 m_0$; sa constante diélectrique est de 2,3. Le Rydberg effectif dans le matériau est donc d'environ $R_X = 140 \text{ meV}$, et le rayon de Bohr 3D $a_X = 23 \text{ Å}$. L'extension spatiale des fonctions d'onde électroniques est de l'ordre de $R = 5 \text{ Å}$, soit $R/a_X \approx 0,2$, et elles peuvent être considérées comme isotropes ($\eta \approx 1$). Le paramètre λ de l'état fondamental de l'exciton vaut alors $\approx 0,4$, et son énergie de liaison est de $1,1 \text{ eV}$, pour un rayon de Bohr de 7 Å . Ces valeurs sont supérieures à celles mesurées expérimentalement ($0,5 \text{ eV}$ et $10 - 20 \text{ Å}$ [39]), mais notre modèle touche ici à ses limites : l'extension de la fonction d'onde excitonique est de l'ordre de quelques paramètres de maille, et l'approximation de la fonction enveloppe, sous-jacente à toute cette étude, n'est plus adaptée. C'est donc par une approche moléculaire, en liaisons fortes, qu'il faudrait traiter l'exciton dans ce système [40].

1.5 Les fils quantiques et la lumière

1.5.1 Spectre d'absorption

Absorption des porteurs libres

La lumière induit dans les matériaux semiconducteurs à gap direct, comme le GaAs, des transitions inter-bandes au cours desquelles les électrons de la bande de valence peuvent être transférés dans la bande de conduction, laissant un “trou” dans la bande de valence. Pour étudier l'interaction des porteurs avec la lumière, nous devons nous intéresser à l'effet d'un champ électromagnétique $\mathbf{E} = E_0 \boldsymbol{\epsilon} e^{i\omega t}$ de polarisation $\boldsymbol{\epsilon}$. La perturbation qu'il induit est donné dans l'approximation dipolaire électrique [16, p 237] par l'hamiltonien⁷ :

$$W_{opt} = \frac{ieE_0}{2m_0\omega} \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p}.$$

La probabilité par unité de temps qu'un électron passe d'un état de la bande de valence $|\psi_v\rangle$ de vecteur d'onde \mathbf{k}_v ⁸ à un état de la bande de conduction $|\psi_{c,m_s}\rangle$ de vecteur d'onde \mathbf{k}_c et de spin m_s en absorbant un photon est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$P_{v,\mathbf{k}_v \rightarrow c,m_s,\mathbf{k}_c} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_{c,m_s} | W_{opt} | \psi_v \rangle|^2 \delta(E_c - E_v - \hbar\omega).$$

L'absorption à une énergie $\hbar\omega$ est obtenue en sommant sur tous les états initiaux $|\psi_v\rangle$ et finals $|\psi_{c,m_s}\rangle$ [16, p 241]. Si nous supposons la bande de valence pleine et la bande de conduction vide, elle est donnée par⁹ :

$$\alpha(\omega) = \frac{4\pi^2 e^2}{n c \omega m_0 V} \sum_{|\psi_v\rangle, |\psi_{c,m_s}\rangle} \frac{1}{m_0} |\langle \psi_{c,m_s} | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | \psi_v \rangle|^2 \delta(E_c - E_v - \hbar\omega).$$

L'hamiltonien dipolaire électrique agit principalement sur les fonction de Bloch de l'électron et du trou, qui varie beaucoup plus rapidement que la fonction enveloppe. Les éléments de matrice en jeu peuvent alors être réécrits :

$$\langle \psi_{c,m_s} | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | \psi_v \rangle = \sum_{m_j = \pm 3/2, \pm 1/2} \langle f_{c,m_s}^{2D}(\mathbf{r}) | f_{v,m_j}^{2D}(\mathbf{r}) \rangle \langle e^{i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}} | e^{i\mathbf{k}_v \cdot \mathbf{r}} \rangle \langle u_c^{m_s}(\mathbf{r}) | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | u_v^{m_j}(\mathbf{r}) \rangle. \quad (1.29)$$

L'élément de matrice $\langle u_c^{m_s}(\mathbf{r}) | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | u_v^{m_j}(\mathbf{r}) \rangle$ vaut $im_0 P / \hbar$, où P est l'élément de matrice de Kane [41] qui est isotrope et est donné par $2m_0 P^2 = 22.71 \text{ eV}$ dans le GaAs massif.

$f_{v,m_j}^{2D}(\mathbf{r})$ désigne la composante de moment orbital m_j de la fonction-enveloppe du trou, et l'élément de matrice $J_{m_j} = \langle f_{c,m_s}^{2D}(\mathbf{r}) | f_{v,m_j}^{2D}(\mathbf{r}) \rangle$ mesure son recouvrement avec la fonction-enveloppe de l'électron dans la bande de conduction. Les transitions se feront donc principalement entre états de même parité (e1h1, e2h2, ...).

Enfin, l'élément de matrice $\langle e^{i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}} | e^{i\mathbf{k}_v \cdot \mathbf{r}} \rangle = \delta(\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v)$ impose aux transitions d'être “verticales”, c'est-à-dire entre états de même vecteur d'onde suivant la direction libre x du fil. Cette condition n'existe pas dans les directions latérales y et z , qui ne sont pas invariantes par translation. Elle n'est de plus qu'une conséquence de l'approximation dipolaire électrique. La vraie règle de sélection est en effet $k_{c,x} = k_{v,x} + k_{photon,x}$ et reflète simplement la conservation de l'impulsion suivant x .

7. ω désigne la pulsation de la lumière et \mathbf{P} la quantité de mouvement des électrons.

8. L'état $|\psi_v\rangle$ de la bande de valence est mélangé de spin (cf Sec. 1.3.2). D'autre part, les vecteurs d'onde \mathbf{k}_v et \mathbf{k}_c sont selon l'axe x du fil quantique.

9. n désigne l'indice optique du milieu, c la vitesse de la lumière, et V le volume de l'échantillon excité.

Absorption et polarisation de la lumière

En raison de la symétrie réduite du fil quantique, l'absorption dépend de la polarisation de la lumière incidente, et c'est le mélange de bandes qui détermine les règles de polarisation spécifiquement 1D suivant les trois directions x , y et z (au lieu des polarisations circulaires gauche et droite et linéaire z dans les puits quantiques). En sommant sur les états finals, la probabilité pour un électron $|\psi_v\rangle$ de la bande de valence d'absorber un photon est donc proportionnelle à :

$$\sum_{m_s=\pm 1/2} \langle \psi_{c,m_s} | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | \psi_v \rangle = \left(\frac{m_0 P}{\hbar} \right)^2 \delta(\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v) \times \quad (1.30)$$

$$\begin{cases} \frac{1}{2} \left(J_{3/2}^2 + J_{-3/2}^2 \right) + \frac{1}{6} \left(J_{1/2}^2 + J_{-1/2}^2 \right) + \frac{1}{\sqrt{3}} \left(J_{3/2} J_{-1/2} + J_{-3/2} J_{1/2} \right) & \text{suivant } x \\ \frac{1}{2} \left(J_{3/2}^2 + J_{-3/2}^2 \right) + \frac{1}{6} \left(J_{1/2}^2 + J_{-1/2}^2 \right) - \frac{1}{\sqrt{3}} \left(J_{3/2} J_{-1/2} + J_{-3/2} J_{1/2} \right) & \text{suivant } y \\ \frac{2}{3} \left(J_{1/2}^2 + J_{-1/2}^2 \right) & \text{suivant } z \end{cases}$$

Dans le plan (x,y) , les coefficients d'absorption α_x et α_y dans les polarisations parallèle au fil x et perpendiculaire y sont différentes, et l'anisotropie de l'absorption est donné par :

$$T = \frac{\alpha_x - \alpha_y}{\alpha_x + \alpha_y} = - \frac{2 \left(J_{3/2} J_{-1/2} + J_{-3/2} J_{1/2} \right)}{\sqrt{3} \left(J_{3/2}^2 + J_{-3/2}^2 \right) + \left(J_{1/2}^2 + J_{-1/2}^2 \right) / \sqrt{3}}$$

La polarisation z n'est pas accessible par des expériences en incidence normale à l'échantillon, au cours desquels le faisceau se propage suivant la direction z .

Les probabilités d'absorption et leur anisotropie ont été calculées dans le cas du fil quantique considéré dans la simulation numérique (Sec. 1.3.2) et sont reportées dans la table 1.5.1, ainsi que l'énergie des transitions associées. Nous remarquons que les transitions les plus intenses, entre états d'électron et de trou de même symétrie (e1h1,e2h2, ...) sont faiblement polarisées, alors que les autres transitions, comme par exemple e1h5, peuvent être fortement polarisées perpendiculairement au fil en raison du fort mélange de bandes de l'état h5, tout en présentant une force d'oscillateur non négligeable. Ces résultats sont comparés au spectre d'excitation de la luminescence (PLE) dans la figure 1.18.

Absorption des excitons et des états corrélés par l'interaction coulombienne

Nous avons implicitement considéré jusqu'à présent uniquement les transitions entre électrons et trous libres. Mais comme nous l'avons vu précédemment (Sec. 1.4), l'interaction Coulombienne doit être prise en compte et les états finals après absorption d'un photon ne sont pas des états d'électrons et de trous libres, mais au contraire des états corrélés. Ces états sont de deux types : les états liés, les excitons, qui ont un spectre discret d'énergie en-dessous du gap, et les états de diffusion qui forment un continuum d'états au-dessus du gap. La probabilité d'absorber un photon pour créer un état corrélé de fonction d'onde du mouvement relatif $\varphi(x)$ et de vecteur d'onde du centre de masse K_X est alors régie par l'élément de matrice $\varphi(x=0)\delta(K_X=0)$ qui se substitue à $\langle e^{i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}} | e^{i\mathbf{k}_v \cdot \mathbf{r}} \rangle$ dans l'équation 1.29.

Transition	Energie (meV)	Absorption ($\alpha_x + \alpha_y$) (unités arb.)	Taux de polarisation T
e1h1	1664	0,94	0,1 %
e1h2	1681	0,03	-0,1 %
e1h3	1689	0,07	-15 %
e1h4	1698	0,1	-24 %
e1h5	1701	0,15	-25 %
e2h1	1712	0,003	-0,3 %
e2h2	1730	0,78	3 %
e2h3	1737	0,05	10 %
e2h4	1746	0,04	24 %
e2h5	1749	0,06	-16 %
e3h3	1764	0,56	15 %
e4h4	1838	0,41	-24 %

TAB. 1.3 – Absorption dans le plan (x,y) des principales transitions entre bande de valence et bande de conduction dans un fil quantique en V d'épaisseur 5 nm, à $T = 2$ K.

L'absorption des états liés est donc proportionnelle à $\varphi(x=0)$, et seuls les transitions vers des états pairs en x sont autorisées. L'état fondamental de l'exciton présente l'absorption la plus forte.

En ce qui concerne les états de diffusion, que nous n'avons pas calculés dans la section 1.4, leur absorption est inférieure à celle calculée pour des électrons et des trous libres [31, 24]. Ceci est une spécificité des systèmes 1D : le facteur de Sommerfeld, qui est le rapport des absorptions des porteurs libres (bande à bande) obtenues dans des modèles tenant compte ou non de l'interaction Coulombienne, γ est inférieur à 1, contrairement aux systèmes 2D et 3D. Cela est dû à la très forte concentration de la force d'oscillateur sur le premier état d'exciton, qui comme nous l'avons vu est très concentré en $x=0$, au détriment des autres états liés et des états libres.

Mesure de l'absorption

L'absorption donne accès à la densité d'états et à la structure de bande de la structure, même si cette mesure est indirecte car tous les états ne sont pas optiquement actifs. Elle permet en particulier d'identifier les différentes sous-bandes induites par le confinement. La mesure du spectre d'absorption d'un fil quantique unique est difficile expérimentalement en raison de sa faible section efficace d'absorption. Elle ne peut être réalisée qu'en optique guidée, qui permet d'augmenter la longueur d'interaction entre la lumière et le fil quantique. Le fil est alors intégré dans un guide d'onde optique qui lui est parallèle, et l'absorption peut être mesurée dans les polarisations y et z [42]. Ces mesures mettent en évidence les transitions entre les différentes sous-bandes confinées dans le fil quantique, et leurs règles de sélection en lumière polarisée. Elles sont interprétées en terme d'absorption de l'état fondamental de l'exciton de chacune de ces sous-bandes, et les états excités de l'exciton et les porteurs libres ne peuvent être distingués, en raison du facteur de Sommerfeld.

1.5.2 Luminescence

Lorsque des électrons et des trous sont créés par excitation optique (dans notre cas), ils peuvent se recombiner — l'électron et le trou s'annihilent — en émettant spontanément un photon. Nous ne nous intéresserons pas ici aux processus plus complexes et non linéaires d'émission stimulée qui peuvent avoir lieu sous forte excitation et lorsque les photons sont confinés.

Le processus d'émission spontanée met en jeu le même élément de matrice que l'absorption (Eq. 1.29), et peut donc avoir lieu entre porteurs libres comme pour des excitons. Mais l'émission de lumière n'est pas un processus symétrique à l'absorption : elle a lieu après la relaxation des porteurs vers leurs états fondamentaux, qui est beaucoup plus rapide que la recombinaison. Nous verrons dans nos structures que le temps de recombinaison radiative est de l'ordre de 300 ps (cf Sec. 4.3.1) alors que les processus de relaxation impliquant les phonons ont des temps caractéristiques de l'ordre de 50 ps , même à basse température (cf Sec. 4.2).

Les spectres de luminescence ne donnent donc pas accès à la structure de bande de la structure, comme c'est le cas des spectres d'absorption, mais uniquement aux états fondamentaux. Ils sont dominés à basse température par l'émission des excitons de la première sous-bande, et ne comporte en général qu'une seule raie (Fig. 1.17). A plus haute température, l'énergie thermique est comparable aux séparations énergétiques entre sous-bandes, et celles-ci peuvent donner lieu à d'autres raies à plus haute énergie. Les contributions des états excités de l'exciton et des porteurs libres ne peuvent être distinguées, même à température ambiante.

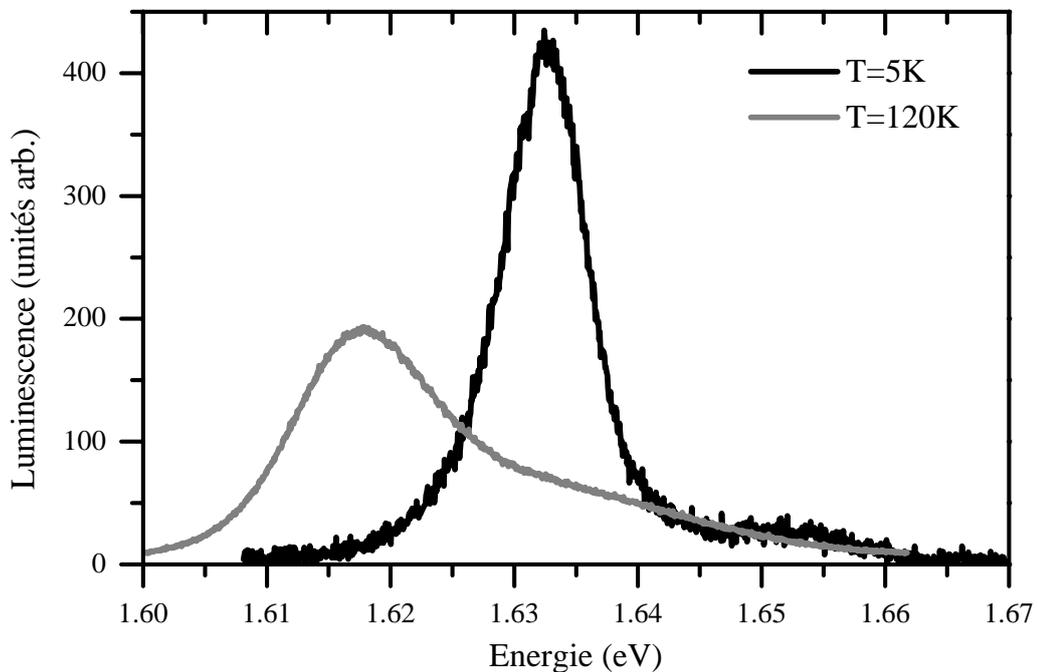


FIG. 1.17 – Luminescence d'un fil quantique de 5 nm d'épaisseur (NM79) à $T = 5 \text{ K}$ et 120 K .

Nous pouvons remarquer que la luminescence, due à un état excitonique discret, donne lieu à une raie relativement large (10 meV à mi-hauteur). C'est une signature du désordre

dans la structure : les dimensions du fil quantique, et donc les énergies des états confinés, ne sont pas parfaitement homogènes sur un échantillon, et leur dispersion élargit la raie de luminescence de manière inhomogène. L'étude de ce phénomène fera l'objet du chapitre 3.

1.5.3 Spectre d'excitation (PLE)

L'absorption d'un fil quantique peut être obtenue de manière indirecte en mesurant la dépendance de l'intensité de la luminescence en fonction de l'énergie d'excitation. Cela est valide au premier ordre, sous deux réserves : d'une part il faut supposer que toutes les paires électron-trou photo-crées se recombinent radiativement, ou du moins que la proportion de recombinaisons non radiatives est indépendante de l'énergie d'excitation; et d'autre part elles doivent se recombiner uniquement depuis l'état fondamental, à l'énergie duquel la luminescence est détectée. Ces deux approximations sont raisonnables dans notre système, sauf à basse énergie où nous verrons que la relaxation dépend aussi de manière importante de la localisation (cf Sec. 4.3.2).

Un spectre de PLE est présenté en figure 1.18. Les transitions entre électrons et trous confinés dans les différentes sous-bandes donnent chacune lieu à une raie, dont les règles de sélection en lumière polarisée correspondent à celles calculées (table 1.5.1). Ces raies sont superposées à un continuum, qui croît avec l'énergie, dû à tous les états excités de l'exciton et aux porteurs libres. Les différences d'énergie entre les différentes transitions sont identiques à celles calculées, mais les énergies absolues ne peuvent être reproduites qu'à 15 meV près, même en tenant compte de l'énergie de liaison de l'exciton, probablement car elles dépendent des nombreux paramètres du système — masses, gap, ...

Il est à noter qu'une première raie d'absorption, due à la sous-bande fondamentale e_1h_1 , apparaît dans ce spectre environ 12 meV au-dessus de la raie de luminescence, alors que l'absorption de l'état fondamental ne devrait pas pouvoir être observée. C'est une nouvelle signature du désordre dans la structure : les inhomogénéités du confinement des porteurs, rapidement introduites au paragraphe précédent, induisent une localisation des excitons. La luminescence, principalement due aux excitons localisés, se distingue de l'absorption, due aux excitons localisés dans d'autres sites et non-localisés, et la différence d'énergie entre les deux raies est une première mesure du désordre, appelée "Stokes shift". Nous étudierons quantitativement le Stokes shift dans la section 4.3.2.

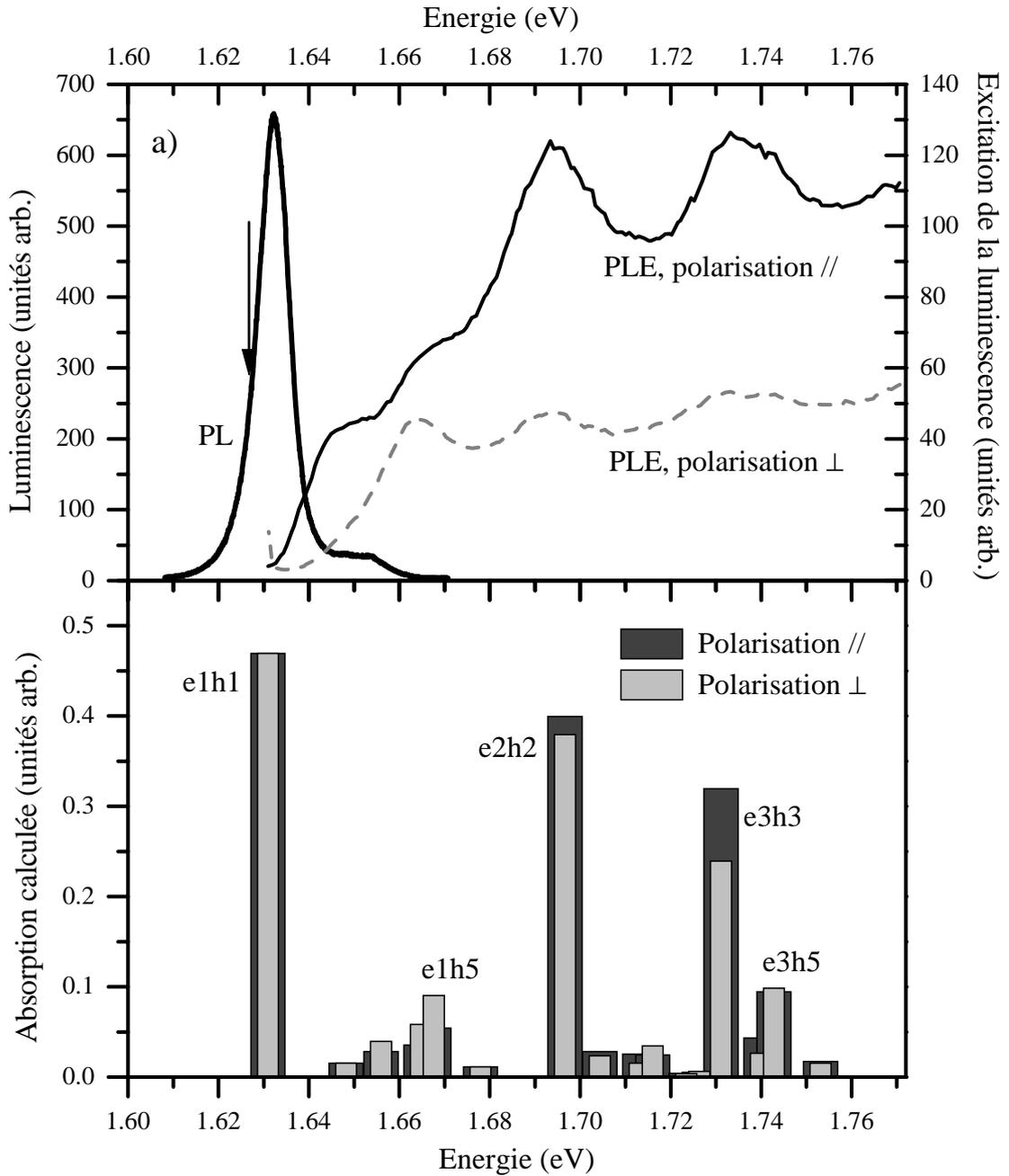


FIG. 1.18 – (a) Spectres d'excitation de la luminescence (PLE) d'un fil quantique de 5 nm d'épaisseur (NM79) à basse température ($T = 5$ K), et le spectre de luminescence correspondant (L'énergie de détection des spectres de PLE est indiquée par la flèche). (b) Forces d'oscillateur calculées d'après la géométrie du fil (Table 1.5.1); les énergies des transitions sont translatées de 31 meV vers les basses énergies pour être comparées aux spectres.

1.6 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre présenté les principales propriétés électroniques et optiques des fils quantiques semiconducteurs, et plus spécifiquement des fils quantiques gravés en V auxquels nous nous sommes intéressés. Chacune de ces propriétés reflète le caractère unidimensionnel de ces structures.

Les fils quantiques en V apparaissent comme une excellente solution pour obtenir un “fort” caractère 1D :

Le confinement des porteurs perpendiculairement au fil est fort, grâce à la grande résolution latérale de la lithographie du V. Dans les structures étudiées, l’extension des fonctions d’onde perpendiculairement au fil est de l’ordre de $5\text{ nm} \times 15\text{ nm}$, et la séparation entre les deux premières sous-bandes e1h1 et e1h2 est de 18 meV . La deuxième sous-bande optiquement active (e2h2) est quant à elle séparée de 65 meV . A basse température, tous les couplages qui apparaissent dans la description des propriétés physiques sont inférieurs à cette séparation inter sous-bandes, et le fil en V constitue en bonne approximation un fil quantique à une seule sous-bande. La séparation entre sous-bandes est supérieure à celle obtenue dans toutes les autres structures de fils quantiques présentées dans la première section, à l’exception notable des molécules de polymères, dans lesquels les porteurs sont confinés sur la molécule, de diamètre inférieur au nanomètre, et le cristal de monomères environnants constitue une barrière presque infinie. Notons enfin que le caractère unidimensionnel du système se traduit par un mélange de bandes, même en $\mathbf{k} = 0$, pour les trous, dont le spin n’est pas un bon nombre quantique. Ce mélange de bande détermine les règles de polarisation de l’absorption du fil quantique, qui n’est pas isotrope dans le plan (x,y) de l’échantillon.

L’exciton est particulièrement singulier dans les systèmes unidimensionnels. L’état fondamental de l’exciton aurait en effet une énergie de liaison infiniment négative dans un fil sans épaisseur ! Mais dans les fils réels, le rapport R/a_X entre le rayon du fil et le rayon de Bohr dans le matériau massif est compris entre 0,2 et 1, et la singularité est grandement atténuée. Cependant, l’énergie de liaison de l’exciton calculée (20 meV) est supérieure à celle obtenue dans des puits quantiques GaAs d’épaisseur similaire (moins de 10 meV), et l’exciton y est plus stable. Il concentre de plus l’essentiel de la force d’oscillateur aux dépens des transitions bande à bande, qui sont plus faibles qu’à 2D et 3D.

Chapitre 2

Dispositif expérimental

La caractérisation du désordre et de la localisation qu'il induit a été réalisée par des techniques d'études locales et de spectroscopie, centrées autour de l'expérience de "microphotoluminescence" (μ -PL) et de ses différentes variantes [43]. L'ensemble des techniques que nous avons développées ouvrent des perspectives d'études principalement dans deux directions : d'une part l'étude de nano-objets individuels, comme les molécules polymère de 3BCMU, et d'autre part l'imagerie de propriétés physiques présentant une dépendance spatiale, comme par exemple la localisation dans les fils quantiques.

Le principe de la microphotoluminescence est de réaliser une expérience de luminescence avec une grande résolution spatiale, au cours de laquelle un échantillon est excité localement par un faisceau laser focalisé par un objectif de microscope, et la lumière émise est collectée par ce même objectif pour être analysée. Cette expérience allie les possibilités de la microscopie et des techniques classiques de spectroscopie. Les améliorations que nous avons réalisées autour de ce dispositif concernent le développement de deux techniques d'imagerie, la première dite de "balayage d'excitation" permettant en déplaçant de manière contrôlée le point d'excitation d'analyser en chaque point la luminescence émise [44], et la deuxième, dite "d'imagerie de la luminescence", permettant en un point donné de réaliser une image à la fois spectrale et spatiale de la luminescence émise [45]. L'ensemble du dispositif, représenté sur la figure 2.1 et plus amplement détaillé ci-après, peut donc être décomposé en trois parties : l'excitation, depuis les sources laser jusqu'à l'objectif de microscope; la cryogénie, cruciale, en particulier l'art d'assurer la stabilité et le déplacement de l'objectif par rapport à l'échantillon; la détection enfin, et les techniques de spectroscopie et d'imagerie qu'elle met en jeu.

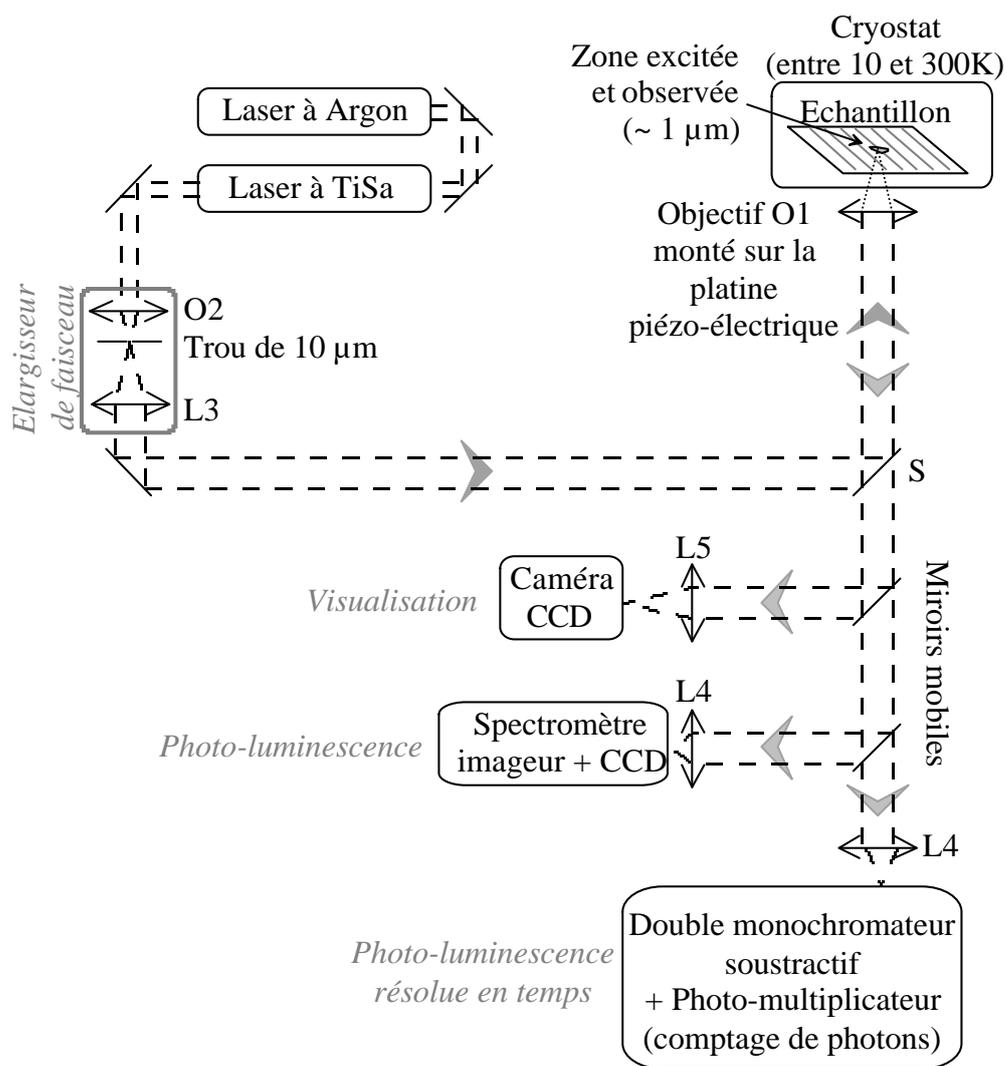


FIG. 2.1 – *Dispositif expérimental, dans son ensemble*

2.1 L'optique

2.1.1 Les sources laser et l'excitation

Plusieurs sources laser ont été utilisées pour exciter les fils quantiques. Le laser à Argon, à 488 nm ou $514,5\text{ nm}$, permet d'exciter l'échantillon dans les barrières de GaAlAs, à forte puissance (jusqu'à 100 mW sur l'échantillon) si nécessaire. Mais comme nous le verrons, il est souvent souhaitable de créer les porteurs dans les sous-bandes du fil plutôt que dans les barrières, où de nombreux processus peuvent se produire qui perturbent les résultats expérimentaux. C'est pourquoi l'excitation a le plus souvent été réalisée par un laser à Titane-Saphir ou bien à colorant (pyridine 2), de longueur d'onde accordable entre 690 et 760 nm , pompés par un laser à Argon. L'accordabilité de ces sources permet aussi d'exciter de manière résonante certaines transitions.

Cette même source peut aussi fournir des impulsions laser et permettre de réaliser des expériences résolues temporellement. Le laser de pompe est en effet capable de fonctionner non seulement en continu mais aussi en mode impulsif à $514,5\text{ nm}$. Le taux de répétition des impulsions est alors de 82 MHz environ, et la largeur des impulsions est de l'ordre de 100 ps . Le laser à colorant, dont la longueur de cavité est égale à celle du laser à Argon, peut alors être pompé de manière synchrone. La largeur des impulsions est plus faible, et vaut environ 5 ps .

2.1.2 Le microscope : de l'élargisseur de faisceau à l'objectif

Dans une expérience de μ -PL la résolution spatiale est donnée par la taille de la zone d'excitation. En focalisant le faisceau laser d'excitation avec un objectif de microscope O1, cette taille peut être réduite à une valeur minimale, limitée par la diffraction de l'objectif. La largeur de la tache d'excitation est de l'ordre λ/NA , où λ est la longueur d'onde et NA l'ouverture numérique de l'objectif. Nous avons mesuré la largeur à mi-hauteur du profil de la tache d'excitation, qui vaut $0,8\text{ }\mu\text{m}$ (cf Sec. 3.1.1). L'objectif que nous avons utilisé, de marque Leitz, a une ouverture numérique $NA_1 = 0,6$, un grossissement $\times 32$, une distance focale $f_1 = 7\text{ mm}$ et une distance frontale, séparant la dernière lentille de l'objectif du point focal objet, de $5,6\text{ mm}$. Il est de plus corrigé pour obtenir une résolution optimale en présence d'une lame de silice d'épaisseur $1,8\text{ mm}$ entre l'objectif et l'objet, en l'occurrence la fenêtre du cryostat.

Pour obtenir de telles performances il est cependant nécessaire d'utiliser un faisceau laser parallèle couvrant intégralement la lentille d'entrée de l'objectif de microscope, d'un diamètre d'environ 10 mm . Le faisceau laser brut est lui légèrement divergent, et son diamètre est beaucoup plus faible (1 à 2 mm). Il est donc nécessaire d'utiliser un élargisseur de faisceau, dont le rôle premier est d'obtenir un faisceau large et très faiblement divergent. Celui-ci est constitué d'un objectif de microscope O2 ($\times 20$) de plus faible ouverture numérique $NA_2 = 0,35$ et de distance focale $f_2 = 12\text{ mm}$, qui focalise le faisceau laser brut sur un trou calibré de diamètre $10\text{ }\mu\text{m}$. Le faisceau filtré par le trou est alors rendu parallèle par une lentille L3, de focale $f_3 = 80\text{ mm}$, placée de telle sorte que le trou soit en son point focal-objet. Le diamètre du faisceau laser a ainsi été multiplié par $f_3/f_2 = 7$, et éclaire l'intégralité de la lentille d'entrée de l'objectif.

Le second rôle de l'élargisseur de faisceau est d'isoler la partie "source laser" de la partie "microscopie" du dispositif, et d'être ainsi indépendant des éventuelles fluctuations de direction et de divergence du faisceau laser, par exemple lorsque la longueur d'onde

2.1 L'optique

du laser à colorant est modifiée. Le trou peut en effet être considéré comme une nouvelle source, parfaitement conjuguée avec l'échantillon par la lentille L3 et l'objectif O1.

Il est à noter que le faisceau élargi est réfléchi sur une lame de verre S à faces non parallèles avant d'entrer dans l'objectif. Cette lame permet de récupérer, en transmission, la luminescence émise par l'échantillon et collectée par l'objectif. Son faible coefficient de réflexion, de l'ordre de 4 %, est destiné à transmettre au maximum la luminescence, au dépens de la puissance d'excitation dont l'essentiel est transmis par la lame et n'entre pas dans l'objectif. De plus, les faces de la lame ne sont pas parallèles de manière à éviter que les faisceaux réfléchis sur chacune des deux faces ne donnent lieu à deux taches d'excitation après focalisation sur l'échantillon. Ces deux faisceaux sont en effet ainsi réfléchis dans des directions légèrement différentes, et seul celui provenant de la première face est orienté de manière à entrer dans l'objectif. Certaines expériences ont nécessité une forte puissance d'excitation (plus de 100 μW en continu avec le laser à colorant), et la lame de verre a dans ce cas été remplacée par une lame semi-réfléchissante, elle-aussi à faces non parallèles, dont le coefficient de réflexion de l'ordre de 50 % permet de favoriser la puissance d'excitation au détriment de l'intensité de luminescence transmise.

Observation visuelle de l'échantillon

Dans ce grand microscope éclaté sur la table optique, l'oculaire peut être tout simplement constitué d'une lunette, ou bien d'une petite caméra CCD placée dans le plan image d'une lentille de grande focale, comme représenté sur la figure 2.1. L'échantillon peut ainsi être observé à l'oeil, ou sur l'écran d'un ordinateur, de manière à identifier les gravures en V de l'échantillon et les fils sous-jacents, et placer la tache d'excitation laser sur l'un d'entre eux. Il est pour cela éclairé en lumière blanche par une lampe halogène, non représentée sur la figure.

Polarisation et discrimination de la luminescence

La polarisation du faisceau d'excitation, linéaire et déterminée par la source laser, peut être modifiée par un rotateur de polarisation, lui aussi placé en amont de l'élargisseur de faisceau, qui fournit les deux polarisations linéaires, parallèle et perpendiculaire à la direction des fils quantiques, nécessaires aux différentes études.

L'analyse de la luminescence collectée par l'objectif et transmise par la lame de verre S peut être réalisée par les techniques classiques de spectroscopie. Il est au préalable nécessaire de discriminer la luminescence du faisceau d'excitation, dont une partie a été diffusée et surtout réfléchi sur la surface de l'échantillon. Dans les expériences classiques de macro-luminescence, la séparation de ces deux composantes est en général réalisée en excitant en incidence légèrement oblique l'échantillon, et en collectant la luminescence en incidence normale, ce qui permet d'éliminer le faisceau réfléchi. Ceci n'est pas possible en μ -PL, car l'intégralité de l'ouverture numérique de l'objectif est nécessaire pour d'une part exciter l'échantillon avec une bonne résolution spatiale et d'autre part collecter le maximum de signal de luminescence, dont l'intensité est faible.

Le faisceau d'excitation étant très bien polarisé linéairement, il peut être coupé à l'aide d'un analyseur croisé (A), avec une efficacité de l'ordre de 10^4 . Cependant, l'analyse de la luminescence dans deux polarisations perpendiculaires nécessite dans ce cas de faire aussi tourner la polarisation de l'excitation, ce qui nécessite de nouveaux réglages à chaque opération. L'utilisation d'un compensateur de Babinet-Soleil permet de pallier ce problème. Placé juste avant l'objectif de microscope, il peut être réglé dans deux

configurations, l'une laissant les polarisations de la lumière inchangées et l'autre les faisant tourner de 90° . Il doit être inséré après avoir croisé l'analyseur A avec la polarisation du faisceau laser, de manière par exemple à exciter en polarisation parallèle au fil et à détecter la luminescence polarisée perpendiculairement au fil. Ainsi, la première configuration du compensateur ne change pas les polarisations d'excitation et de détection, alors que la deuxième configuration permet d'exciter en polarisation perpendiculaire au fil et de détecter la luminescence polarisée parallèlement, le tout sans modifier la direction des faisceaux comme le ferait la rotation de polariseurs. L'inconvénient de cette appareil, basé sur un principe d'interférences, est qu'il doit être réglé à nouveau à chaque modification de la longueur d'onde d'excitation, ce qui rend très difficiles les expériences d'excitation de la luminescence.

Une autre manière, plus simple, de discriminer les deux composantes de la lumière collectée, est de les séparer spectralement, lorsque cela est possible. Lors des expériences réalisées plus récemment, la luminescence, émise à environ 750 nm , a été séparée de l'excitation, réalisée dans les états excités du fil (typiquement à 710 nm par le laser à colorant) par un filtre interférentiel passe-bas dont la coupure est à 720 nm et le coefficient d'atténuation est très important (au moins 10^6). Là encore cette technique est inadaptée aux expériences d'excitation de la luminescence.

2.2 La spectroscopie

Le signal de luminescence ayant été collecté et discriminé du faisceau laser réfléchi par l'une des techniques précédemment citées, il peut être analysé, en particulier spectralement et temporellement. Ces techniques ont été développées par Joël Bellessa au cours de sa thèse [23].

2.2.1 Spectres de luminescence : μ -PL

Le faisceau de luminescence est focalisé sur la fente d'entrée d'un spectromètre à l'aide d'une lentille (L4). Nous avons successivement utilisé au cours de cette thèse les spectromètres HRS2 et Triax 550 de Jobin et Yvon, de focales respectives 600 et 550 *mm*. La distance focale $f_4 = 80$ *mm* de la lentille L4 a été choisie en fonction de la taille du réseau (≈ 80 *mm*), la focale du spectromètre et le diamètre du faisceau de luminescence issu de l'objectif (≈ 10 *mm*), de manière à couvrir la totalité du réseau et ainsi obtenir une résolution spectrale optimale d'environ 0,25 Å, soit 40 μ eV aux longueurs d'ondes considérées. Nous avons utilisé un réseau de 1200 traits/mm, blasé dans le rouge. La luminescence diffractée est mesurée dans le plan focal image du spectromètre par une caméra CCD, selon le cas de 800×128 pixels de 25 μ m refroidie par effet Peltier ou bien de 2000×800 pixels de 13 μ m refroidie à l'azote liquide, de résolutions respectives 80 et 40 μ eV.

Il est à noter que la résolution spectrale est meilleure en μ -PL qu'en luminescence classique car le faisceau de luminescence, une fois focalisé dans le plan objet des fentes du spectromètre par la lentille L4, a une taille de l'ordre de 10 μ m. La largeur de la fente d'entrée, supérieure à 30 μ m, ne joue donc pas de rôle important dans la résolution spectrale, et de plus elle ne tronque pas le faisceau. D'autre part la qualité du spectromètre est cruciale pour obtenir une bonne résolution spectrale sur l'ensemble du spectre analysé par la CCD. Aux bords de la CCD, la résolution n'est pas limitée par la taille de cette tache, ni par la largeur de la fente d'entrée, mais par les aberrations du spectromètre. Ces considérations seront développées de manière plus approfondies au paragraphe 2.3.1.

2.2.2 μ -PL résolue temporellement

L'analyse temporelle de la luminescence est réalisée dans un double monochromateur soustractif Dilor, et donc suivant un autre chemin optique. Celui-ci présente deux avantages sur un simple monochromateur : d'une part, le chemin optique entre la fente d'entrée et la fente de sortie est par construction constant, contrairement au cas des monochromateurs simples ou additifs, et la résolution temporelle n'est ainsi pas limitée par ce phénomène; d'autre part, l'utilisation de la fente intermédiaire, entre les deux réseaux du monochromateur, permet d'obtenir un taux de réjection du faisceau laser réfléchi bien meilleur, et de réaliser ainsi des expériences de μ -PLE en excitant très près de l'énergie de détection.

Comme précédemment, le faisceau de luminescence est focalisé par une lentille sur la fente d'entrée du monochromateur, de manière à couvrir l'ensemble des réseaux. Il est détecté après la fente de sortie par un tube photomultiplicateur à galettes de microcanaux refroidi à -25 °C par effet Peltier, de grande efficacité et de bonne résolution temporelle. Ce détecteur est couplé à un système de comptage de photons à corrélation temporelle. La résolution temporelle de l'ensemble est de 40 *ps*, et peut être réduite à 20 *ps* par déconvolution [23, 160].

2.2.3 Spectres d'excitation : μ -PLE

Les spectres de μ -PLE sont obtenus en fixant l'énergie de détection et en faisant varier l'énergie d'excitation. Ils donnent ainsi accès au spectre d'absorption, mais de manière indirecte car la relaxation des porteurs entre leur état initial à l'énergie d'absorption et leur état final à l'énergie de détection intervient de manière cruciale dans ce type d'expériences. Il est préférable d'utiliser le double monochromateur soustractif, dont le taux de réjection est élevé. Mais il peut être intéressant d'enregistrer l'ensemble du spectre de luminescence à chaque énergie d'excitation, et donc d'utiliser le spectromètre-imageur et sa caméra CCD.

2.3 L'imagerie

2.3.1 Imagerie de la luminescence

L'utilisation du spectromètre-imageur

Il s'est avéré intéressant, dans de nombreuses expériences, d'avoir accès à l'image de la luminescence émise par l'échantillon. Celui-ci est excité dans une zone de $1 \mu\text{m}$, mais la luminescence peut être émise depuis une zone plus étendue, en particulier si des processus de diffusion spatiale des porteurs ont eu lieu. La distribution spatiale de la luminescence émise, et a fortiori sa distribution corrélée spatiale *et* spectrale, apporte donc des informations sur ces processus de diffusion. Nous avons tiré profit du fait que la diffraction dans un spectromètre n'a lieu que dans une seule direction, et que l'information spatiale dans la direction perpendiculaire à la direction de diffraction est conservée, permettant d'obtenir une image spatiale dans une seule et unique direction. Ce procédé est donc parfaitement adapté à l'étude d'objets unidimensionnels, comme les fils quantiques. Il a été schématiquement représenté sur la figure 2.2 en prenant l'exemple d'un objet 1D plus intuitif, en l'occurrence une bougie. La détection est réalisée par la caméra CCD, les images obtenues comportant une dimension spatiale et une dimension spectrale. La taille des pixels de la CCD étant de $13 \mu\text{m}$ et le grandissement du microscope étant $f_4/f_1 = 12$, la résolution spatiale est d'environ $1 \mu\text{m}$ sur l'échantillon. Dans la pratique, nous avons mesuré une résolution de $1,5 \mu\text{m}$ (cf Sec. 4.3.2).

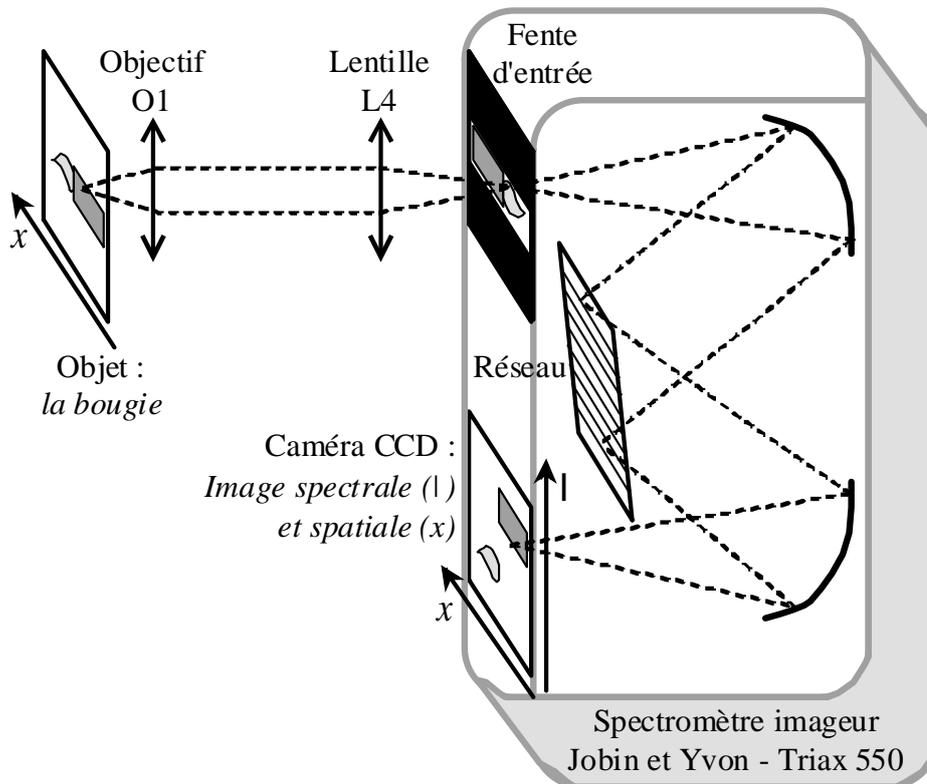


FIG. 2.2 – Procédé d'imagerie spatiale et spectrale, pour un objet 1D simple : une bougie dont la cire et la flamme ont deux couleurs différentes.

Ce procédé nous a par exemple permis de mettre en évidence des processus de diffusion

de porteurs activés thermiquement dans les chaînes polymères 3BCMU étudiées en μ -PL [45].

De l'importance des aberrations

Cette technique possède des limites importantes, en raison des aberrations optiques du spectromètre. Celui-ci ne transforme un objet ponctuel monochromatique dans le plan objet en un point dans le plan image, justifiant son appellation de spectromètre-imageur, qu'au voisinage proche de son point focal image. La résolution optique, spatiale comme spectrale, correspond à 1 pixel au point focal au centre de la CCD, mais n'est que de 5 pixels au bord de la CCD. Ces aberrations sont dues à l'utilisation de miroirs sous grande incidence dans le spectromètre. Même si dans le modèle Triax 550 le premier miroir possède une forme non sphérique optimisée pour l'imagerie, le champ utilisable avec la meilleure résolution n'est que de quelques millimètres dans le plan image, soit quelques centaines de pixels. Ce problème d'aberrations est très complexe, et la taille du champ ne pourrait être augmentée qu'en utilisant deux miroirs asphériques non mis au point à ce jour, ou bien des lentilles, dont le chromatisme constitue un inconvénient important. Le réglage et la maîtrise de la conjugaison des plans objet (les fentes du spectromètre) et image (la CCD) se sont avérés très complexes et peu pratiques, le spectromètre n'étant pas conçu pour un réglage fin. En particulier il est apparu que le point focal image est par construction décentré dans la direction spectrale de manière importante sur la matrice CCD.

En conclusion, il est important de constater que le meilleur (et le seul) spectromètre-imageur mis au point à ce jour n'est imageur avec sa résolution optimale que sur une petite partie du champ autour du point focal, point qu'il convient de déterminer proprement.

Vers l'imagerie en éclairage uniforme

La technique présentée précédemment permet de mettre en évidence des processus de diffusion au cours desquels la distribution spatiale des porteurs, et donc de la luminescence, est différente de celle de l'excitation. Dans la plupart des cas que nous avons étudiés, ces processus se sont révélés négligeables et la luminescence est émise depuis l'endroit où les porteurs ont été créés. Il est alors envisageable d'obtenir l'image, spatiale et spectrale, d'un échantillon éclairé uniformément, et d'obtenir ainsi des informations spatiales sur une zone d'échantillon de taille bien supérieure au micron.

Cette technique permet d'obtenir une image de l'échantillon entier, et nous l'avons utilisée pour deux études : d'une part en réalisant l'image de la luminescence de nanocristaux individuels déposés sur une lame de verre et séparés de quelques microns, nous avons ainsi pu déterminer leur position sur la lame (en collaboration avec Maxime Dahan et Jean-Pierre Hermier, du Laboratoire Kastler-Brossel à Paris); d'autre part, l'imagerie en réflectivité de microcavités légèrement désordonnées, dans lesquels l'épaisseur des couches formant le miroir de Bragg n'est pas parfaitement constante, nous a donné accès localement à la longueur d'onde de résonance de la cavité et à l'amplitude et la longueur caractéristique des inhomogénéités d'épaisseur sur l'échantillon (en collaboration avec Catherine Gourdon au sein de l'équipe). Au cours de ces expériences, nous avons cependant rencontré de nombreuses difficultés :

- La première d'entre elle concerne l'excitation, et l'obtention d'un éclairage uniforme de l'échantillon. La focalisation du faisceau élargi dans le plan focal arrière de l'objectif permet d'obtenir en aval de l'objectif un faisceau grossièrement parallèle,

d'une largeur de quelques millimètres, qui présente d'importantes inhomogénéités en raison du caractère monochromatique de la source (speckle). Il est a priori nécessaire d'utiliser par exemple un diffuseur en rotation pour rendre le faisceau homogène en moyenne au cours du temps.

- La seconde difficulté concerne la dimension du champ optique sur l'échantillon. En raison du caractère éclaté du microscope sur la table optique, les trajets étant de l'ordre de 50 *cm* à 1 *m*, il est difficile de conserver un champ large dans le plan objet tout au long du chemin optique. Celui-ci est d'environ 30 μm dans la configuration que nous avons utilisée.
- Le dernier problème rencontré est la qualité de l'imagerie dans le spectromètre, décrite précédemment. Alors que le spectre en $\mu\text{-PL}$, intégré dans la direction spatiale sur la caméra CCD, correspond bien à celui de la zone de 1 μm excitée, la résolution spatiale dépend en éclairage uniforme de la longueur d'onde, et n'est optimale que sur une petite partie du spectre. Ceci complique de manière importante l'interprétation des résultats de telles expériences.

Notons que cette technique a récemment été développée avec succès au laboratoire par C. Gourdon et V. Jeudy, à basse température et sans résolution spectrale, pour l'étude de la topologie et la dynamique des paquets de flux dans les couches minces supraconductrices par imagerie de la rotation Faraday [46].

2.3.2 Imagerie par balayage de l'excitation

En raison des difficultés inhérentes à l'imagerie résolue spectralement en éclairage uniforme, nous avons souhaité obtenir les mêmes informations par une technique différente et analogue en champ lointain au SNOM (scanning near-field optical microscope) en champ proche. L'idée est de déplacer de manière contrôlée le point d'étude sur l'échantillon, et d'enregistrer en chaque point les propriétés optiques locales, par exemple le spectre. Il faut pour cela déplacer l'objectif de microscope parallèlement à la surface de l'échantillon, ce que nous avons réalisé à l'aide d'une platine de déplacements piézoélectriques à 3 axes supportant l'objectif 01, spécialement développée par l'entreprise Cedrat (Fig. 2.3). Les déplacements dans les trois directions sont réalisés par des céramiques piézoélectriques alimentées par un amplificateur haute tension contrôlé informatiquement, et offrent une course de 200 μm avec une résolution inférieure à 50 *nm*. Le déplacement de l'objectif étant négligeable devant la taille du faisceau laser en amont de l'objectif, il ne modifie pas la tache d'excitation, qui subit simplement de manière rigide les translations de l'objectif.

L'image d'une portion de fil quantique est alors obtenue en déplaçant, en général par pas de 0,3 μm , l'objectif par rapport à l'échantillon de telle sorte que le point focal, et donc la zone excitée, balaye un fil quantique unique, suivant son axe (x). En chaque point le spectre de luminescence est enregistré à l'aide du spectromètre et de la caméra CCD, comme décrit précédemment. L'image spatiale et spectrale ainsi obtenue, que nous appellerons "**carte**" dans la suite du mémoire, fournit en fonction de la position le spectre local de la luminescence. Nous avons mesuré une résolution spatiale de 0,8 μm pour cette technique (cf Sec 3.1.1), meilleure que les 1,5 μm obtenus en imagerie de la luminescence. La résolution spatiale n'est pas limitée par la fonction de réponse du spectromètre, qui n'est pas utilisé en configuration imageur, mais dépend uniquement de la taille de la tache d'excitation.

Outre la possibilité de réaliser de telles cartes, l'utilisation de la platine de déplacements piézoélectriques a constitué une amélioration considérable des conditions

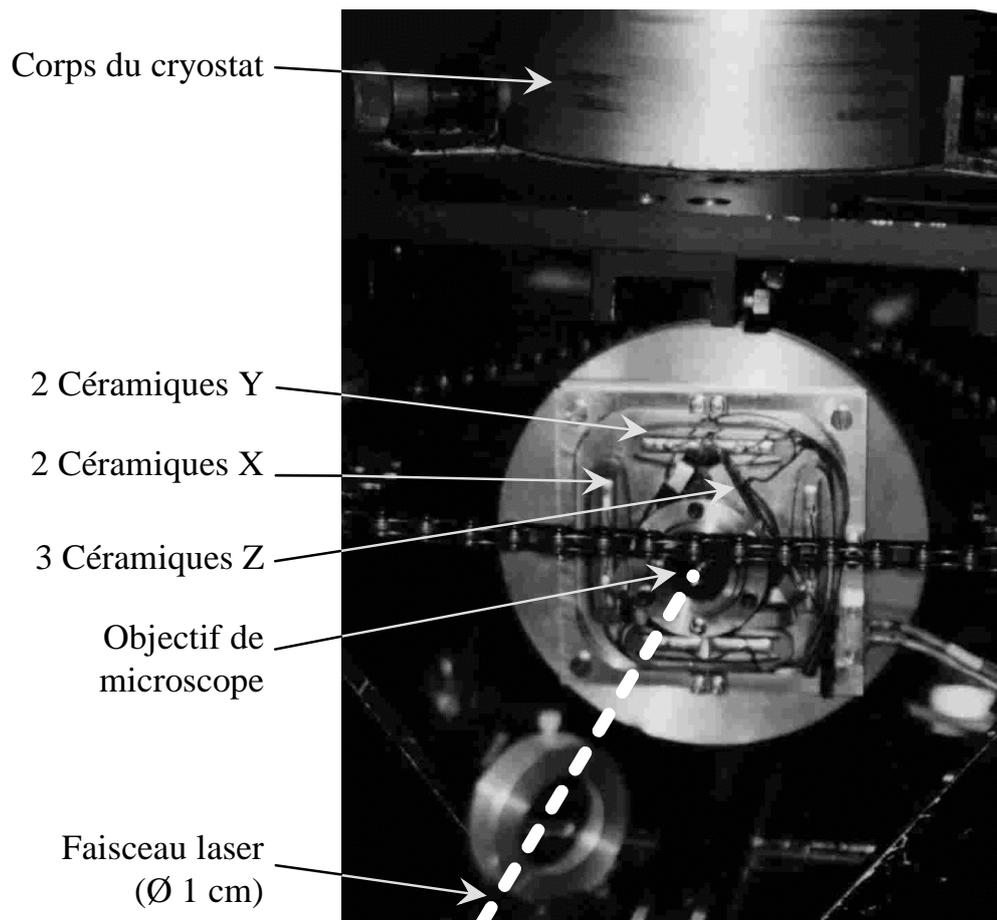


FIG. 2.3 – Photographie de la platine piézoélectrique de déplacement de l'objectif, montée sur la queue du cryostat

d'expérimentation. Ses déplacements sont beaucoup mieux contrôlés que ceux d'une platine des déplacements micrométriques manuels XYZ. De plus, la platine est directement fixée à la queue du cryostat, que nous allons décrire au prochain paragraphe, alors que les déplacements micrométriques étaient fixés à un rail sur la table optique. La longueur de la chaîne mécanique entre l'objectif et l'échantillon a ainsi été réduite, et avec elle l'influence des vibrations, dilatations et autres phénomènes sur la stabilité du dispositif. De plus le contrôle informatique et donc quantitatif des déplacements permet d'établir un repère sur l'échantillon, par exemple en se donnant pour origine une poussière à sa surface. Il a ainsi été possible de travailler plusieurs jours sur une même portion de fil quantique, malgré les aléas des cycles cryogéniques, et d'y réaliser un nombre d'expériences complémentaires beaucoup plus important que cela n'était envisageable en une journée de travail.

Des exemples de cartes de fils quantiques uniques figurent en section 3.1.

2.3.3 Des spectres “typiques” aux conclusions générales

Il est important de préciser ici comment le passage des études locales aux conclusions générales a été effectué, en particulier lorsque plusieurs échantillons sont comparés.

Dans la section 3.1, nous établissons le lien entre les propriétés caractéristiques du désordre, obtenues par imagerie d'excitation, et les techniques d'élaboration des échantillons. Les cartes qui y sont présentées sont représentatives de l'échantillon, même si nous n'avons observé sur chacun d'entre eux que quelques dizaines de fils, dont les propriétés générales sont relativement homogènes dans la zone de $100 \mu\text{m}$ observée. Ces mesures locales sont de plus corrélées à des mesures de PL et PLE globales sur l'échantillon. Enfin, nous présentons dans cette section des résultats statistiques, obtenus à partir des cartes. Nous faisons ainsi le lien entre les études de $\mu\text{-PL}$, qui donnent accès aux propriétés d'un endroit donné de l'échantillon, et les études de macro-PL, dont les résultats sont moyennés sur l'échantillon : l'étude statistique des cartes nous fournit la distribution des informations locales, qui sont masquées en macro-PL, et l'élargissement inhomogène de cette distribution, non accessible par une unique expérience de $\mu\text{-PL}$.

L'étude des propriétés optiques des excitons dans le fil (Chap. 4) a été réalisée le plus souvent sur des endroits représentatifs de l'échantillon, dans le même sens que décrit précédemment, voire même sur un ensemble statistique de fils. Néanmoins il est à noter que les résultats présentés sur les figures 4.15 et 5.8, qui porte sur un îlot étendu et parfait sur plus de $3 \mu\text{m}$, a été réalisée sur un fil “exceptionnel”, qui ne saurait représenter l'ensemble de l'échantillon. Nous discuterons donc les propriétés qui lui sont spécifiques et celles qui peuvent être généralisées à l'échantillon entier.

2.4 La cryogénie

Le cryostat est au centre du dispositif expérimental, même s'il n'est apparu qu'implicitement, dans la description qui vient d'en être faite, comme un simple support d'échantillon. Toutes les expériences ont en effet été réalisées à basse température, l'échantillon étant fixé sur le doigt froid d'un cryostat. La grande difficulté technique est d'éliminer d'une part les vibrations induites par l'évaporation de l'hélium et l'azote liquides, et d'autre part les déplacements résultant de dilatations des différents matériaux au cours du fonctionnement du cryostat.

Un cryostat spécifique a donc été développé au sein du laboratoire conjointement avec Dimitri Roditchev, en 1996, garantissant la stabilité de l'échantillon à la fraction de micron près durant plusieurs heures (fig. 2.4). Il doit de plus être conçu de telle sorte que l'échantillon soit très proche de la fenêtre optique du cryostat, la distance frontale de l'objectif O1 étant de seulement $5,6\text{ mm}$. Il est basé sur un cryostat à doigt froid, qui comprend un vase rempli d'azote liquide à 77 K entourant un vase contenant de l'hélium liquide ($4,2\text{ K}$), le tout dans une enceinte de vide secondaire. L'échantillon est fixé sur un porte-échantillon lui-même relié thermiquement au doigt froid par une tresse de fils souples de cuivre. Il est fixé mécaniquement à l'enceinte extérieure du cryostat, beaucoup plus stable mécaniquement, par l'intermédiaire d'un disque évidé de fibre de verre, rigide mécaniquement mais de très faible conductivité thermique. Des tresses de cuivre relient aussi au vase à azote liquide un cache à azote, qui protège le porte-échantillon d'une partie du rayonnement extérieur et augmente l'autonomie du cryostat.

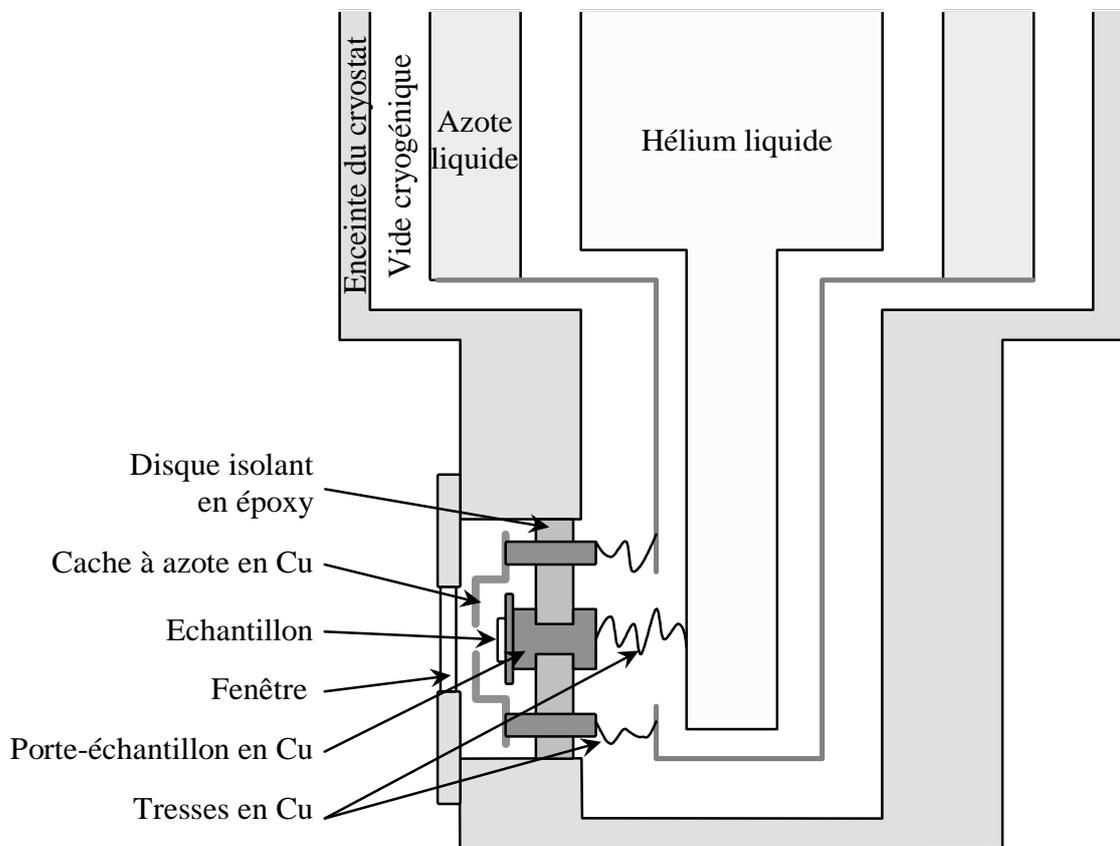


FIG. 2.4 – Schéma du cryostat de microluminescence

2.4 La cryogénie

La température du porte-échantillon est dans ces conditions de 6 K . Elle ne peut pas être réduite, même en pompant sur le vase d'hélium liquide pour amener sa température à $1,8\text{ K}$, en raison des fuites thermiques. Il est par contre souvent nécessaire de pouvoir travailler à des températures plus élevées, et un autre porte-échantillon a été développé pour permettre des études à températures variables entre 10 K et 300 K . Il est constitué de deux pièces de cuivre séparées par une plaque de fibres de verre, l'une étant soudée à la tresse de cuivre et l'autre supportant l'échantillon. La température de la première pièce est donc de 6 K . Les deux pièces sont reliées par un mince fil de cuivre, de conductivité thermique calibrée, de telle sorte que la pièce portant l'échantillon est à une température de 10 K . Deux résistances Allen-Bradley sont fixées à la deuxième pièce, l'une permettant de la chauffer lorsqu'on lui applique une tension de quelques volts et l'autre d'en mesurer la température par l'intermédiaire de sa résistance. La température de l'échantillon est ainsi ajustable entre 10 et 100 K , et entre 80 et 300 K si le cryostat n'est rempli que d'azote liquide.

La stabilité du cryostat est parfaitement adaptée aux études optiques que nous réalisons : le spectre de μ -PL d'un fil quantique, caractéristique de l'endroit étudié, est le même après 7 h d'expériences, prouvant que les déplacements sont bien inférieurs au micron. Elle est en particulier supérieure aux modèles commerciaux standard. Un nouveau prototype de cryostat est actuellement développé dans notre équipe par Michel Menant, permettant notamment de réaliser des expériences de μ -PL avec trois accès optiques à l'échantillon.

Chapitre 3

Le désordre dans les fils quantiques

Le désordre local dans les hétérostructures semiconductrices se traduit par deux signatures spectrales, comme nous l'avons entrevu à la fin du premier chapitre : l'élargissement inhomogène de la transition en luminescence, et le décalage entre la raie de luminescence et la raie d'absorption, aussi appelée Stokes shift, visible en particulier dans les spectres d'excitation de la luminescence (PLE) à basse température. La cause principale de désordre, identifiée tout d'abord dans les puits quantiques [47] et depuis dans les fils quantiques, est la rugosité des hétéro-interfaces séparant les différents matériaux, qui induit une inhomogénéité spatiale du confinement des porteurs. Autrement dit, les interfaces entre matériaux puits et barrière ne sont pas planes à la monocouche atomique près. Dans le cas d'un puits quantique son épaisseur fluctue sur l'échantillon. Lorsque le puits est mince (de l'ordre de 10 à 20 monocouches), une variation d'une seule monocouche de son épaisseur L_z modifie localement son énergie ($\propto 1/L_z^2$) de 10 à 20 %, ce qui explique l'inhomogénéité du spectre de luminescence. Le même phénomène se produit dans les fils quantiques, mais de manière plus complexe en raison du nombre plus important d'hétérointerfaces en jeu dans le confinement des porteurs (Sec. 1.3.2). Nous pouvons remarquer que cette même idée est utilisée pour obtenir des boîtes quantiques de type Stransky-Krastanov, qui peuvent être vues comme des fluctuations beaucoup plus importantes de l'épaisseur de la couche de mouillage (wetting layer) qui les porte, dont les interfaces sont instables en raison des fortes contraintes [48].

Les fluctuations spatiales de l'énergie de confinement peuvent être vues comme un potentiel désordonné agissant sur les porteurs. Ce potentiel modifie les états propres des porteurs. Dans les systèmes de dimensions 2 et 3, si l'inhomogénéité spatiale et l'amplitude de ce potentiel reste "modérée", les états électroniques restent dispersifs, mais si le désordre est suffisamment important les états électroniques, en particulier ceux de basse énergie, sont localisés. Ce problème peut être compris de manière alternative en termes de percolation. L'effet est d'autant plus important dans les systèmes unidimensionnels, où nous savons depuis les travaux d'Anderson [50] puis de Thouless [51] que l'existence d'un potentiel désordonné induit une localisation des porteurs, *quelle que soit leur énergie*, car elle interdit toute percolation à travers le système. Il faut cependant noter que ce phénomène de localisation spécifique aux systèmes de dimension 1 ne pourrait être important que dans les expériences de transport, où tous les états électroniques peuvent être sondés, alors que dans les expériences d'optique seuls les états de bas de bande, qui concentrent toute la force d'oscillateur, interviennent directement dans l'absorption ou l'émission de lumière. La localisation des états de bas de bande peut en effet être comprise de manière plus simple, quelle que soit la dimension, lorsque le potentiel désordonné

présente des minima locaux.

La localisation des porteurs modifie la nature de leurs états, et par conséquent leurs propriétés. Lorsque des porteurs sont localisés dans un minimum local, son extension spatiale L doit être comparée au rayon de Bohr a_X de l'exciton et à la longueur d'onde thermique de de Broglie $\lambda_{Th} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}}$ [49, ch. 3 §B.3, p. 296], qui valent respectivement environ 70 Å et 500 Å à $T = 10$ K dans notre système. En effet ce sont les porteurs, électron et trou, qui sont confinés si $L \ll a_X$ alors que le confinement agit sur le centre de masse de l'exciton si $L \gg a_X$, ce qui sera toujours le cas dans nos fils quantiques. De plus si $L \ll \lambda_{Th}$, le défaut se comporte comme une boîte quantique, avec des états discrets, dont seul l'état fondamental est peuplé thermiquement, alors que pour $L \gg \lambda_{Th}$, le défaut se comporte comme une portion de fil quantique, dont les états bien que discrets forment un quasi-continuum peuplé thermiquement.

Nous comparerons les propriétés optiques, locales comme macroscopiques, de deux générations de fils quantiques. Ceux satisfaisant à la condition $L \gg \lambda_{Th}$, baptisés “fils en régime 1D”, possèdent des propriétés très différentes de celles de fils quantiques épitaxiés avant 1999, dans lesquels $L \approx \lambda_{Th}$ et baptisés “fils en régime 0D”¹. Ces deux générations d'échantillons se distinguent par les améliorations des techniques d'élaboration mises en oeuvre par X.L. Wang en 2000. Nous étudierons la transition entre ces deux régimes, en fonction de la longueur de localisation L , et caractériserons le désordre de rugosité d'hétéro-interfaces, son amplitude et ses différentes échelles de longueur, par notre technique d'imagerie à balayage d'excitation.

Nous verrons enfin que les autres causes de désordre, d'ordre de grandeur plus faible, deviennent sensibles dans les fils en régime 1D, dans lesquels il n'existe plus localement de désordre dû aux rugosités d'interfaces.

1. Les échantillons en régime 0D et 1D sont immatriculés respectivement M (par exemple M127) et NM (par exemple NM79).

3.1 La caractérisation du désordre en imagerie

3.1.1 Fils quantiques de l'ancienne génération

La figure 3.1.a présente une carte obtenue par imagerie par balayage d'excitation (cf Sec. 2.3.2) de l'échantillon appelé M127, sur lequel ont été menées les études de dynamique de relaxation et de recombinaison en fonction de la taille de la boîte quantique localisant les excitons [23, 52, 53]. Un spectre de μ -PL pris à la position $x = 12 \mu m$ est aussi présenté sur la figure 3.1.b. Les spectres de μ -PL sont constitués de pics correspondant chacun à l'état fondamental d'une boîte quantique présente dans la zone excitée, i.e. d'un minimum du potentiel désordonné, comme l'ont montré les travaux de Joël Bellessa. Chacun de ces états fondamentaux donne lieu sur la carte à une tache, dont l'extension spatiale est limitée par la résolution spatiale de l'expérience, soit environ $1 \mu m$, et la largeur spectrale est le plus souvent limitée par la résolution du spectromètre, soit $100 \mu eV$ dans le cas présent.

En comptant le nombre de taches présentes sur la carte, nous pouvons estimer la densité de minima du potentiel désordonné, de l'ordre de $10 \mu m^{-1}$ et compatible avec les tailles de boîtes de 20 à 100 nm déduites des spectres de μ -PLE sur le même échantillon [23, 52].

Analyse statistique de la carte et transformée de Fourier

Les images spatiales et spectrales de fils quantiques, en particulier les cartes obtenues par balayage de l'excitation, fournissent au premier abord une représentation visuelle du désordre dans le fil quantique. Elles permettent de mettre en évidence des structures spatiales, et de mesurer la densité linéique de défauts par comptage des taches qui leur sont associées. Pour obtenir des informations plus fines, il est utile de réaliser un traitement statistique des données, qui permet de définir la forme spectrale et spatiale d'un "pic moyen", c'est-à-dire le spectre de luminescence moyen et la distribution spatiale moyenne des états localisés dans la portion de fil étudiée. Nous mettrons aussi en évidence d'éventuelles corrélations spectrales ou spatiales entre états localisés. Ces études seront réalisées conjointement dans l'espace direct et dans l'espace réciproque, qui fournissent des informations complémentaires.

Modélisation d'une carte. Le calcul des fonctions d'autocorrélation, qui donnent accès aux informations statistiques, a été réalisé à partir des transformées de Fourier des cartes. Pour interpréter ces données, nous devons modéliser l'information contenue dans une carte. Nous supposons dans un premier temps que sur un même fil quantique les pics de μ -PL ont tous la même forme spectralement et spatialement, que nous caractérisons par des distributions $u_E(E)$ et $u_x(x)$ centrées en 0 et d'intégrale 1. Une carte est constituée de N pics, caractérisés chacun par son énergie E_n , sa position x_n et l'intensité A_n de sa luminescence, avec $n = 1, \dots, N$. Le signal $F(E, x)$ recueilli en μ -PL à l'énergie E et la position x s'écrit :

$$\begin{aligned} F(E, x) &= \sum_n A_n u_E(E - E_n) \times u_x(x - x_n) \\ &= (u_E(E) \times u_x(x)) \otimes \sum_n A_n \delta(E - E_n) \delta(x - x_n). \end{aligned} \quad (3.1)$$

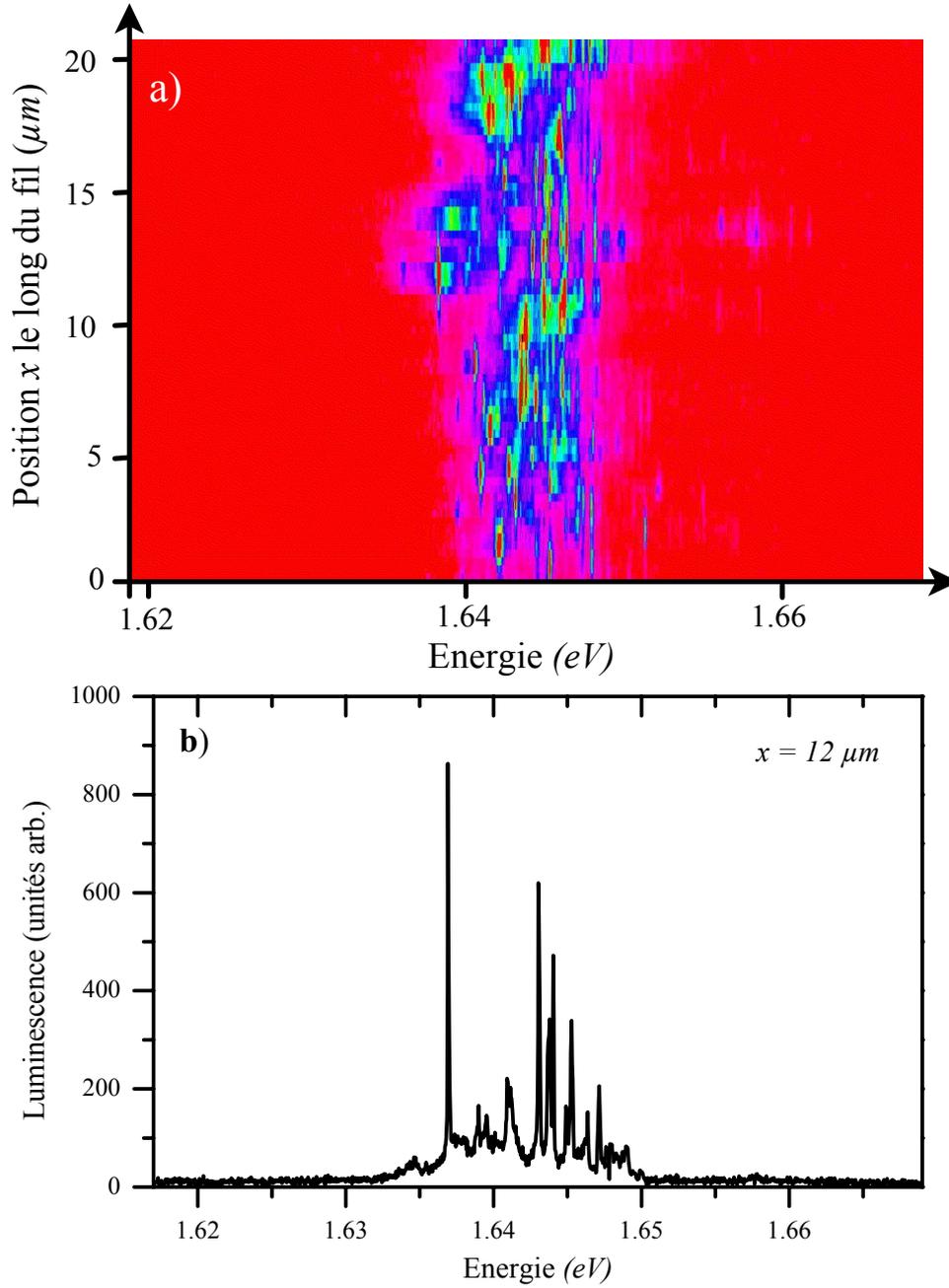


FIG. 3.1 – (a) Carte d'un échantillon (M127) de l'ancienne génération, à faible puissance d'excitation ($P = 50 \text{ W.cm}^{-2}$ à 1,74 eV, dans la transition $e3h3$ du fil). (b) Spectre de $\mu\text{-PL}$ correspondant à la position $x = 12 \mu\text{m}$.

Il apparaît donc comme la convolution de la fonction $u = u_E \times u_x$ relative au pic seul par la distribution des positions (spectrales et spatiales) des pics :

$$D(E,x) = \sum_n A_n \delta(E - E_n) \delta(x - x_n).$$

La transformée de Fourier \tilde{F} du signal F s'écrit donc simplement comme le produit des transformées de Fourier respectives \tilde{u} de u et \tilde{D} de D [54]. Les largeurs spectrales et spatiales de la fonction u sont plus petites que les distances moyennes entre pics, ce qui se traduit dans l'espace réciproque par une transformée de Fourier reflétant \tilde{u} , lentement variable, et modulée par \tilde{D} , qui varie plus rapidement. Notons que les cartes sont constituées de pixels et que nous calculons donc dans la pratique des séries de Fourier, même si nous continuerons l'exposé en termes de transformées de Fourier².

La transformée de Fourier spatiale et spectrale de la carte est représentée, en module, en figure 3.2. Elle est singulière sur les axes $k = 0$ et $s = 0$, ce qui sera expliqué dans cette section. En dehors des axes, elle apparaît au premier abord comme le produit d'une composante spatiale et d'une composante spectrale indépendantes, même si ce n'est pas exactement le cas. Les largeurs des transformées spatiales et spectrales sont de l'ordre des inverses des largeurs de pics observées dans l'espace réel.

Analyse spectrale. Les informations relatives à la forme spectrale u_E des pics, ou à la différence d'énergie entre deux pics, sont indépendantes de l'énergie E_n du pic et sont donc à chercher dans l'autoconvolution du spectre, c'est-à-dire dans le module au carré de sa transformée de Fourier qui s'écrit :

$$|\tilde{F}(s,k)|^2 = |\tilde{u}_E(s)|^2 |\tilde{u}_x(k)|^2 \left(\sum_n |A_n|^2 + \sum_{n \neq m} A_n^* A_m e^{i s(E_m - E_n) + i k(x_m - x_n)} \right).$$

Le premier terme de la somme contient les informations sur le pic moyen $u_E(E) \times u_x(x)$ et le deuxième terme les corrélations énergétiques et spatiales entre les différents pics. Notons qu'en $(s = 0, k = 0)$, la transformée de Fourier est simplement égale à l'intensité totale intégrée sur la carte, ce qui explique sa singularité. Pour obtenir des informations microscopiques relatives à chaque spectre et non au spectre moyen, il est important de

2. Les conventions utilisées sont les suivantes :

- pour les transformées de Fourier,

$$\tilde{f}(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dx f(x) e^{i k x} \tag{3.2}$$

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dk f(k) e^{-i k x} \tag{3.3}$$

- pour les séries de Fourier, sur un réseau de $2M + 1$ sites $x_m = mL/2M$, $m = -M, \dots, M$ couvrant un intervalle $[-L/2, L/2]$, et des vecteurs d'onde $k_{m'} = m' 2\pi/L$ avec $m' = -M, \dots, M$ dans l'espace réciproque,

$$\tilde{f}(k_{m'}) = \frac{1}{\sqrt{M}} \sum_m f(x_m) e^{i k_{m'} x_m} \tag{3.4}$$

$$f(x_m) = \frac{1}{\sqrt{M}} \sum_{m'} f(k_{m'}) e^{-i k_{m'} x_m}. \tag{3.5}$$

Les vecteurs d'ondes et l'intervalle d'étude seront notés respectivement k et L pour les positions, et s et Σ pour les énergies.

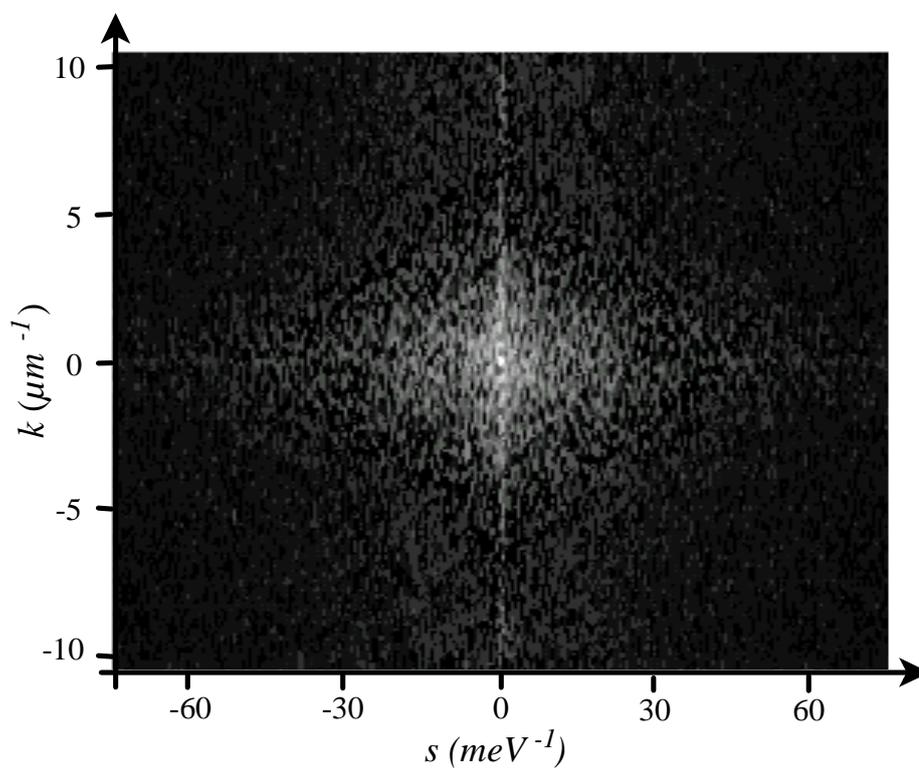


FIG. 3.2 – Transformée de Fourier spectrale (horizontalement) et spatiale (verticalement) de la carte présentée en figure 3.1. Les niveaux de gris sont proportionnels au logarithme décimal de la fonction (noir=0,5, blanc=3,5).

réaliser la moyenne spatiale de la bonne manière [55]. Nous allons dans ce paragraphe définir trois grandeurs qui sont représentées dans l'espace réciproque et dans l'espace réel sur la figure 3.3: l'autoconvolution spectrale $R(E)$ et sa composante non corrélée $R_0(E)$, ainsi que l'autocorrélation $R_c(E)$.

L'**autoconvolution non corrélée** $R_0(E)$ (Fig. 3.3.b) est définie par³:

$$R_0(E) = \langle \langle F(E', x) \rangle_x \langle F(E - E', x) \rangle_x \rangle_{E'}.$$

Elle est l'autoconvolution spectrale du spectre moyenné spatialement. Dans la limite des fils très longs ($L \rightarrow \infty$), le spectre moyenné est la raie de macro-luminescence, et ne porte plus d'information sur la forme spectrale des pics de μ -PL. Elle reflète uniquement l'autoconvolution de la distribution spectrale des pics:

$$\langle D(E, x) \rangle_x = \frac{1}{N} \sum_n A_n \delta(E - E_n).$$

Sa transformée de Fourier est $\tilde{R}_0(s) = \langle |\tilde{F}(s, k)|^2 \rangle_k$. Si l'échantillon est assez grand, c'est-à-dire si la carte est assez étendue, alors elle vaut $\langle |\tilde{D}(s, k)|^2 \rangle_k$. $R_0(E)$ est essentiellement composée d'une raie large, gaussienne au premier ordre, de largeur 10 meV , soit environ $\sqrt{2}$ fois la largeur inhomogène de la macro-luminescence. Elle présente aussi un petit pic fin autour de $E = 0$, ainsi qu'une bosse au voisinage de $\pm 30 \text{ meV}$, tous deux dus à la taille finie de la carte étudiée. Les structures correspondantes peuvent être identifiées dans sa transformée de Fourier. Le pic fin autour de $s = 0$ est associé à la raie large, et le fond beaucoup plus faible et très large dans l'espace réciproque au pic fin observé en $E = 0$.

L'**autoconvolution** $R(E)$ (Fig. 3.3.a) est définie par:

$$R(E) = \langle \langle F(E', x) F(E - E', x) \rangle_{E'} \rangle_x.$$

Elle est la moyenne spatiale de l'autoconvolution spectrale prise à chaque position. Sa transformée de Fourier est $\tilde{R}(s) = |\tilde{F}(s, k=0)|^2$. Cette quantité peut être décomposée en une partie moyenne, non corrélée ($R_0(E)$), et une partie corrélée spatialement, $R_c(E) = R(E) - R_0(E)$. Elle présente les mêmes structures que $R_0(E)$, mais dans des proportions différentes: le pic fin autour de $E = 0$ y est beaucoup plus prononcé que pour $R_0(E)$, alors que la raie large est d'amplitude très voisine.

La différence des deux autoconvolutions, $R_c(E) = R(E) - R_0(E)$ (Fig. 3.3.c), est l'**autocorrélation des spectres**. Elle reflète essentiellement la forme des pics, $u_E(E)$, pour les petites valeurs de E , et la probabilité d'existence d'un deuxième pic à la même position, aux plus grandes valeurs de E . C'est cette quantité qui porte l'information microscopique. Elle est essentiellement composée du pic fin, même si la raie large persiste.

Notons que $R_c(E)$ est l'autocorrélation spatiale du spectre local, et que le pic fin central n'est pas égal à $u_E(E)$ mais à l'autoconvolution de $u_E(E)$. Si u_E est une lorentzienne, son autoconvolution est aussi une lorentzienne, de largeur deux fois plus grande; alors que si u_E est une gaussienne son autoconvolution est aussi une gaussienne, mais de largeur $\sqrt{2}$ fois plus grande. Et dans la pratique nous ne connaissons pas a priori la forme de la raie, puisque c'est l'un des objets de l'étude statistique. Nous pouvons tout d'abord

3. Les crochets $\langle \dots \rangle_X$ désignent la moyenne statistique sur la variable X , sur l'échantillon statistique que représente la carte.

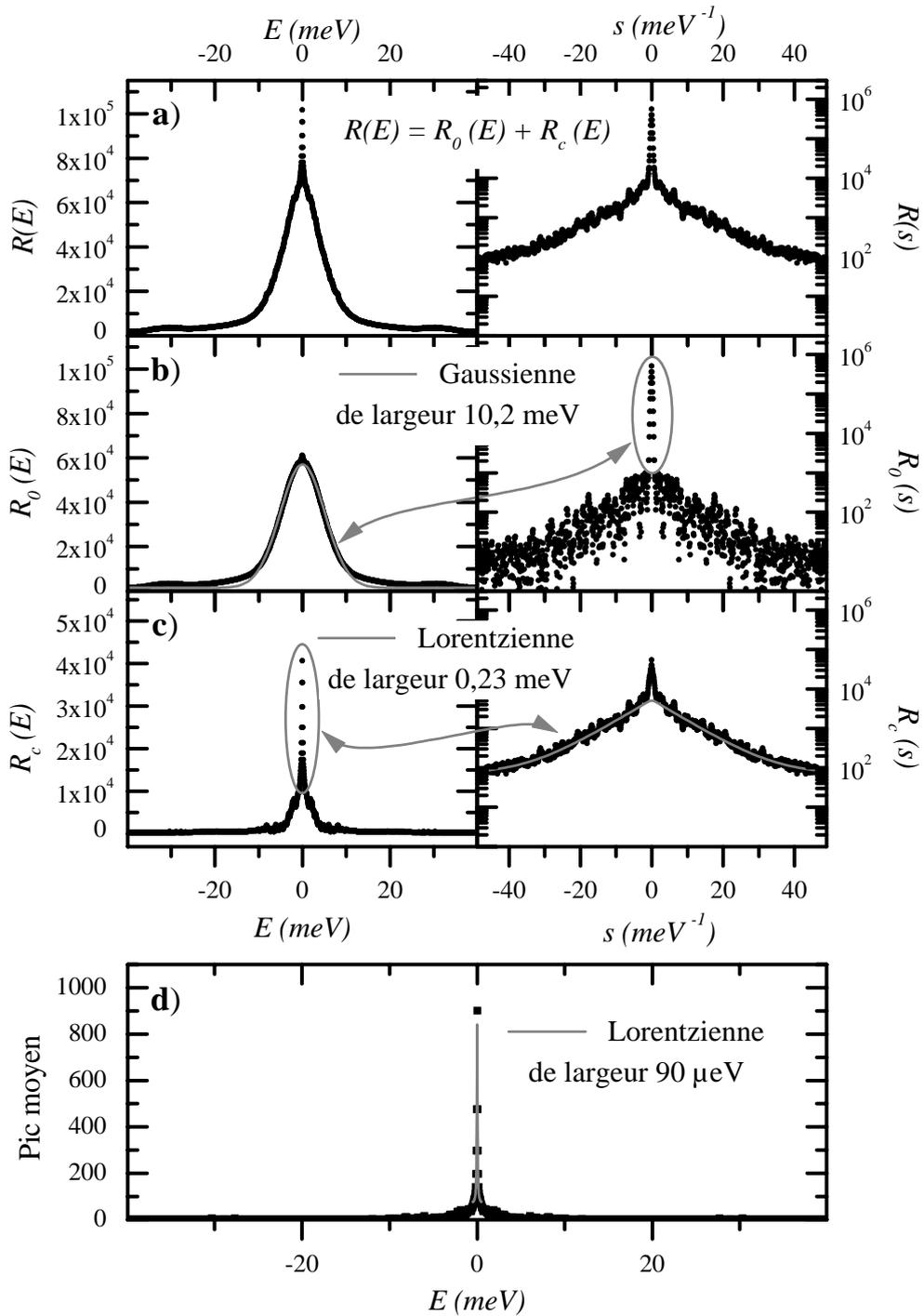


FIG. 3.3 – (a) Autoconvolution spectrale $R(E)$; (b) sa composante non corrélée spatialement $R_0(E)$; (c) l'autocorrélation $R_c(E) = R(E) - R_0(E)$, dans l'espace réciproque et l'espace des énergies; (d) Forme spectrale $f_c(E)$ du "pic moyen".

considérer la transformée de Fourier de la fonction $f_c(E)$ dont R_c est l'autoconvolution⁴, i.e. $\tilde{f}_c(s) = \sqrt{|\tilde{R}_c(s)|}$. Sa forme doit en effet être du type $e^{-|s|\Gamma}$ pour une lorentzienne de largeur Γ , et du type $e^{-s^2\sigma^2/2}$ pour une gaussienne de largeur σ . La transformée de Fourier $\tilde{R}_c(s)$ présentée sur la figure (Fig. 3.3.c) est très bien reproduite par une exponentielle décroissante, superposée à un fond continu et à un pic en $s = 0$ dû au reste de la raie large de $R_0(E)$ non éliminé lors de la corrélation. Le caractère exponentiel de $\tilde{R}_c(s)$ va de pair avec le caractère relativement lorentzien du pic de $R_c(E)$ dans l'espace des énergies. Le fond continu se traduit par un écart à la lorentzienne en $E = 0$, et est vraisemblablement dû aux "coups noirs", de forte intensité et localisés spectralement et spatialement sur un seul pixel, présents dans la carte initiale et générés lors de l'acquisition. La forme $f_c(E)$ du "pic moyen" de μ -PL peut alors être obtenue, si on la suppose symétrique, en calculant la transformée de Fourier inverse de $\tilde{f}_c(s)$, présentée sur la figure 3.3.d. Ce pic fin, similaire aux pics de μ -PL pris sur des spectres individuels, a une largeur à mi-hauteur inférieure à $100 \mu eV$, soit 2 pixels de la caméra CCD du spectromètre, et est limité par la résolution spectrale du dispositif. Le fond sous-jacent au pic est vraisemblablement dû à un résidu de la partie non corrélée $R_0(E)$.

Les pics-satellites de $R_c(E)$ reflètent les corrélations entre énergies des pics de μ -PL à une même position. Leur distribution a une largeur d'environ $3 meV$, qui correspond à l'énergie moyenne entre deux états localisés voisins spatialement, et est du même ordre de grandeur que la variation d'énergie attendue pour des fluctuations de l'interface latérale (311) du fil quantique. Ceci sera visible plus clairement dans l'analyse des cartes obtenues sur les fils de la nouvelle génération (Sec. 3.1.2). Cette distribution est constituée de pics fins qui sont des signatures de l'échantillonnage fini, comme le montre la figure 3.4, qui présente $R_c(E)$ calculé pour la carte analysée dans ce paragraphe et pour une autre carte réalisée sur le même échantillon, sur une longueur de $12 \mu m$. Les pics-satellites diffèrent entre ces deux cartes, et la somme des deux auto-corrélations obtenues est plus régulière. C'est l'étude de $R_c(E)$ calculée sur des images en champ proche (SNOM) de puits quantiques désordonnés qui a permis de mettre en évidence l'effet de "répulsion de niveaux" [55], qui sera repris plus en détail à la section 3.3.4.

Analyse spatiale. Les mêmes fonctions de corrélation peuvent être étudiées spatialement (Fig. 3.5), en intervertissant énergie et position dans la description donnée précédemment. Elles seront dénotées R' , R'_0 et R'_c . La figure 3.5.b présente l'autoconvolution spatiale non corrélée spectralement $R'_0(x)$. Elle est essentiellement constante, contrairement à son analogue spectrale $R_0(E)$. Les énergies E_n des pics sont en effet distribuées suivant un spectre de largeur finie, gaussien en première approximation, alors que leurs positions x_n sont distribuées de manière équiprobable sur l'intégralité du fil. Cela montre que la luminescence est émise de manière uniforme le long du fil à l'échelle du micron.

L'autocorrélation $R'_c(x)$ est composée d'un fond constant dû aux corrélations aléatoires entre pics de même énergie à des positions différentes, et d'un pic fin centré sur $x = 0$. Celui-ci est l'autoconvolution de la forme spatiale f'_c du "pic moyen" représenté en fig. 3.5.d, lorentzien en première approximation et de largeur à mi-hauteur $0,8 \mu m$,

4. En supposant que la fonction $f_c(E)$ est paire, sa transformée de Fourier doit être réelle et il n'est plus nécessaire d'en connaître la phase. La transformée de Fourier inverse de $\sqrt{|\tilde{R}_c(k)|}$ constitue donc une approximation de f_c dans laquelle sa composante impaire est négligée. L'observation de la transformée de Fourier $\tilde{R}_c(s)$ s'avère donc plus rigoureuse que celle de $\tilde{f}_c(s)$, et est plus simple dans la pratique.

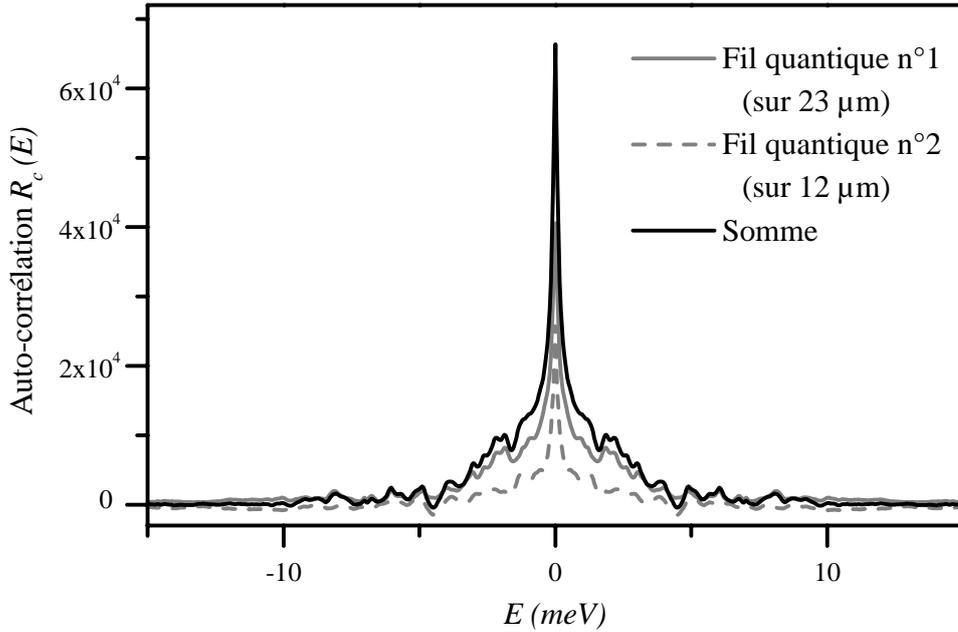


FIG. 3.4 – Autocorrélation $R_c(E) = R(E) - R_0(E)$ pour deux cartes obtenues sur le même échantillon (M127), et leur somme.

limitée par la résolution optique du dispositif. f'_c n'apporte donc pas d'information sur l'extension spatiale des états localisés. C'est donc le profil de la tache d'excitation. $f'_c(x)$ n'est ni une gaussienne, ni une tache d'Airy, car l'objectif de microscope n'est éclairé ni par un faisceau parfaitement gaussien, ni par une onde plane. Nous pouvons noter qu'il présente des ailes, faibles, entre 1 et 3 μm , qui limitent la sélectivité spatiale permise par l'expérience de μ -PL.

3.1.2 Fils quantiques de la nouvelle génération

La figure 3.6.a présente une carte de l'échantillon appelé NM79, de fabrication plus récente. Des spectres de μ -PL pris sont aussi présentés sur la figure 3.6.b. Les spectres de μ -PL sont dans ce cas constitués de pics moins nombreux et plus larges spectralement (environ 1 meV). L'extension spatiale des taches correspondantes sur la carte est souvent proche de la résolution spatiale de l'expérience, soit 0,8 μm .

La densité de taches est seulement de 2 μm^{-1} , et certaines taches ont une extension spatiale supérieure à la résolution spatiale de l'expérience, par exemple 3 μm à $x = 16 \mu\text{m}$. Nous associons chaque pic à la luminescence d'excitons depuis des zones étendues selon l'axe du fil. L'observation de taches d'extension supérieure au micron et donc résolues spatialement montre que le potentiel désordonné est constant à ± 1 meV dans la zone correspondante, et que les hétéro-interfaces en jeu dans le confinement des porteurs n'y présente pas de fluctuation à l'échelle de la monocouche dans toutes les directions. Reprenant la dénomination adoptée dans les puits quantiques, nous appellerons de telles zones sans fluctuations des **îlots**.

La possibilité de mieux résoudre spatialement la position de chaque îlot nous permet d'analyser plus finement leur distribution spatiale et spectrale. Des structures mésoscopiques sont en effet révélées par l'imagerie. La carte présentée en figure 3.6 montre en effet que les fluctuations des hétéro-interfaces peuvent être très limitées sur des lon-

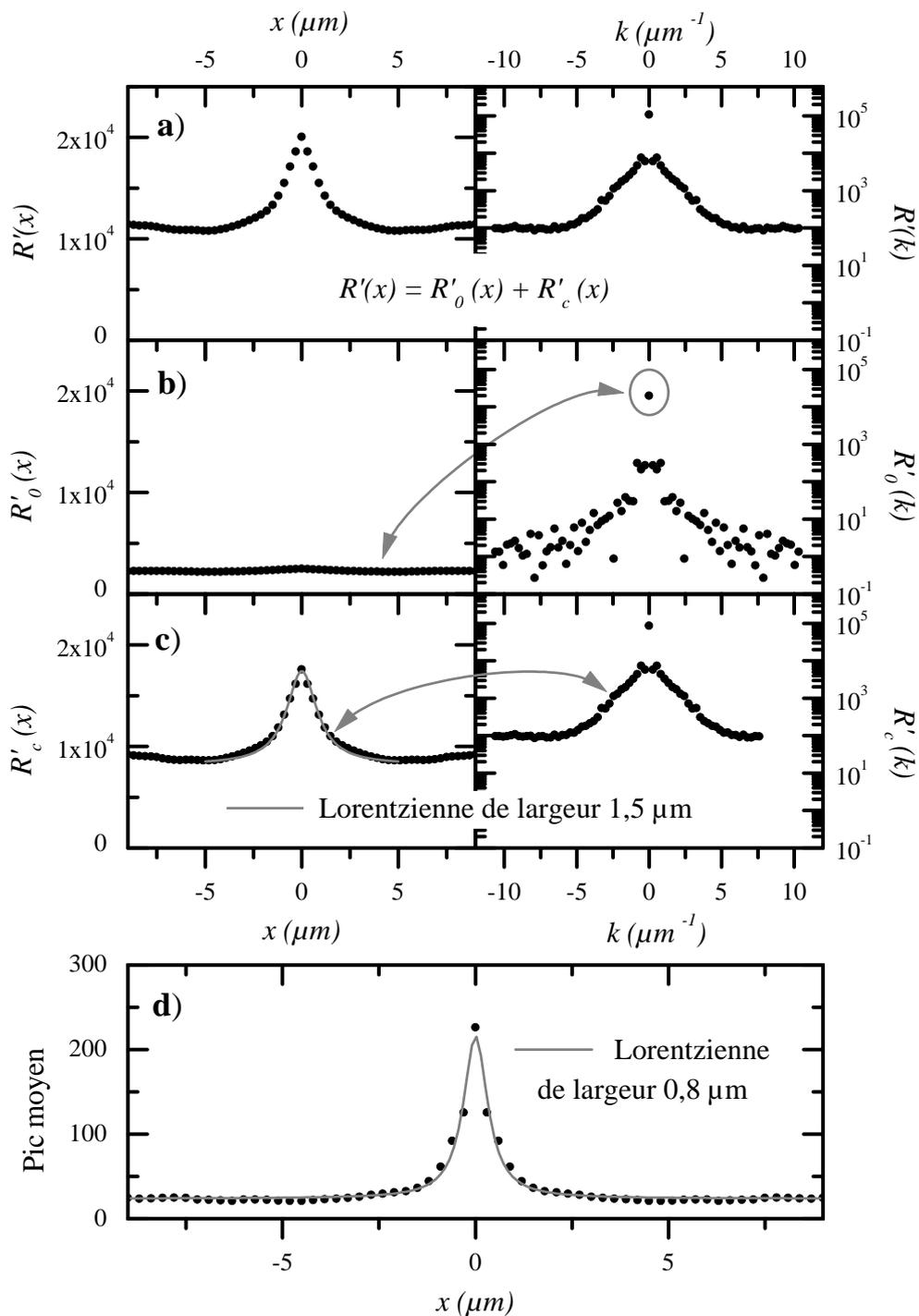


FIG. 3.5 – (a) Autoconvolution spatiale $R'(x)$, (b) sa composante non corrélée spectralement $R'_0(x)$ et (c) l'autocorrélation $R'_c(x) = R'(x) - R'_0(x)$, dans l'espace réciproque et l'espace réel; (d) la forme spatiale $f'_c(x)$ du "pic moyen".

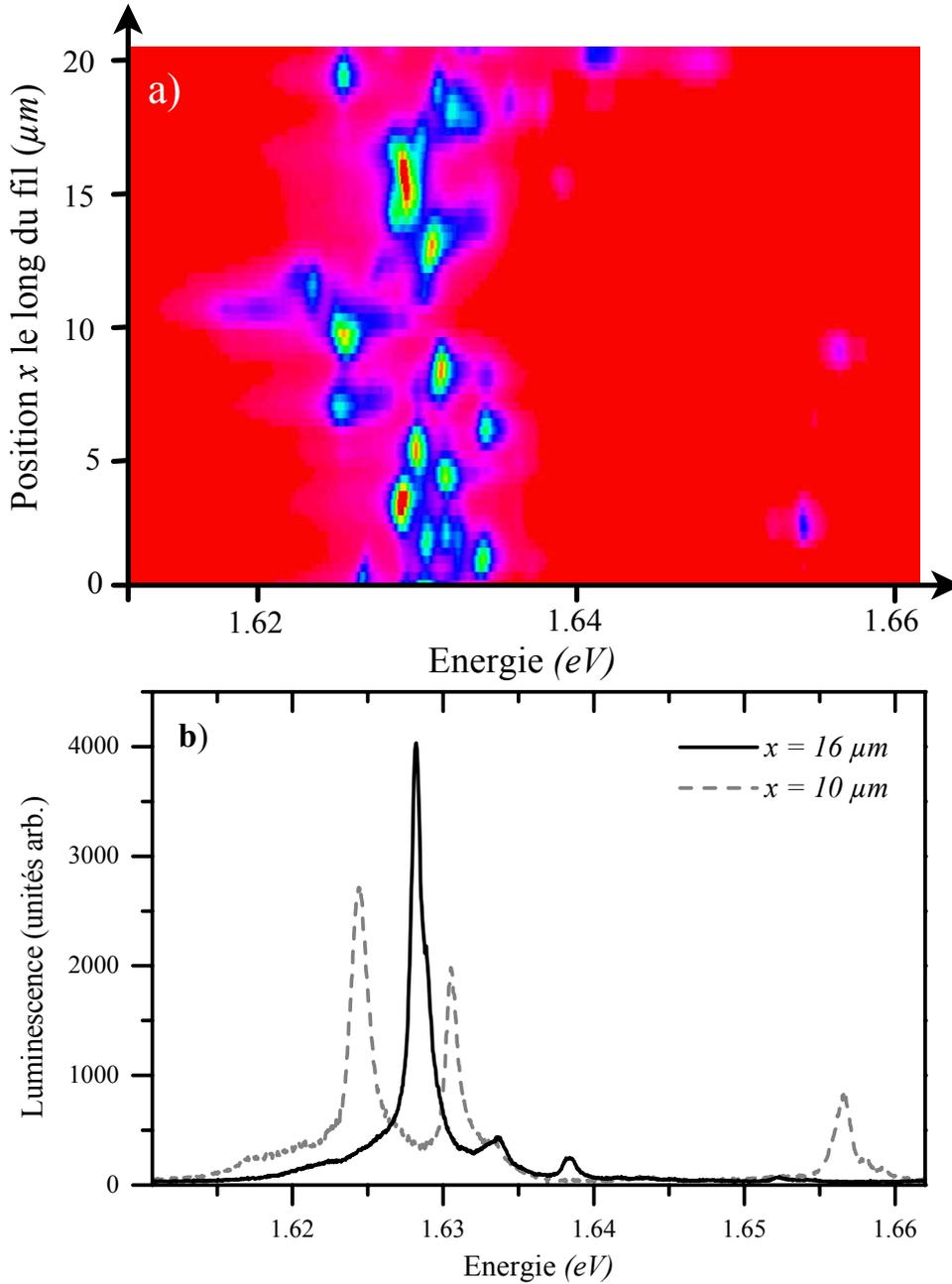


FIG. 3.6 – (a) Carte d'un échantillon (NM79) de la nouvelle génération, à faible puissance d'excitation ($P = 50 \text{ W.cm}^{-2}$ à 1,74 eV, dans la transition $e3h3$ du fil). (b) Spectre de μ -PL correspondant aux positions $x = 16 \mu m$ et $x = 10 \mu m$.

guez importantes ($5 \mu m$ entre $x = 0 \mu m$ et $x = 6 \mu m$ puis entre $x = 13 \mu m$ et $x = 19 \mu m$), puis plus importantes entre $x = 8 \mu m$ et $x = 12 \mu m$. Les fluctuations des interfaces (100) qui régissent le confinement principal des porteurs suivant la direction z donnent lieu à une fluctuation de l'énergie de confinement importante⁵, de $9 meV$, et sont visibles par exemple à $x = 9 \mu m$, où l'énergie des pics de luminescence est supérieure de $20 meV$ à sa valeur moyenne, correspondant à une épaisseur de fil supérieure de 2 monocouches. Nous pouvons aussi noter que les zones homogènes et les taches étendues, comme à $x = 16 \mu m$, correspondent à une même énergie de transition de $1,636 meV$, et ceci quel que soit le fil quantique observé sur cet échantillon. Nous les attribuons donc au "fil médian" : cela montre que les hétéro-interfaces (100), (311) et (111) prennent des positions préférentielles au cours de la croissance. Des variations d'épaisseur de +1 et -1 monocouche peuvent aussi être identifiées, par exemple à $x = 11 \mu m$.

Nous pouvons donc conclure que les fluctuations des hétéro-interfaces sont beaucoup plus réduites dans ces nouveaux échantillons que dans ceux de l'ancienne génération. Les hétéro-interfaces (100), régissant le confinement principal, présentent des marches d'une ou deux monocouches tous les $5 \mu m$ environ, et les autres hétéro-interfaces, d'effet moindre sur l'énergie de confinement (environ $3 meV$ pour les facettes (311)), fluctuent à l'échelle de $0,5$ à $2 \mu m$ environ. Ceci est résumé sur le schéma 3.7.

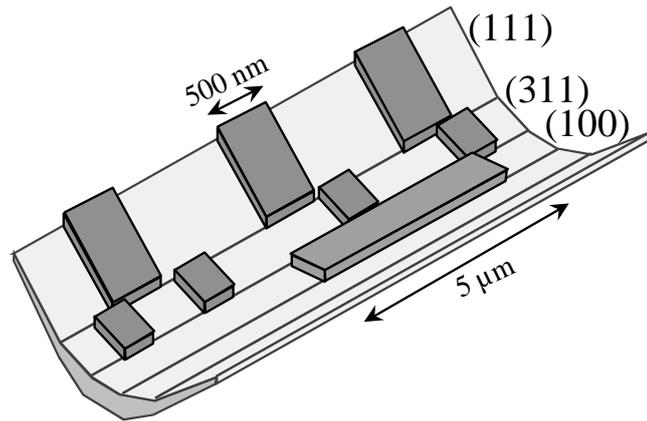


FIG. 3.7 – Représentation schématique des fluctuations d'interfaces, d'après les cartes, dans les meilleurs échantillons de la nouvelle génération.

Analyse statistique dans la dimension spectrale. Les autoconvolutions spectrales $R(E)$ et $R_0(E)$, ainsi que l'autocorrélation $R_c(E)$, sont représentées dans l'espace réciproque et dans l'espace réel sur la figure 3.8.

De manière encore plus claire que pour l'échantillon précédent, l'autoconvolution non corrélée $R_0(E)$ (Fig. 3.8.b) est essentiellement composée d'une raie large, de largeur $12 meV$, soit environ $\sqrt{2}$ la largeur inhomogène de la macro-luminescence. Elle présente aussi un petit pic plus fin autour de $E = 0$, ainsi que deux bosses aux voisinages de ± 25 et $\pm 32 meV$, correspondant à l'autoconvolution du spectre de macro-luminescence qui présente ces structures. Les structures correspondantes peuvent être identifiées dans sa

5. Cette variation d'énergie est obtenue du calcul présenté à la section 1.3.2, en considérant un fil dont la facette (100) inférieure est translatée du paramètre de maille, soit $2,83 \text{ \AA}$, vers le haut. L'énergie de confinement est alors augmentée de $7 meV$ pour l'électron et de $2 meV$ pour le trou.

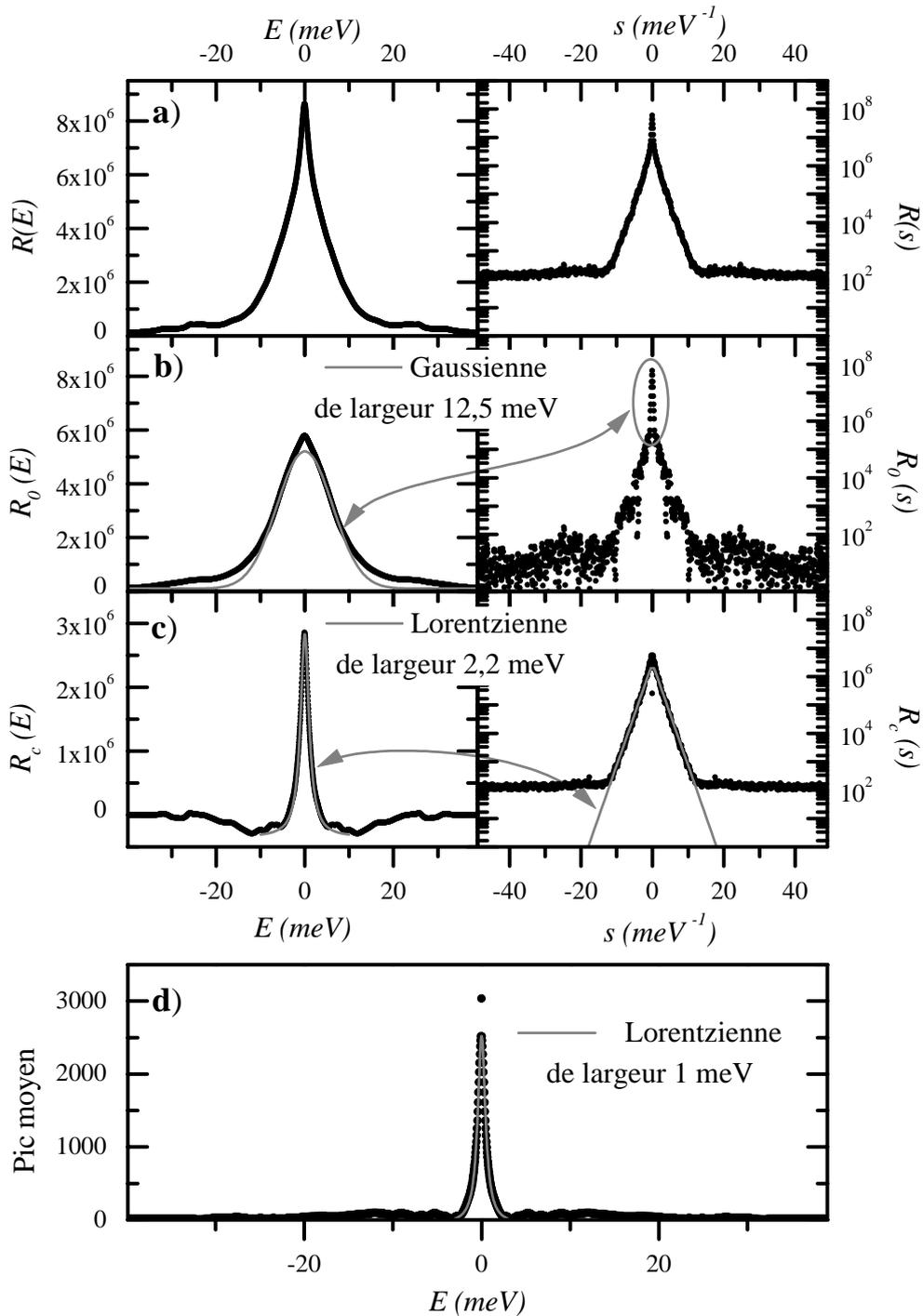


FIG. 3.8 – (a) Autoconvolution spectrale $R(E)$, (b) sa composante non corrélée spatialement $R_0(E)$ et (c) l'autocorrélation $R_c(E) = R(E) - R_0(E)$, dans l'espace réciproque et l'espace des énergies; (d) Forme spectrale $f_c(E)$ du "pic moyen".

transformée de Fourier. Le pic fin autour de $s = 0$ est associé à la raie large, et le fond beaucoup plus faible et plus large dans l'espace réciproque au pic fin observé en $E = 0$.

L'autoconvolution $R(E)$ (Fig. 3.3.a) présente les mêmes structures, mais comme dans le cas précédent le pic fin autour de $E = 0$ y est beaucoup plus prononcé que pour $R_0(E)$, alors que la raie large est d'amplitude très voisine.

La différence des deux autoconvolutions, l'autocorrélation $R_c(E)$, est essentiellement composée du pic fin, et la raie large d'autoconvolution du spectre non corrélée a complètement disparu. Le pic fin correspond à l'autoconvolution de la forme spectrale $u_E(E)$ des pics de μ -PL. La transformée de Fourier $\tilde{R}_c(s)$ est parfaitement reproduite par une exponentielle $e^{-a|s|}$, de forme triangulaire caractéristique en échelle logarithmique sur 4 décades, superposée à un fond continu. Dans l'espace des énergies, le pic est donc parfaitement lorentzien. La forme du "pic moyen" de μ -PL peut alors être obtenue, si on la suppose symétrique, en calculant la transformée de Fourier inverse de $\sqrt{\tilde{R}_c(s)}$, présentée sur la figure 3.8.d. Ce pic est similaire à ceux obtenus en μ -PL sur des spectres individuels, et est une lorentzienne de largeur à mi-hauteur égale à 1 meV .

Il est à noter que l'autocorrélation est négative autour du pic lorentzien (Fig. 3.8.c). L'effet de "répulsion de niveaux" ne doit pas être invoqué pour justifier cette propriété car la localisation dans ces échantillons est d'une nature complètement différente, ce que nous discuterons au paragraphe 3.3.2. La taille des îlots étant comparable à la résolution spatiale, les spectres de μ -PL sont constitués d'un petit nombre de pics : la présence d'un premier pic exclue donc partiellement celle d'autres pics à une position donnée. De petites structures apparaissent tout de même à $\pm 3 \text{ meV}$ et entre ± 6 et $\pm 10 \text{ meV}$, traduisant l'existence de corrélations entre les énergies d'îlots voisins. Ces différences d'énergies sont en effet comparables à celles calculées pour des fluctuations des interfaces (311) (3 meV) et (100) (9 meV).

Analyse statistique dans la dimension spatiale. Les autoconvolutions spatiales $R'(x)$ et $R'_0(x)$, ainsi que l'autocorrélation $R'_c(x)$, sont représentées dans l'espace réciproque et dans l'espace réel sur la figure 3.9. Comme dans les fils quantiques de l'ancienne génération, la composante non corrélée R'_0 est distribuée uniformément, montrant que le fil émet de manière uniforme. Le pic moyen f'_c (Fig. 3.9.d), dont $R'_c(x)$ est l'autoconvolution, est bien reproduit par une lorentzienne de largeur $1,2 \mu\text{m}$. Il n'est donc pas complètement limité par la résolution spatiale du dispositif, qui est de $0,8 \mu\text{m}$ comme le montre l'analyse des cartes obtenues sur l'échantillon précédent. Il serait cependant hasardeux de tenter une déconvolution de f'_c par la réponse optique du dispositif pour en déduire une extension moyenne des îlots, car les deux fonctions ont des largeurs très similaires. Nous pouvons estimer cette extension à environ $1,2 - 0,8 \mu\text{m} = 400 \text{ nm}$. Nous pouvons exclure la possibilité d'un mauvais réglage optique qui détériorerait la résolution spatiale car certains pics de la carte ont, individuellement, une largeur de $0,9 \mu\text{m}$.

Cas particulier des états très étendus. L'analyse statistique a montré que les raies de μ -PL sont "en moyenne" lorentziennes. Ceci est confirmé par les spectres individuels de μ -PL, même s'ils sont le plus souvent la somme de plusieurs raies associées à des îlots voisins, qui ne peuvent être distingués spatialement. Dans plus de 50% des cas, une raie lorentzienne reproduit de manière très satisfaisante le spectre mesuré (Fig. 3.10.a.). Cependant pour les îlots les plus étendus, d'extension supérieure à $2 \mu\text{m}$ et qui représentent environ 5% des îlots observés, le spectre de μ -PL, qui comporte cette fois-ci une seule raie principale car les îlots voisins sont bien discriminés spatialement, ne peut être reproduit

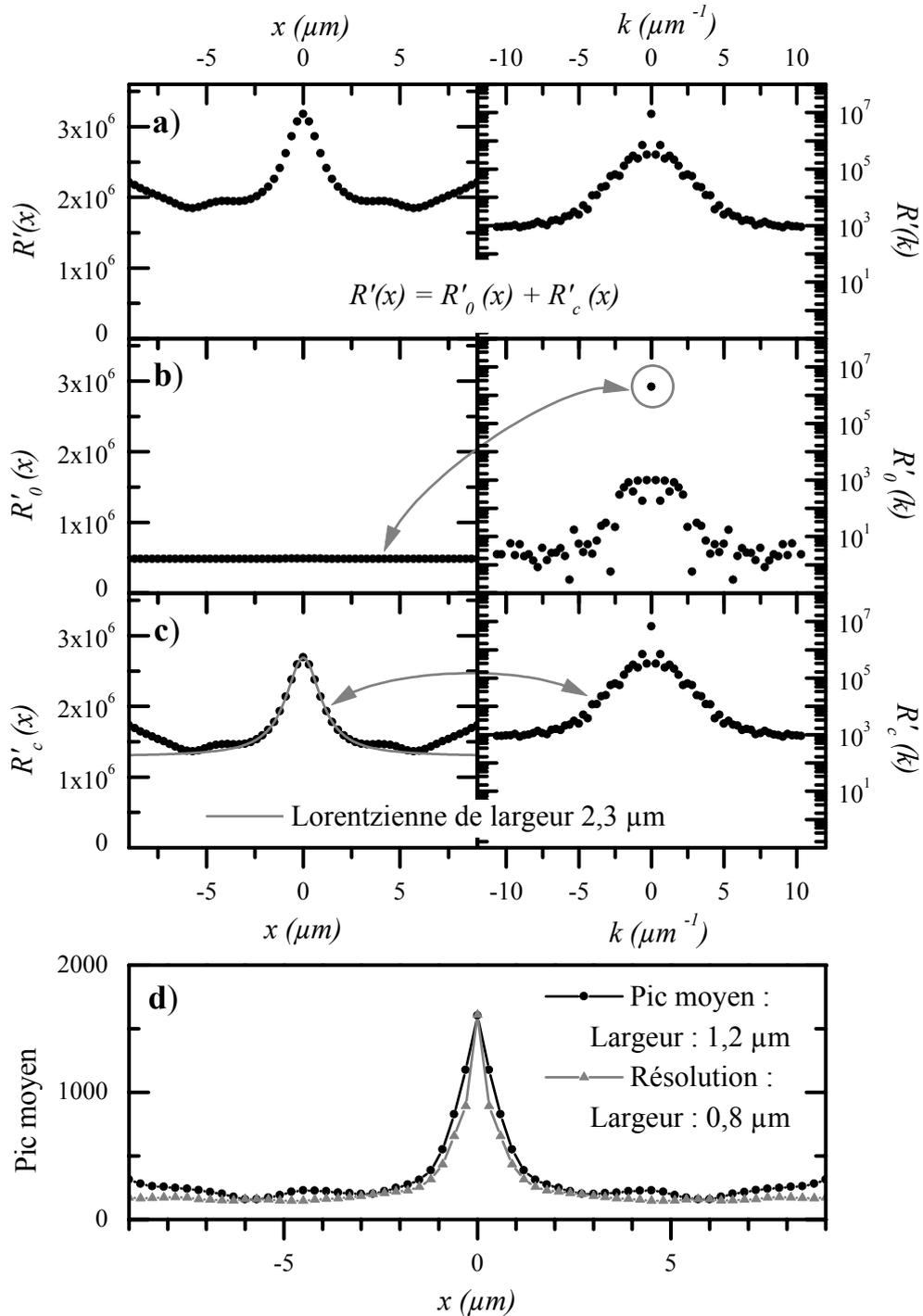


FIG. 3.9 – (a) Autoconvolution spatiale $R'(x)$, (b) sa composante non corrélée spatialement $R'_0(x)$ et (c) l'autocorrélation $R'_c(x) = R'(x) - R'_0(x)$, dans l'espace réciproque et l'espace réel; (d) Forme spatiale $f'_c(x)$ du "pic moyen".

par une unique lorentzienne (Fig. 3.10.b.). Il doit être décomposé en une raie lorentzienne et un épaulement haute énergie, sur un fond approximativement gaussien. Nous pouvons d'ailleurs noter que des spectres très similaires ont été obtenus sur de nombreux îlots étendus, sur un même échantillon et même sur deux échantillons similaires (Fig. 3.10.c.). Nous n'avons pas été en mesure d'interpréter ces observations pour l'instant.

3.1.3 Conclusion

L'imagerie par balayage d'excitation nous a permis de mettre en évidence des changements qualitatifs importants entre les deux générations d'échantillons, qui peuvent être résumés en trois points principaux : la densité d'îlots a été réduite de 10 à $2 \mu\text{m}^{-1}$, avec des îlots d'extension moyenne de l'ordre de 400 nm , estimée par deux méthodes (densité linéique et extension moyenne des taches), et atteignant $3 \mu\text{m}$ sur les meilleurs échantillons; pour les fils quantiques de la nouvelle génération, nous avons mis en évidence les fluctuations de hétéro-interfaces (311) et (100), et estimé leur densité linéique; enfin, la nature des pics de μ -PL dépend du régime de localisation, les pics étant très fins et limités par la résolution spectrale pour l'ancienne génération, et lorentziens de largeur 1 meV pour la nouvelle génération.

Les résultats obtenus sur les fils quantiques de la nouvelle génération sont très différents des autres travaux d'imagerie de fils quantiques semiconducteurs publiés à ce jour. Les meilleurs fils quantiques de l'ancienne génération, fabriqués par X.L. Wang, ont été étudiés en champ proche (SNOM) par A. Crottini et al. [56]. Ces travaux ont mis en évidence l'existence de quelques très rares états étendus (jusqu'à 600 nm), mais la longueur de localisation moyenne est estimée à $10 - 50 \text{ nm}$, comparable à celle que nous obtenons dans ces mêmes échantillons. Ces travaux ont été poursuivis et ont en particulier permis d'étudier la "répulsion de niveaux" dans ces fils [57] (cf Sec. 3.3.4). Dans les fils quantiques de la nouvelle génération, la longueur de localisation moyenne est donc dix fois plus grande, et les îlots les plus étendus atteignent plusieurs microns. Les autres travaux réalisés en imagerie sur des fils quantiques semiconducteurs, peu nombreux, se sont intéressés à la caractérisation du confinement latéral dans le fil, en μ -PL [58] ou en SNOM [59], et aux processus de transport et de diffusion entre le fil et d'autres structures environnantes, puits ou boîtes quantiques [10, 60]; ils n'ont pas permis de caractériser le désordre et la localisation dans ces structures.

La discussion de la largeur spectrale importante (1 meV) des pics de μ -PL dans les fils quantiques de la nouvelle génération fera l'objet de la section 3.4.

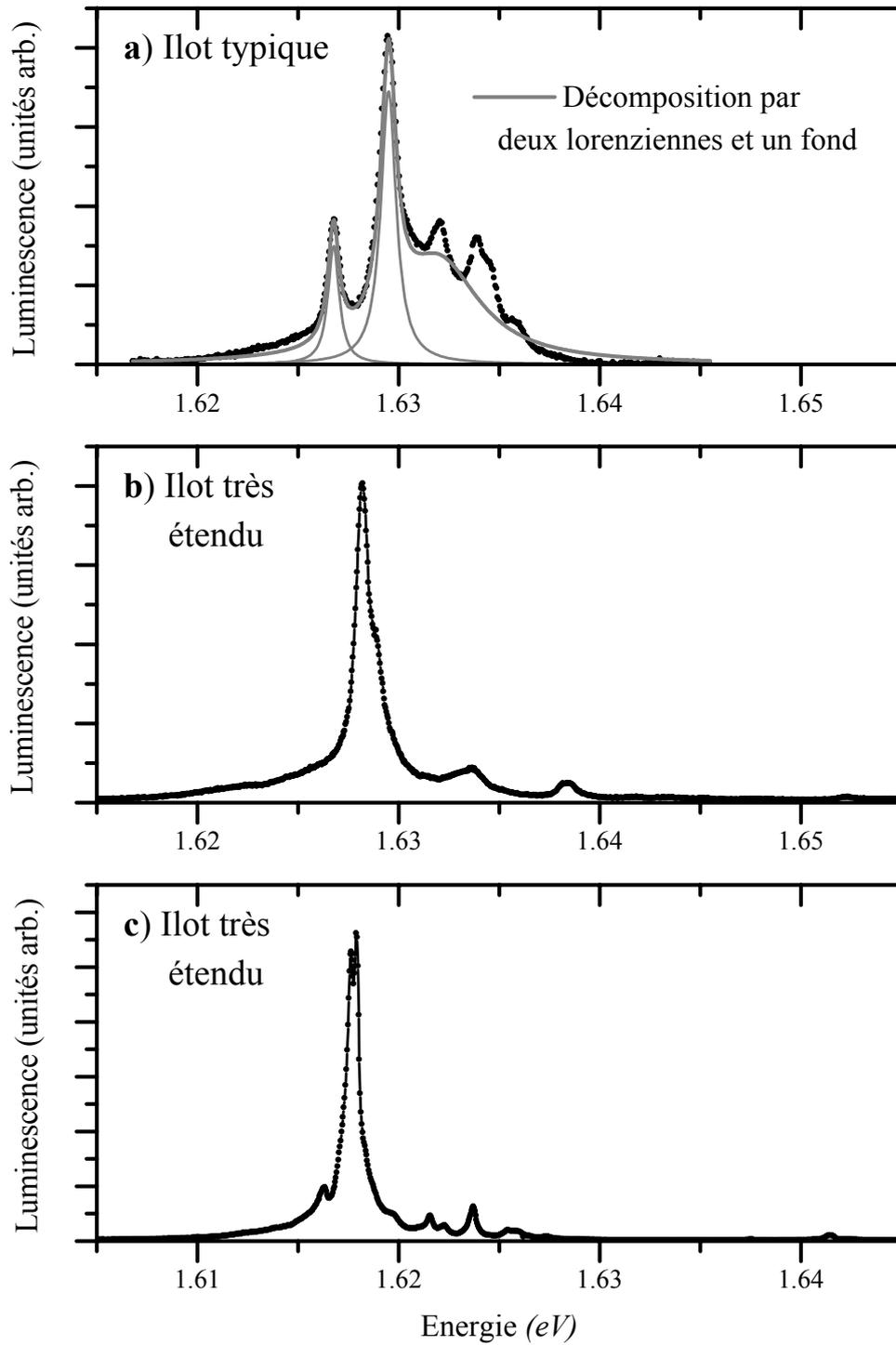


FIG. 3.10 – Spectres de μ -PL obtenus sur des échantillons de la nouvelle génération : (a) NM79, îlot “typique”; (b) NM79, îlot très étendu, correspondant à la position $x = 16\mu\text{m}$ sur la figure 3.6; (c) NM172, similaire au NM79, îlot très étendu.

3.2 Progrès des techniques de croissance

Avant d'étudier de manière plus approfondie le changement de nature du système qu'induit cette diminution du désordre, nous allons présenter les améliorations des techniques d'élaboration qui ont permis d'obtenir de tels échantillons.

3.2.1 L'attaque chimique du substrat après gravure

La localisation des porteurs étant due à la rugosité des hétéro-interfaces, X.L. Wang a développé un procédé d'attaque chimique du substrat obtenu par photo-lithographie du V, par une solution à base d'ammoniac. En raison de l'homogénéité de la croissance obtenue par modulation de flux, on s'attend en effet à ce que la rugosité des interfaces du fil dépende de manière importante de celle du substrat initial, même s'il est séparé du fil par une couche de tampon GaAs et une couche de barrière GaAlAs.

Les images par microscopie à force atomique (AFM, fig. 3.11) du substrat gravé en V avec et sans attaque chimique donnent accès à la topographie des substrats. Elles montrent que la rugosité des interfaces a été réduite lors de l'attaque. Les images AFM de fils quantiques dont la croissance a été stoppée entre le puits et la barrière, et qui montrent donc l'interface GaAs-GaAlAs supérieure du fil, montrent aussi une réduction de la rugosité, et en particulier de ses composantes à courte portée [14].

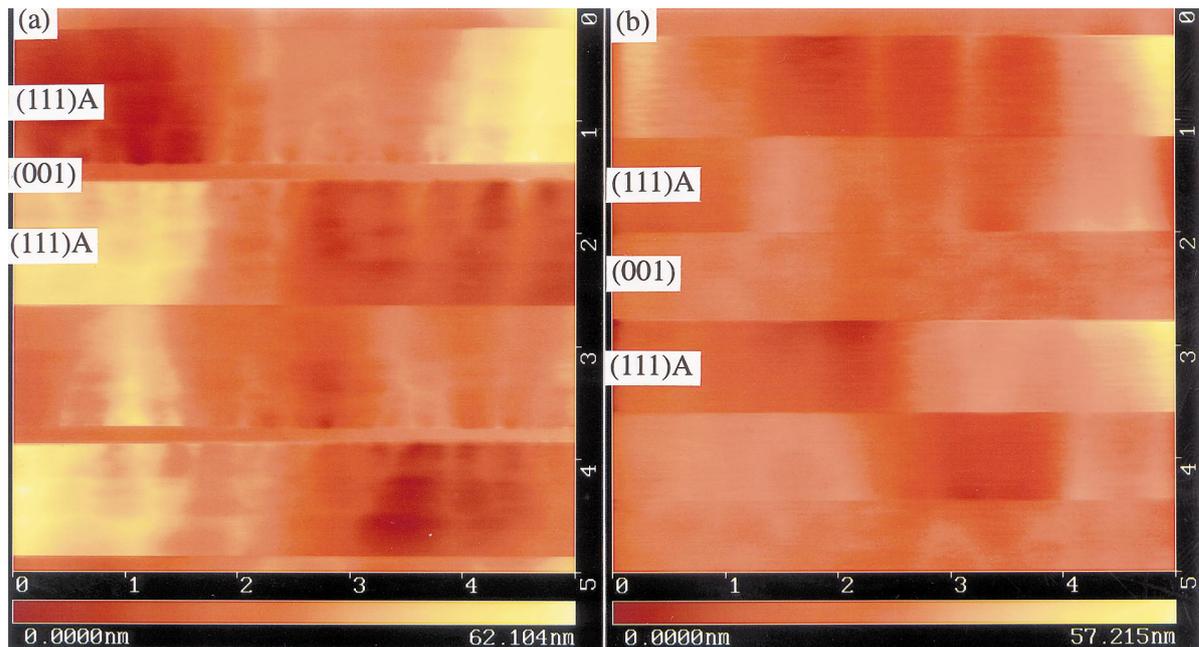


FIG. 3.11 – Images par AFM de substrats gravés en V (a) sans et (b) avec attaque chimique, d'après [14]. Les images du V sont aplanies et présentent chacune de ses interfaces, et en particulier l'interface (100) au fond du V, dénotée (001) sur la figure.

Les spectres de μ -PL de deux échantillons réalisés avec et sans étape d'attaque chimique sont présentés en figure 3.12. L'échantillon ayant subi une attaque présente moins de pics en μ -PL, et donc moins de minima du potentiel désordonné dans la zone de $1 \mu\text{m}$ excitée. Ses interfaces sont donc moins rugueuses, et présentent des marches d'une monocouche plus espacées.

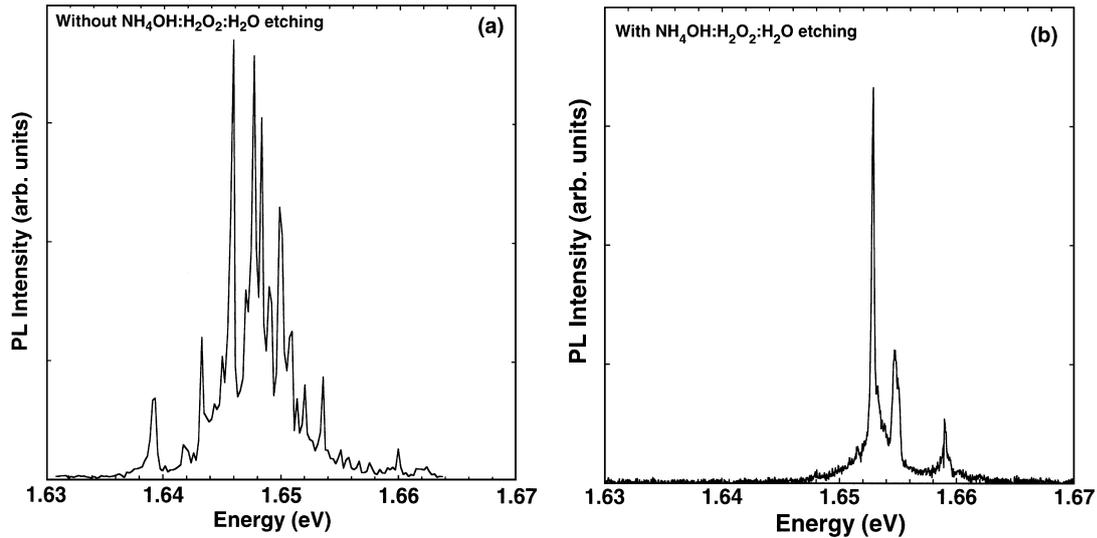


FIG. 3.12 – Spectres de μ -PL de deux échantillons élaborés sur des substrats (a) non attaqué et (b) attaqué

3.2.2 Nouvelle source d’arsenic

X.L. Wang a récemment été amené, pour des raisons de sécurité, à utiliser un nouveau type de source d’arsenic dans son bâti d’épitaxie[15]. L’arsine (AsH_3) étant un poison très dangereux, il travaille désormais avec un butyl-arsine tertiaire (TBAs). Les échantillons élaborés avec cette source présentent une réduction importante de la recombinaison non radiative à haute température, l’intensité intégrée de la luminescence restant constante jusqu’à 120 K [61] (Fig. 3.13). La luminescence est encore détectable à température ambiante, même si elle est 100 fois inférieure à celle obtenue à basse température. Cela constitue une amélioration notable par rapport aux échantillons antérieurs, pour lesquels la recombinaison radiative était 10 fois inférieure à 200 K. Cela signifie que la concentration de centres non radiatifs est beaucoup plus faible avec cette nouvelle source d’arsenic.

3.2.3 Alignement de la gravure sur la direction cristallographique $[01\bar{1}]$

Les échantillons dits “de la nouvelle génération” sont ceux obtenus après les deux améliorations que nous venons de présenter. Comme le montre la carte présentée en figure 3.6, les fluctuations de l’interface (100) sont rares (tous les $5 \mu\text{m}$), et le potentiel désordonné est déterminé sur une échelle plus petite par les fluctuations des autres interfaces, (311) et (111), qui interviennent dans le confinement des porteurs. La rugosité de ces interfaces ne dépend pas seulement de la planéité du substrat gravé, mais aussi de l’orientation de la gravure du V par rapport à la direction cristallographique $[01\bar{1}]$ qui constitue l’axe du fil. En effet, un petit angle θ_{Al} entre ces deux directions n’induit pas de marches sur l’interface (100), mais en crée sur les interfaces latérales, comme le montre le schéma 3.14. La distance moyenne entre de telles marches peut être évaluée simplement, et vaut $2,83 \text{ \AA} / \tan(\theta_{Al})^6$. Il est donc nécessaire d’avoir de très petits angles de désorientation pour obtenir des interfaces sans marches induites par ce mécanisme

6. L’épaisseur d’une monocouche de GaAs est de $2,83 \text{ \AA}$, soit la moitié du paramètre de maille.

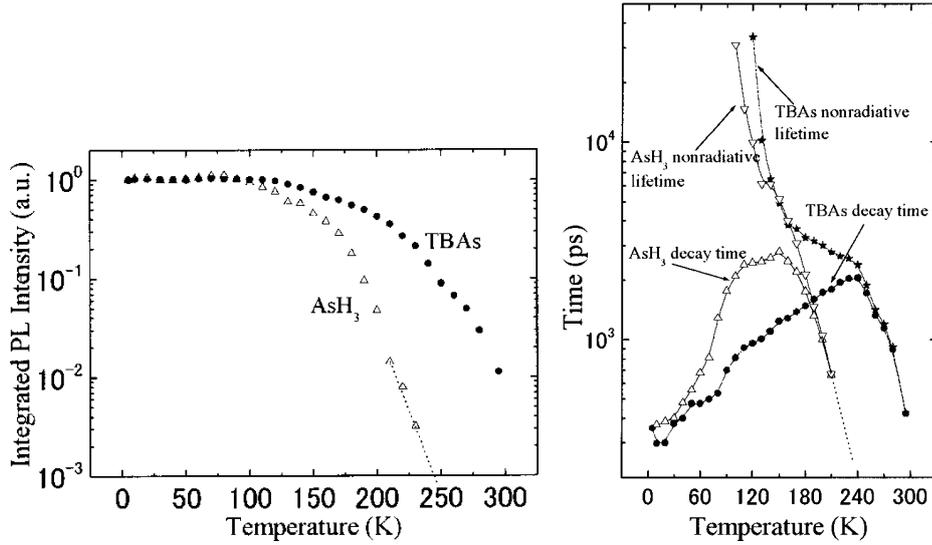


FIG. 3.13 – Intensité intégrée de la luminescence et temps de vie radiatif et non-radiatif, en fonction de la température, pour des fils quantiques fabriqués à partir d'AsH₃ et de TBAs. D'après [61].

sur de grandes distances, typiquement $\theta_{Al} \approx 3.10^{-4} \text{ rad} \approx 0,02^\circ$ pour une distance de 100 nm.

X.L. Wang a pour cette raison tenté de réduire l'angle de désorientation lors du processus de photo-lithographie, qui est de l'ordre de $0,1^\circ$ pour les fils de l'ancienne génération. Il est désormais capable de maîtriser cette désorientation à $0,005^\circ$ près, certains échantillons étant même presque parfaitement orientés ($\theta_{Al} < 0,0007^\circ$). Cet angle est mesuré au microscope entre la direction d'un V et une surface clivée, sur la largeur d'un échantillon. Les cartes obtenues sur ces différents échantillons sont présentées sur la figure 3.15.

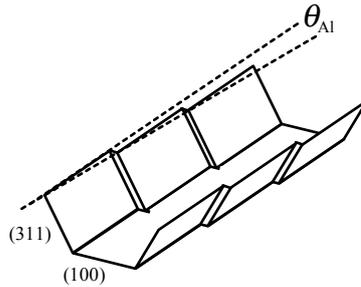


FIG. 3.14 – Représentation schématique des interfaces du fil en présence d'un petit angle entre l'axe de la gravure et la direction $[01\bar{1}]$ du substrat.

La carte de fils de l'échantillon NM135 présentant un grand angle de désorientation ($\theta_{Al} \approx 0,1^\circ$) est assez complexe, et comporte à la fois des taches fines et larges spectralement, et localisées et étendues spatialement. Le même type de cartes a été obtenu sur différents fils. La densité de taches est de l'ordre de $4 \mu\text{m}^{-1}$.

La carte d'un fil de l'échantillon NM125, présentant un angle de désorientation intermédiaire ($\theta_{Al} \approx 0,005^\circ$), est composée d'une part de taches étendues spatialement et larges spectralement, pour la plupart concentrées en énergie autour de $1,647 \text{ eV}$, soit

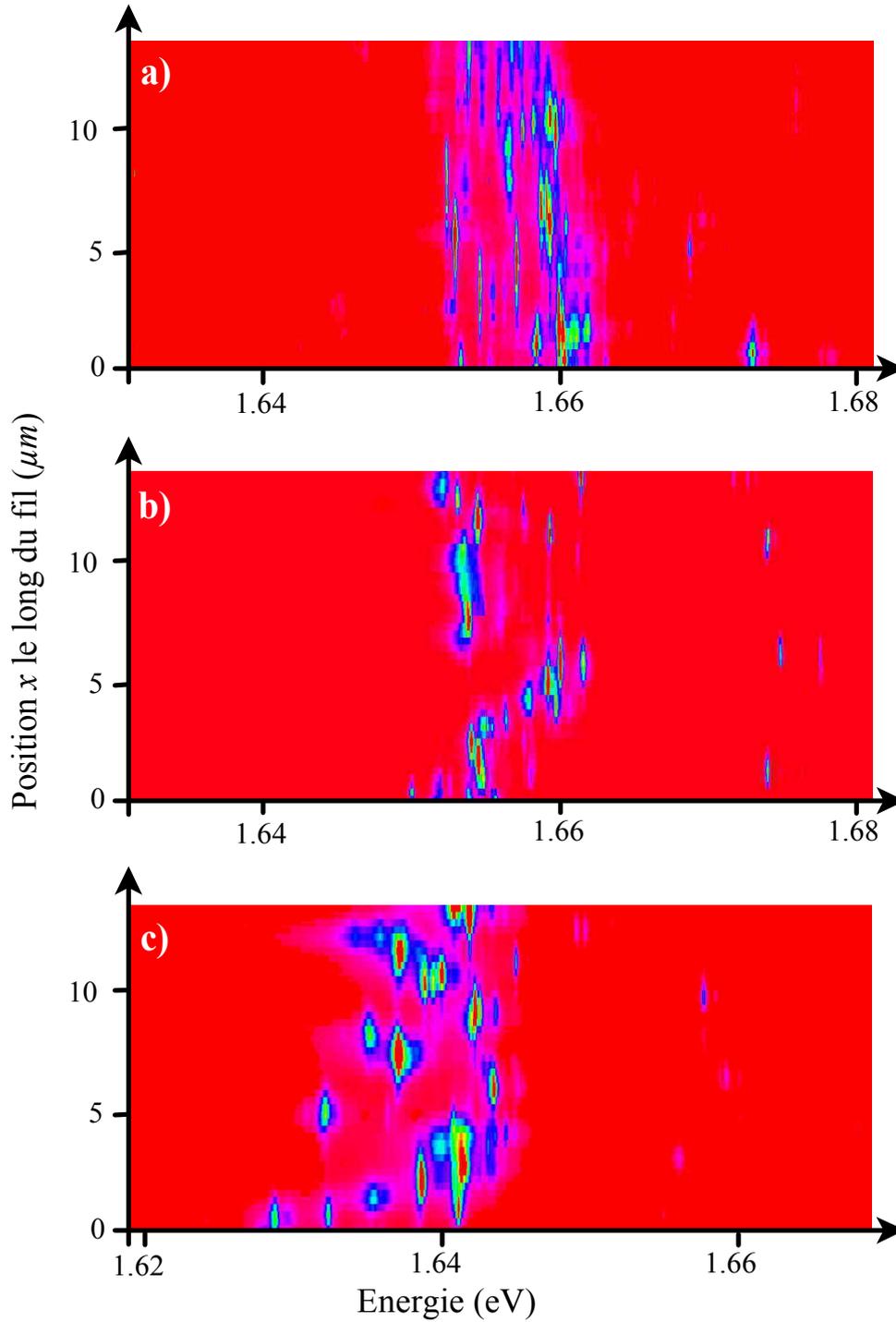


FIG. 3.15 – Cartes de fils quantiques d'échantillons ayant des angles de désorientation différents, classés par ordre décroissant : (a) NM135, $\theta_{Al} \approx 0,1^\circ$; (b) NM125, $\theta_{Al} \approx 0,005^\circ$; (c) NM172, $\theta_{Al} < 0,0007^\circ$ similaire à l'échantillon NM79 présenté en fig. 3.6

l'énergie de confinement du "fil médian", et d'autre part de pics fins, à plus haute énergie, mettant en évidence des variations de l'épaisseur du fil de -1 et -2 monocouches. La densité de taches est de l'ordre de $2 \mu m^{-1}$.

Enfin, sur l'échantillon NM172 présentant un très petit angle de désorientation ($\theta_{Al} < 0,0007^\circ$), comme sur l'échantillon NM79 présenté sur la figure 3.6, la carte d'un fil est composée exclusivement de taches larges spectralement, les plus étendues étant concentrées en énergie autour de $1,641 eV$. Des variations de l'épaisseur du fil de ± 1 et ± 2 monocouches apparaissent. La densité de taches est de l'ordre de $1,2 \mu m^{-1}$. Nous n'avons observé de taches très étendues ($> 2 \mu m$), dans lesquelles le spectre de μ -PL est composé d'un seul pic, que dans ces deux derniers échantillons.

L'importance de l'alignement de l'axe du V sur la direction cristallographique $[01\bar{1}]$ est donc mise en évidence par les expériences d'imagerie que nous avons réalisées. L'obtention de zones étendues sur plus de deux microns exemptes de fluctuations d'interfaces est en particulier conditionnée à un alignement quasi-parfait ($\theta_{Al} < 0,0007^\circ$), comparable avec celui nécessaire ($\theta_{Al} \approx 0,001^\circ$) pour que la distance entre les marches latérales soit de $2 \mu m$. De plus, les pics fins similaires à ceux observés pour des états très localisés dans les fils de l'ancienne génération sont aussi présents dans les fils récents mais d'alignement imparfait. L'apparition de marches latérales dues à l'imprécision de l'alignement n'est cependant pas la seule cause de rugosité des hétéro-interfaces, comme le montrent les échantillons NM79 et NM172, qui sont presque parfaitement alignés et présentent néanmoins une densité d'îlots supérieure à la valeur $0,4 \mu m^{-1}$ que l'on pourrait déduire de θ_{Al} . Enfin, pour les "grands" angles de désorientation ($\theta_{Al} \approx 0,1^\circ$), l'imagerie montre l'existence de zones étendues spatialement dans lequel le spectre de μ -PL est composé de quelques pics fins, ce que nous n'expliquons pas à ce jour.

3.3 Nature des états selon le type de désordre

Le potentiel désordonné généré par les fluctuations d'hétéro-interfaces est caractérisé par deux grandeurs caractéristiques, son amplitude V_{loc} et sa longueur caractéristique L_{loc} , qui doivent être comparées aux autres grandeurs en jeu de manière à comprendre la nature de la localisation. Comme nous venons de le montrer, les valeurs de ces grandeurs sont $V_{loc} \approx 9 \text{ meV}$ et $L_{loc} \approx 500$ ou 5000 \AA pour les fils que nous avons étudiés, selon qu'ils sont de l'ancienne ou de la nouvelle génération⁷.

3.3.1 Compétition avec l'interaction Coulombienne

La localisation doit en premier lieu être comparée à l'interaction Coulombienne. Le potentiel désordonné agit en effet séparément sur l'électron et le trou, dans l'approximation de la fonction enveloppe appliquée aux deux particules dans la direction "libre" x du fil, et entre en compétition avec l'interaction Coulombienne entre l'électron et le trou, caractérisée par l'énergie de liaison de l'exciton $E_{Coul} = 20 \text{ meV}$ et son rayon de Bohr $a_X^{1D} = 70 \text{ \AA}$. Le rôle de chaque interaction dans les différents régimes est précisé dans le tableau 3.3.1.

	$V_{loc} \gg E_{Coul}$	$V_{loc} \ll E_{Coul}$
	Interaction Coulombienne traitée en perturbation	Potentiel de localisation traité en perturbation
$L_{loc} \gg a_X^{1D}$	L'exciton se forme dans chaque défaut	L'exciton est localisé par le même potentiel
$L_{loc} \ll a_X^{1D}$	Paire électron trou dans une boîte quantique	L'exciton est localisé par un potentiel moyenné sur a_X^{1D}

TAB. 3.1 – *Compétition entre localisation et interaction Coulombienne*

Dans notre cas, la longueur caractéristique L_{loc} est très grande devant le rayon de Bohr de l'exciton, et l'interaction Coulombienne est environ deux fois plus forte que le potentiel désordonné. L'exciton se forme donc, et subit un potentiel désordonné éventuellement moyenné sur un rayon de Bohr, dont les composantes variant rapidement sont coupées.

3.3.2 Régimes 0D et 1D

La longueur caractéristique du potentiel désordonné doit aussi être comparée à la longueur d'onde de de Broglie $\lambda_{Th} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}}$, qui vaut à $T = 10 \text{ K}$ et en prenant pour masse de l'exciton $m_X = m_e + m_{h1} = 0,178 m_0$: $\lambda_{Th} \approx 500 \text{ \AA}$. Considérons en effet, pour simplifier le potentiel désordonné, une boîte de longueur L_{loc} et de profondeur V_{loc} [16, p 1]. Si cette boîte contient plusieurs états confinés, les énergies des premiers états s'écrivent approximativement $n^2 \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_X L_{loc}^2}$, avec $n = 1, 2, \dots$. La comparaison de ces énergies, calculées grossièrement, avec l'énergie thermique $k_B T$ montre que si $L_{loc} \ll \lambda_{Th}$, le système se comporte comme une boîte quantique, avec des niveaux discrets dont seul le fondamental est peuplé thermiquement, alors que pour $L_{loc} \gg \lambda_{Th}$ les états propres du potentiel désordonné forment un quasi-continuum d'états peuplés thermiquement.

7. Dans cette partie, comme dans toutes les parties théoriques, les longueurs seront exprimées en \AA .

Considérons maintenant les deux types de fils dont nous avons caractérisé le potentiel de localisation par imagerie. Dans les fils de l'ancienne génération, la longueur de localisation est de l'ordre de 500 Å. Une boîte de cette longueur et de 9 meV de profondeur possède 4 états confinés, les deux premiers étant séparés de $3\frac{\hbar^2\pi^2}{2m_X L_{loc}^2} \approx 2 \text{ meV}$. Lorsque L_{loc} varie entre 200 et 1000 Å, le nombre d'états confinés varie de 2 à 15 et l'écart énergétique entre les premiers états de 6 à 0,5 meV, qu'il faut comparer à $k_B T = 0,86 \text{ meV}$ à $T = 10 \text{ K}$. La plupart des défauts constituent donc de vraies boîtes quantiques, dont les niveaux sont bien séparés énergétiquement et seul l'état fondamental est peuplé. C'est pourquoi nous avons qualifié ces fils quantiques de "fils en régime 0D". Cela est confirmé par la finesse spectrale des pics de μ -PL qui leur sont associés, et par un grand nombre de leur propriétés, qui seront détaillées au chapitre 4. En particulier leur probabilité de recombinaison radiative est proportionnelle à la taille des défauts, et le couplage avec les phonons se fait entre états discrets [23, 52, 53]. C'est aussi dans ce type de fils quantiques qu'a été mise en évidence la "répulsion de niveaux", c'est-à-dire le fait que la distribution des écarts énergétiques entre états localisés présente un creux entre 0 et $\frac{\hbar^2\pi^2}{2m_X L_{loc}^2}$ (cf Sec. 3.3.4).

Dans le cas des meilleurs fils quantiques de la nouvelle génération, pour lesquels l'angle de désorientation entre la gravure du V et la direction cristallographique est très petit, les îlots délimités par les fluctuations des interfaces sont étendus sur 3000 Å à $2 \cdot 10^4$ Å. Le nombre de niveaux confinés dans une telle boîte est, pour une longueur $L_{loc} = 5000$ Å, de l'ordre de 30, et l'écart entre les premiers niveaux est de l'ordre de $3\frac{\hbar^2\pi^2}{2m_X L_{loc}^2} \approx 25 \mu\text{eV}$. Cette écart énergétique est donc beaucoup plus petit que $k_B T$, et que l'élargissement homogène des états, qui sera évalué au chapitre 4. Nous avons donc baptisé ces fils quantiques "fils en régime 1D", et nous essaierons de comprendre les changements que cela induit sur les propriétés optique du système.

3.3.3 Simulation du potentiel désordonné

Nous avons analysé, en collaboration avec Robson Ferreira du Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (ENS, Paris), l'effet d'un potentiel désordonné sur les excitons dans deux modèles génériques, que nous avons comparés: le cas d'une boîte "carrée" et celui d'un potentiel aléatoire de type gaussien. Nous les comparerons dans deux cas limites, pour des longueurs caractéristiques du désordre de 500 et 5000 Å respectivement.

Modèle de boîtes simples

La résolution du problème d'une boîte carrée, unique, de profondeur V_{loc} et de longueur L_{loc} , est celle du problème bien connu du puits quantique, et est analytique [16, p 1]. Les états propres de la boîte dans les deux cas que nous considérons sont présentés sur la figure 3.16. Dans le cas de la grande boîte, nous retrouvons en moyenne la densité d'états du fil quantique, en $1/\sqrt{E}$, et la longueur de la boîte joue en quelque sorte le rôle d'une longueur de quantification des états du fil.

Cas d'un potentiel aléatoire gaussien

Pour modéliser de manière plus précise le potentiel désordonné agissant sur les excitons, il faut s'intéresser à la distribution spatiale des marches d'une monocouche sur les hétéro-interfaces. Ce problème s'avère très complexe et nécessiterait de connaître la

3.3 Nature des états selon le type de désordre

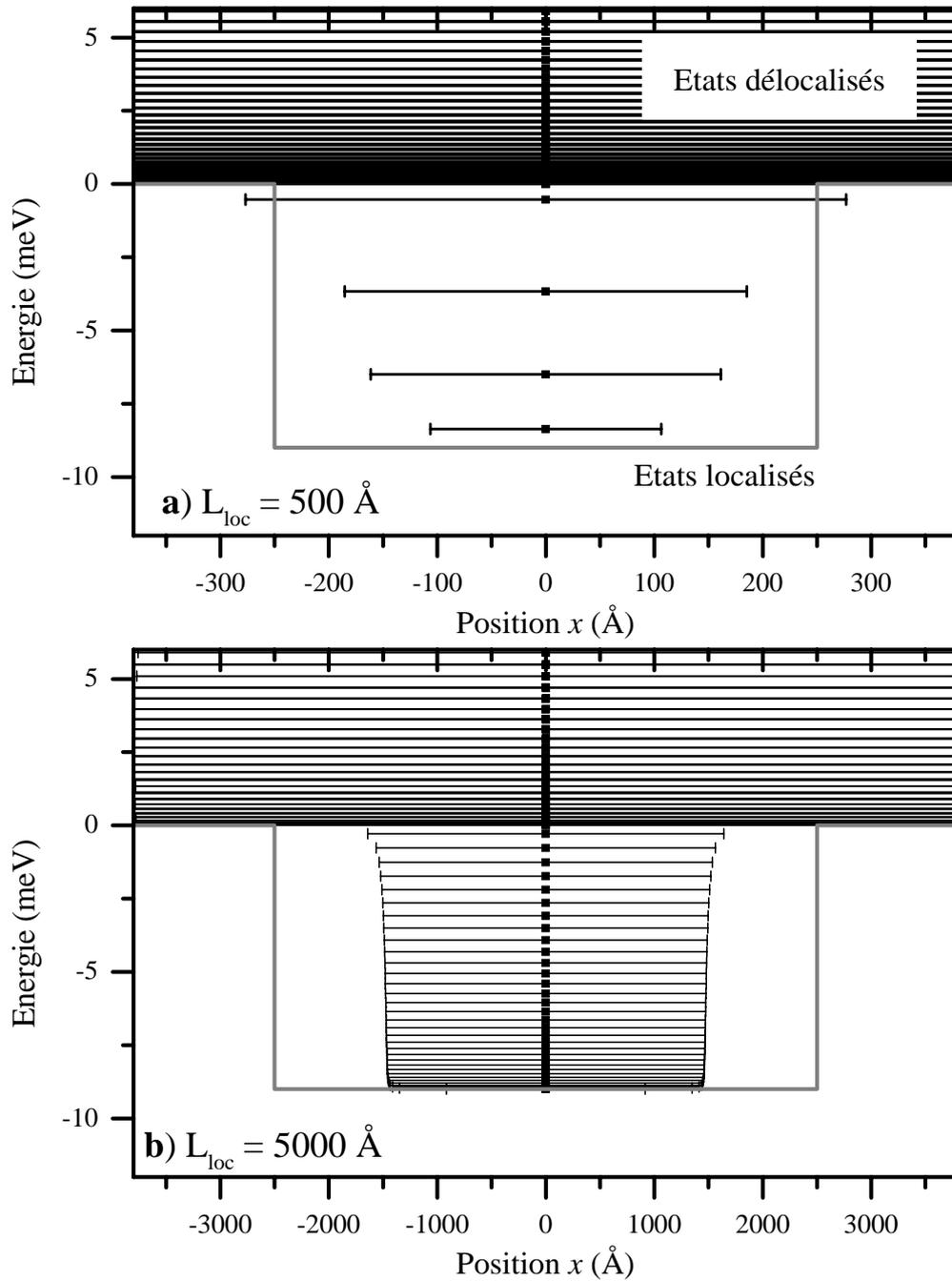


FIG. 3.16 – *Etats propres d'une boîte quantique de profondeur $V_{loc} = 9 \text{ meV}$, pour des longueurs (a) $L_{loc} = 500 \text{ \AA}$ et (b) $L_{loc} = 5000 \text{ \AA}$.*

statistique qui régit ces défauts, qui est intimement liée aux mécanismes de croissance. Cependant, si nous faisons l’hypothèse que les positions des marches ne sont pas corrélées entre elles, nous pouvons décrire le potentiel désordonné par une distribution gaussienne [62, 63]. Nous avons donc repris, en collaboration avec Robson Ferreira, l’étude numérique menée par David Larousserie dans le quatrième chapitre de sa thèse [64] pour l’adapter spécifiquement aux fils quantiques que nous avons étudiés.

Le principe de ce calcul est le suivant : le potentiel est décrit dans l’espace réciproque pour un fil de longueur de quantification L_Q finie⁸ par ses composantes de Fourier :

$$V(q) = V_{loc} \sqrt{\frac{L_C \sqrt{2\pi}}{L_Q}} e^{-q^2 L_C^2 / 4 - i\phi(q)}$$

pour $q \neq 0$. $\phi(q)$ est une phase aléatoire dans $[0, 2\pi]$ choisie impaire en q pour garantir que le potentiel $V(x)$ est réel. V_{loc} est l’écart-type du potentiel aléatoire⁹, et est aussi la profondeur moyenne d’un minimum de ce potentiel, c’est-à-dire d’un défaut vu par l’exciton. La longueur de corrélation L_C de la distribution gaussienne est reliée à la longueur caractéristique des défauts L_{loc} dans ce type de désordre par :

$$L_{loc} = 2 L_C \sqrt{\ln 2}.$$

Les états propres de ce potentiel désordonné, calculés en diagonalisant l’hamiltonien correspondant sur une base finie d’ondes planes, sont présentés dans les deux cas que nous considérons sur la figure 3.17. Nous retrouvons à basse énergie des états discrets bien séparés énergétiquement, similaires à ceux obtenus dans le cas d’une simple boîte carrée, dans le cas des petites boîtes. Dans le cas de la grande boîte, les états forment dans chaque défaut un quasi-continuum, même si nous ne retrouvons plus en moyenne la densité d’états du fil quantique, en $1/\sqrt{E}$, mais plutôt celle d’un puits harmonique, qui est constante, à la différence du modèle de la boîte carrée et du cas du fil infini parfait. Dans les deux cas, les états à haute énergie sont dispersifs et ont un vecteur d’onde bien défini.

Le modèle développé permet aussi de calculer la force d’oscillateur de chaque état (cf Sec. 1.5), les probabilités de transition d’état à état par interaction avec les phonons acoustiques (cf Sec. 4.2) et le facteur d’occupation des états à une température donnée, en supposant que les excitons ont été créés à plus haute énergie. Le spectre de luminescence peut ainsi être calculé en moyennant sur un grand nombre de configurations du potentiel aléatoire, et des spectres de μ -PL sont obtenus pour chacune de ces configurations. Les spectres de μ -PL associés aux deux configurations de la figure 3.17 sont présentés sur la figure 3.18, ainsi que les densités d’états.

Les diverses propriétés des excitons étudiées au chapitre 4 seront modélisées pour les deux types de désordre que nous venons de décrire.

3.3.4 A propos de la “répulsion de niveaux”

L’étude de l’autocorrélation $R_c(E)$ d’images en champ proche (SNOM) de puits quantiques désordonnés a récemment permis de mettre en évidence l’effet de “répulsion de niveaux” [55]. Historiquement appelé répulsion, cet effet n’est pas dû à une interaction entre excitons dans des états localisés différents, mais au fait que quantiquement

⁸. L_Q représente la taille du problème.

⁹. V_{loc} est noté σ dans la thèse de David Larousserie.

3.3 Nature des états selon le type de désordre

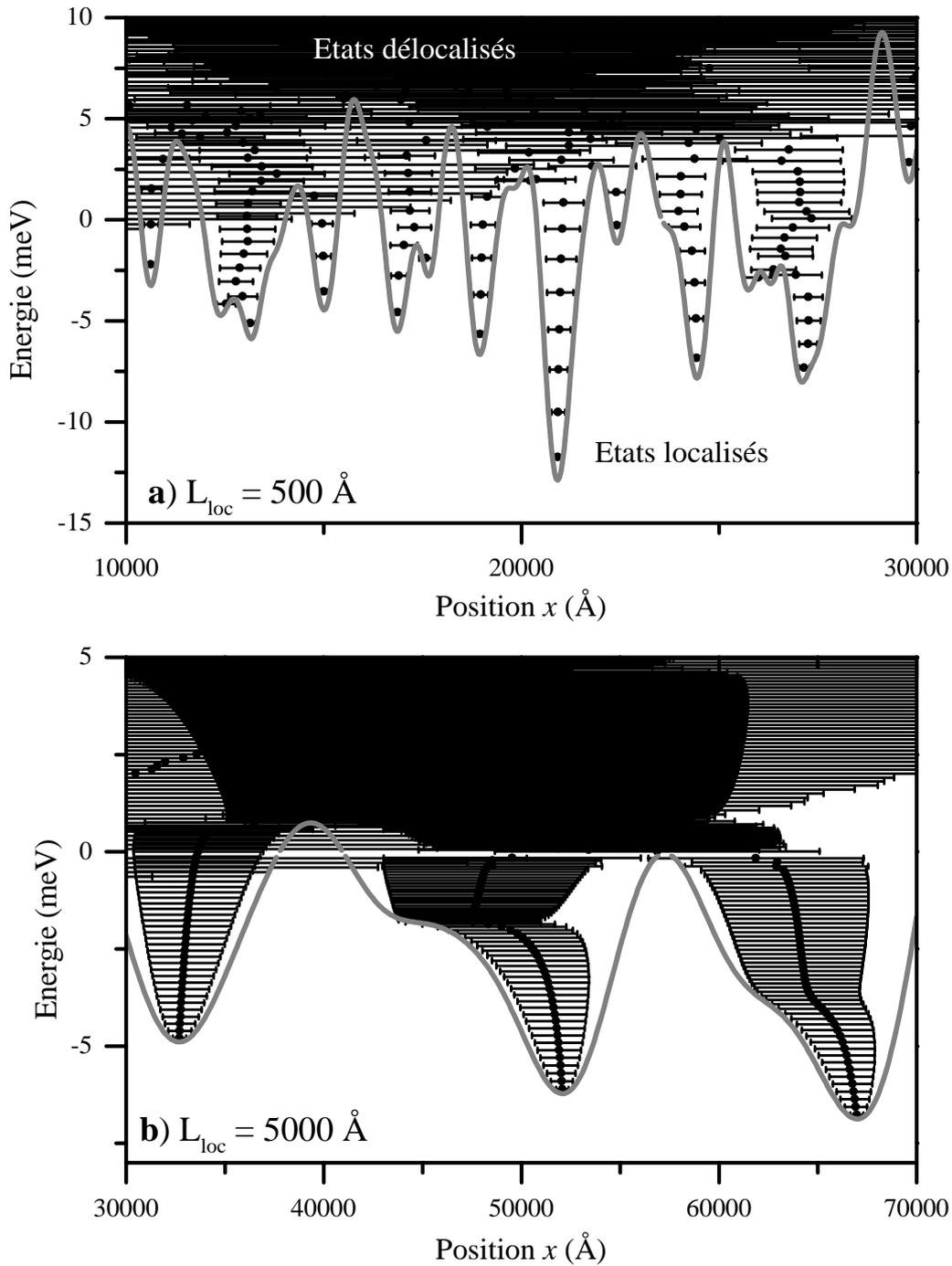


FIG. 3.17 – *Etats propres d'un potentiel désordonné gaussien de profondeur $V_{loc} = 4 \text{ meV}$ reproduisant les spectres de macro-luminescence, pour des longueurs caractéristiques (a) $L_{loc} = 500 \text{ \AA}$ et (b) $L_{loc} = 5000 \text{ \AA}$. Les états sont représentés par des barres horizontales centrées à leur position moyenne, de longueur leur extension moyenne, et d'ordonnée l'énergie de l'état.*

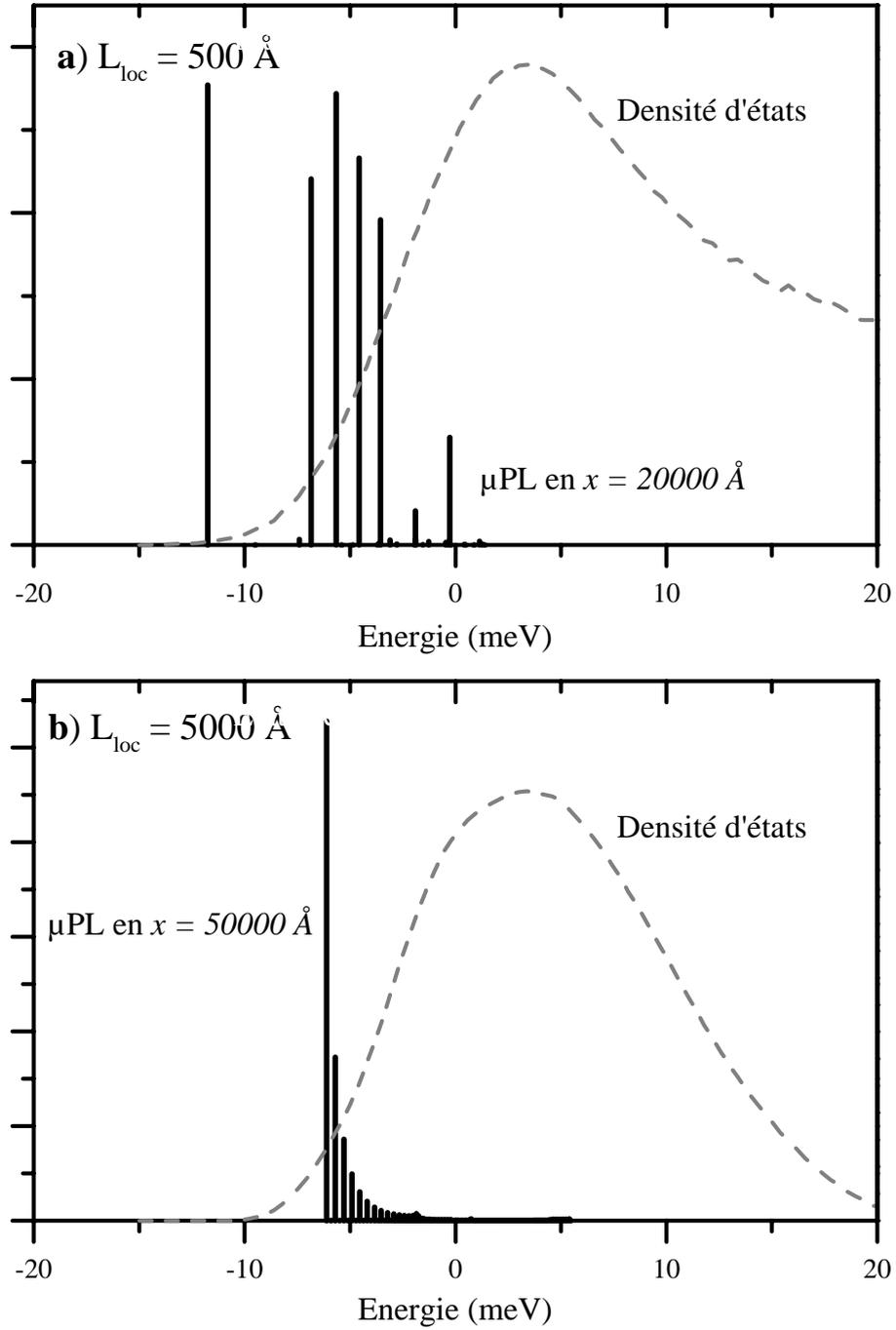


FIG. 3.18 – Spectres de μ -PL (pics) obtenus pour les mêmes configurations du potentiel aléatoire qu'à la figure 3.17, soit $V_{loc} = 4 \text{ meV}$ et (a) $L_{loc} = 500 \text{ \AA}$ et (b) $L_{loc} = 5000 \text{ \AA}$. La courbe en traits pointillés représente la densité d'états.

3.3 Nature des états selon le type de désordre

deux états localisés dont les fonctions d'onde se recouvrent ne peuvent être dégénérés en énergie. De manière schématisée, de tels états sont séparés en énergie d'une grandeur de l'ordre de $\hbar^2/2M\xi^2$, où ξ est la longueur sur laquelle les fonctions d'onde se recouvrent (Fig. 3.19.a).

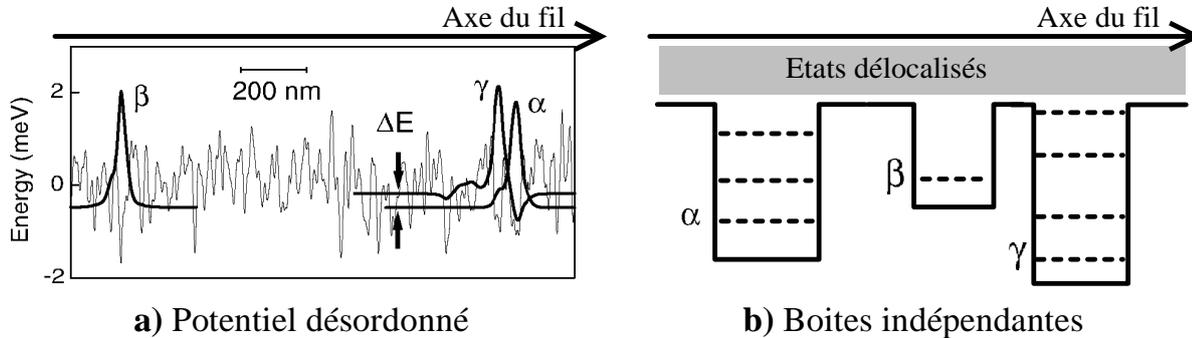


FIG. 3.19 – (a) Représentation schématique du principe de la “répulsion de niveaux”, d’après [55]. Les états localisés α et γ ne peuvent être dégénérés en énergie car ils se recouvrent, contrairement aux états α et β ; (b) Dans un modèle de boîtes indépendantes, les énergies des niveaux α , β et γ ne sont pas corrélées.

R. Idrissi a très récemment étudié en SNOM des fils quantiques en régime 0D de X.L. Wang [57], par une expérience similaire à celle réalisée dans les puits quantiques désordonnés [55]. Le spectre d’auto-corrélation obtenu (Fig. 3.20) présente des signatures de l’effet de répulsion de niveaux, qui se traduit par un “trou” aux petites énergies dans $R_c(E)$, pour des valeurs de E comprises entre 1 et 3 meV. Ce spectre est comparé aux résultats d’une simulation identique à celle décrite au paragraphe 3.3.3, mais pour un désordre plus important ($V_{loc} = 9,5$ meV au lieu de 4 meV).

L’effet de la répulsion de niveaux n’apparaît pas clairement sur le spectre d’auto-corrélation présenté en figure 3.4, obtenu sur un échantillon différent mais de la même génération. Le spectre est assez bruité, et présente une seule structure de largeur $\approx 0,5$ meV à $E = 1,6$ meV. L’existence d’une répulsion de niveaux ne pourrait justifier un tel “trou”, en particulier elle n’est pas aussi sélective en énergie et devrait avoir lieu sur une plus large plage spectrale. Ceci s’explique par plusieurs différences majeures entre les deux expériences. D’un point de vue technique tout d’abord, la résolution spatiale de notre expérience de μ -PL est inférieure à celle du SNOM (environ 200 nm) et le filtre d’auto-corrélation spatiale est donc moins bon. D’autre part, le potentiel désordonné possède dans les fils que nous avons étudié une longueur de corrélation légèrement plus grande (500 Å) et surtout une amplitude deux fois plus faible. Comme nous l’avons montré dans la section 3.3.3, les minima du potentiel désordonné dans ces fils se comportent alors comme des boîtes quantiques indépendantes (Fig 3.19.b). Cette description a été validée dans ces fils par les travaux de Joël Bellessa, qui a relié les propriétés optiques et dynamiques des états localisés à la taille des boîtes quantiques correspondantes [23, 52, 53]. Les états excités des boîtes, dont l’écart énergétique avec le fondamental peut être vu comme l’effet de la “répulsion de niveaux”, n’émettent pas en luminescence et n’apparaissent donc pas dans les cartes, ce qui explique que l’effet ne soit pas visible dans l’auto-corrélation $R_c(E)$.

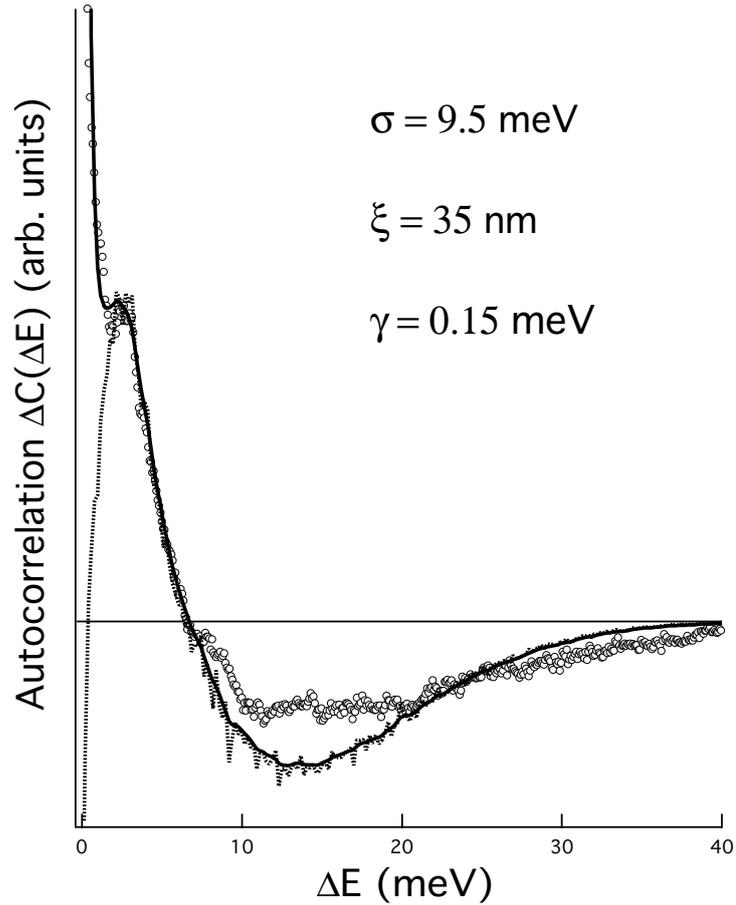


FIG. 3.20 – Spectre d'autocorrélation $R_c(E)$ (noté $\Delta C(\Delta E)$ sur la figure) obtenu sur des fils quantiques en V dans le régime $0D$, d'après [57]. Les ronds désignent la courbe expérimentale, et les tirets la courbe simulée pour un potentiel aléatoire gaussien de variance $\sigma = V_{loc}$ et de longueur de corrélation $\xi = L_{loc}/(2\sqrt{\ln 2})$ indiquées; la courbe en trait plein présente le résultat de la convolution de la courbe simulée par une lorentzienne de largeur γ , qui correspond à la résolution spectrale de l'expérience.

3.4 Signatures du désordre résiduel

Dans les meilleurs échantillons dits en régime 1D (NM79 et NM172), nous avons montré que les fluctuations d'une monocouche des hétéro-interfaces sont peu nombreuses et séparées par des distances suffisamment importantes pour que les états d'excitons localisés dans ce type d'îlots forment une bande d'états 1D très proches en énergie. Cependant, le pic de luminescence associé à de tels îlots a toujours une largeur spectrale ΔE relativement importante, de 1 meV à $T = 10 \text{ K}$, et est très bien reproduit par une lorentzienne. Cette largeur est a priori reliée au désordre, au sens large du terme, dynamique ou statique, et intrinsèque ou extrinsèque. La forme lorentzienne de la raie est compatible avec un élargissement purement homogène, dû au déphasage de l'exciton par interaction avec un ou plusieurs continus, caractérisée par une probabilité de transition de l'exciton $1/\tau = \Delta E/\hbar$ correspondant à un temps de déphasage $\tau \approx 1 \text{ ps}$ très court. C'est ce que nous appellerons un désordre dynamique. Mais l'hypothèse d'un élargissement inhomogène, dû à un désordre statique, ne peut être exclue a priori. C'est à cette question que nous allons répondre dans cette section.

Nous avons dans un premier temps cherché à expliquer cet élargissement par des mécanismes intrinsèques, mais les contributions à l'élargissement homogène de la transition dues à la recombinaison radiative ($\Gamma_{rad} \approx 2 \text{ } \mu\text{eV}$) et à l'interaction avec les phonons ($\Gamma_{phon} \approx 60 \text{ } \mu\text{eV}$) ne sont pas suffisantes pour expliquer la largeur ΔE mesurée. Nous considérerons chacune de ces interactions plus en détail au chapitre 4.

Les causes extrinsèques possibles de désordre sont nombreuses. Un désordre statique peut être généré par le désordre d'alliage, par une rugosité des interfaces à une échelle inférieure au rayon de Bohr de l'exciton, par la présence d'impuretés ou par l'existence de champs piézo-électriques internes dans la structure. Les causes de désordre dynamique et extrinsèque sont plus complexes, et peuvent faire intervenir des mécanismes de charge et décharge d'impuretés, ou bien des charges photo-crées non recombinaisonnées.

Après avoir présenté séparément l'effet piézo-électrique, puis chacun des mécanismes de désordre statique et dynamique, nous interpréterons un faisceau d'expériences très variées présentant chacune des signatures du désordre résiduel.

3.4.1 Champs piézo-électriques internes

Evaluation du champ piézo-électrique dans les fils en V

L'effet piézo-électrique se produit dans certains matériaux semiconducteurs lorsqu'ils sont contraints [65]. Il est la conséquence du caractère non centro-symétrique du cristal semiconducteur, ce qui est le cas pour les matériaux III-V et II-VI. Dans les hétérostructures, les contraintes apparaissent en général uniquement au voisinage des hétéro-interfaces en raison du désaccord de paramètre de maille entre les différents matériaux, et relaxent lorsque l'on s'éloigne de ces interfaces. Les polarisations et les champs électriques générés par ces contraintes sont donc concentrés autour des interfaces. Il est à noter que seules les contraintes biaxiales, en particulier de cisaillement, donnent lieu à l'apparition d'un champ piézo-électrique, qui n'existe pas en présence d'une contrainte de compression uniaxiale. En termes de tenseur de contraintes, l'effet piézo-électrique est lié à l'existence d'éléments de matrice non-diagonaux différents de zéro dans ce tenseur.

Considérons désormais le cas de nos fils quantiques semiconducteurs. Les interfaces entre le puits de GaAs et la barrière de GaAlAs sont formées de facettes (100), (311) et (111). Les contraintes à l'interface (100) sont de type uniaxial en raison de la grande

symétrie de cette surface, et ne génèrent pas de champ piézo-électrique. Les facettes (111) sont pour leur part relativement éloignées du centre du fil, et l'exciton est peu sensible aux polarisations et champs piézo-électriques relatifs à cette interface. Nous nous intéresserons donc de manière préférentielle à l'interface (311). Nous ferons l'hypothèse que seul le GaAs est contraint, en raison de son épaisseur trop faible pour permettre une relaxation de la contrainte. La couche de GaAlAs, d'épaisseur 900 nm, est pour sa part relaxée au niveau du fil. Dans le GaAs, la polarisation \mathbf{P} est reliée aux éléments non diagonaux du tenseur de contraintes symétrisé $\hat{\epsilon}$ par la relation [65, 66] :

$$P_i = \sum_{j \neq k} 2e_{14}\epsilon_{jk},$$

où $e_{14} = 0,16 \text{ C.m}^{-2}$ est la constante piézo-électrique dans GaAs. Dans le repère lié à cette interface, dont les axes sont $x' = [\bar{2}33]$, $y' = [01\bar{1}] = x$ et $z' = [311]$ (Fig. 3.21), le tenseur de contraintes au voisinage d'une interface AlAs/GaAs est déduit des paramètres de maille des deux matériaux [67]. Il relie les vecteurs de base $(\tilde{\mathbf{x}}, \tilde{\mathbf{y}}, \tilde{\mathbf{z}})$ de la maille du cristal contraint à la base $(\hat{\mathbf{x}}, \hat{\mathbf{y}}, \hat{\mathbf{z}})$ du cristal non contraint par l'équation $\tilde{\mathbf{x}} = (1 + \epsilon_{x'x'})\hat{\mathbf{x}} + \epsilon_{x'y'}\hat{\mathbf{y}} + \epsilon_{x'z'}\hat{\mathbf{z}}$ et ses analogues pour $\tilde{\mathbf{y}}$ et $\tilde{\mathbf{z}}$. Il varie en première approximation linéairement avec la concentration d'Al, ce qui permet de le calculer à l'interface GaAs/ $\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$, ainsi que la polarisation et le champ électrique induits $\mathbf{E} = \mathbf{P}/\epsilon_0\epsilon_r$, où $\epsilon_r = 12,85$ est la constante diélectrique relative dans GaAs. Ces quantités sont récapitulées dans la table 3.2.

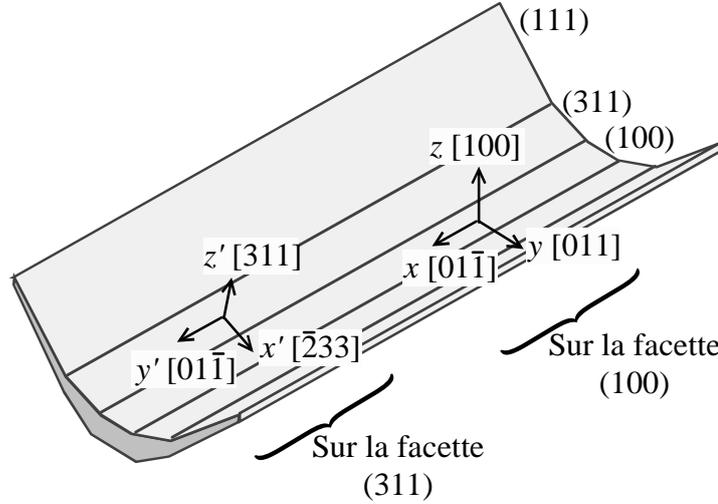


FIG. 3.21 – Bases considérées dans le calcul du champ piézo-électrique.

AlAs / GaAs	GaAs/ $\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$		
$\epsilon_{x'y'} = -1,37 \cdot 10^{-3}$	$\epsilon_{x'y'} = +5,8 \cdot 10^{-4}$	$P_{z'} = 1,9 \cdot 10^{-4} \text{ C.m}^{-2}$	$E_{z'} = 1,6 \cdot 10^6 \text{ V.m}^{-1}$
$\epsilon_{y'z'} = 0$	$\epsilon_{y'z'} = 0$	$P_{x'} = 0$	$E_{x'} = 0$
$\epsilon_{x'z'} = -3,97 \cdot 10^{-4}$	$\epsilon_{x'z'} = +1,7 \cdot 10^{-4}$	$P_{y'} = 5,4 \cdot 10^{-5} \text{ C.m}^{-2}$	$E_{y'} = 4,7 \cdot 10^5 \text{ V.m}^{-1}$

TAB. 3.2 – Contrainte, polarisation et champ piézo-électrique à l'interface (113)A [67]

Le changement de signe de la contrainte est dû à l'ordre inversé des matériaux à l'interface.

3.4 Signatures du désordre résiduel

Il existe donc à l'interface (311) deux composantes non nulles de la polarisation, l'une dirigée suivant l'axe du fil (y') et l'autre perpendiculaire à l'interface (z'). Les champs électriques associés agissent sur les excitons confinés dans le fil de manière très différente suivant ces deux directions, que nous allons considérer séparément.

Effet de la composante du champ piézo-électrique perpendiculaire à l'axe du fil

Dans la direction z' perpendiculaire à l'interface, les excitons sont confinés et la présence du champ électrique $E_{z'}$ se traduit par un effet Stark confiné quantiquement (QCSE). Ce champ se décompose en deux composantes suivant l'axe z de croissance et l'axe y de confinement latéral respectivement. Pour obtenir un premier ordre de grandeur de l'effet de ce champ, nous pouvons calculer la correction en énergie, au deuxième ordre en perturbation dans la limite des faibles champs électriques [16, p 308], comme dans un puits quantique, dans les deux directions de confinement supposées indépendantes (Fig. 3.22). Cette correction s'écrit dans le cas d'un puits quantique d'épaisseur L à barrières infinies $-e^2 E^2 d^2 / \Delta E_{Conf}$, où $d = L/\pi^2$ est l'élément de matrice de z entre les deux premières sous-bandes du puits, et $\Delta E_{Conf} = 3\hbar^2 \pi^2 / 2mL^2$ est la différence d'énergie entre ces deux sous-bandes. Elle est donc proportionnelle, pour l'exciton, à $-e^2 E^2 L^4 (m_e + m_h)$ en prenant soin de prendre les masses effectives du trou correspondant aux directions considérées. Cette correction vaut dans le cas des fils étudiés environ $-10 \mu eV$ dans la direction z' et $-200 \mu eV$ dans la direction y' . Elle est petite devant la séparation entre les premières sous-bandes, ce qui justifie le traitement perturbatif choisi.

Un traitement plus complet, tenant compte des fonctions d'onde réelles du fil quantique, a été réalisé par L. De Caro et L. Tapfer dans des fils gravés en $V \text{In}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}/\text{GaAs}$ [68]. Le désaccord de maille entre InAs et GaAs étant environ 50 fois plus important qu'entre AlAs et GaAs ($\epsilon_{x'y'} = -6,69.10^{-2}$ au lieu de $-1,37.10^{-3}$), les champs piézo-électriques sont importants dans ce type d'hétéro-structures, malgré une constante piézo-électrique plus faible ($e_{14} = 0,045 \text{ C.m}^{-2}$) et une constante diélectrique $\epsilon_r = 15,15$ plus grande dans InAs que dans GaAs. Dans cette étude, les champs piézo-électriques sont aussi de l'ordre de 10^6 V.m^{-1} sur les facettes latérales du fil, soit 2 fois moins que dans nos fils, et la correction en énergie vue par les excitons est de l'ordre de -5 meV . En tenant compte de l'extension des états confinés dans la direction latérale, qui donne lieu à l'effet le plus important comme nous venons de le voir, et qui est deux fois plus importante dans les fils InGaAs que dans nos fils, nous pouvons extrapoler la correction en énergie induite dans notre système, qui vaut environ $-5 \text{ meV} \times 2/2^4 \approx -0,5 \text{ meV}$ en vertu de la loi en L^4 écrite ci-dessus.

Effet de la composante du champ piézo-électrique parallèle à l'axe du fil

Dans la direction libre $y' = x$ du fil, le champ piézo-électrique $E_{y'} \approx 5.10^5 \text{ V.m}^{-1}$ entre en compétition avec l'interaction Coulombienne entre l'électron et le trou [16, p 304]. Notons qu'il n'agit pas sur le mouvement du centre de masse de l'exciton, mais seulement sur son mouvement relatif, car la charge totale de l'exciton est nulle. L'hamiltonien d'interaction entre l'exciton et le champ est $eE_{y'}x$, où x désigne comme à la section 1.4 le mouvement relatif de la paire électron-trou. Il importe donc de comparer la quantité $eE_{y'}a_{1D} \approx 3,5 \text{ meV}$, à l'énergie de liaison de l'exciton $E_{Coul} \approx 20 \text{ meV}$, où $a_{1D} \approx 70 \text{ \AA}$ est le rayon de Bohr de l'exciton. Tant que $eE_{y'}a_{1D} < E_{Coul}$, l'état lié excitonique persiste, alors que pour des champs supérieurs l'exciton est ionisé. La figure 3.23

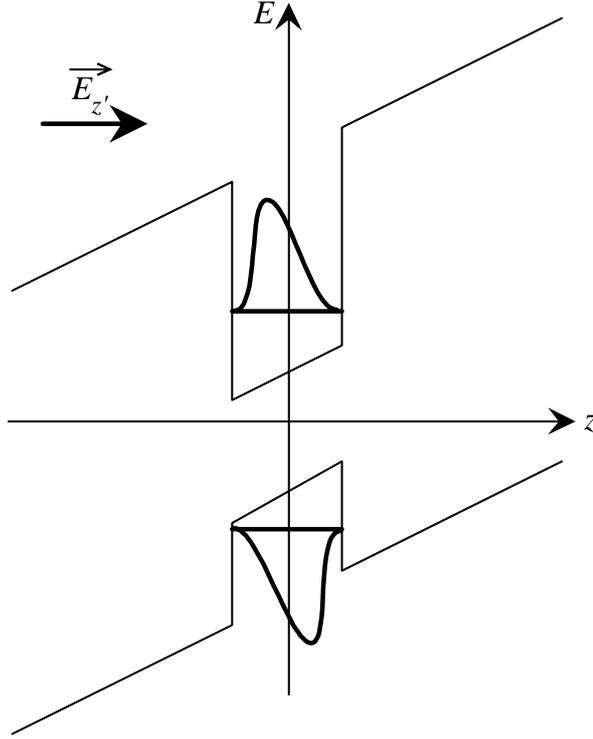


FIG. 3.22 – Représentation schématique de l'effet d'un champ électrique selon la direction de confinement, dans un puits quantique

présente les deux premiers états de l'exciton, calculés précédemment, et le potentiel Coulombien associé corrigé de l'hamiltonien d'interaction avec le champ $E_{y'}$. L'effet du champ piézo-électrique apparaît clairement comme étant non négligeable, et seul l'état fondamental de l'exciton persiste, les états excités étant ionisés. La correction énergétique à l'énergie de l'état fondamental de l'exciton peut être calculée, comme dans le cas de l'effet Stark confiné, au deuxième ordre en perturbation, et est donnée par $-e^2 E_{y'}^2 x_{01}^2 / \Delta E_{Coul}$, où $x_{01} \approx 20 \text{ \AA}$ est l'élément de matrice de x entre les deux premiers états excitoniques, et $\Delta E_{Coul} = E_{Coul}^{n_x=1} - E_{Coul}^{n_x=0} \approx 16 \text{ meV}$ est la différence d'énergie entre ces deux états. Elle est d'environ $-70 \text{ } \mu\text{eV}$, mais la validité de l'approche perturbative est remise en cause par l'ionisation du premier état excité de l'exciton, qui n'existe plus en tant que tel.

Cependant, il ressort de cette étude que l'effet d'un champ piézo-électrique est très important dans la direction libre du fil et ionise les états excités de l'exciton, même si l'état fondamental semble faiblement perturbé. De plus, nous avons considéré jusqu'ici l'effet d'un tel champ sur un exciton déjà formé, mais les paires photocréées dans les sous-bandes supérieures du fil quantique ne sont en général pas liées, et doivent donc migrer sous l'effet du champ piézo-électrique dans des directions opposées, ce qui ne favorise pas la formation de l'exciton et diffère fondamentalement de la situation en l'absence de champ.

Nous devons tout de même noter que le champ $E_{y'}$ calculé constitue une majoration du champ réellement vu par l'exciton, pour deux raisons : d'une part, la fonction d'onde dans la première sous-bande est concentrée latéralement au centre du V, où il n'existe pas de champ piézo-électrique; d'autre part, l'orientation du cisaillement sur les deux facettes (311) gauche et droite du fil ne sont a priori pas corrélées. Si le cisaillement est

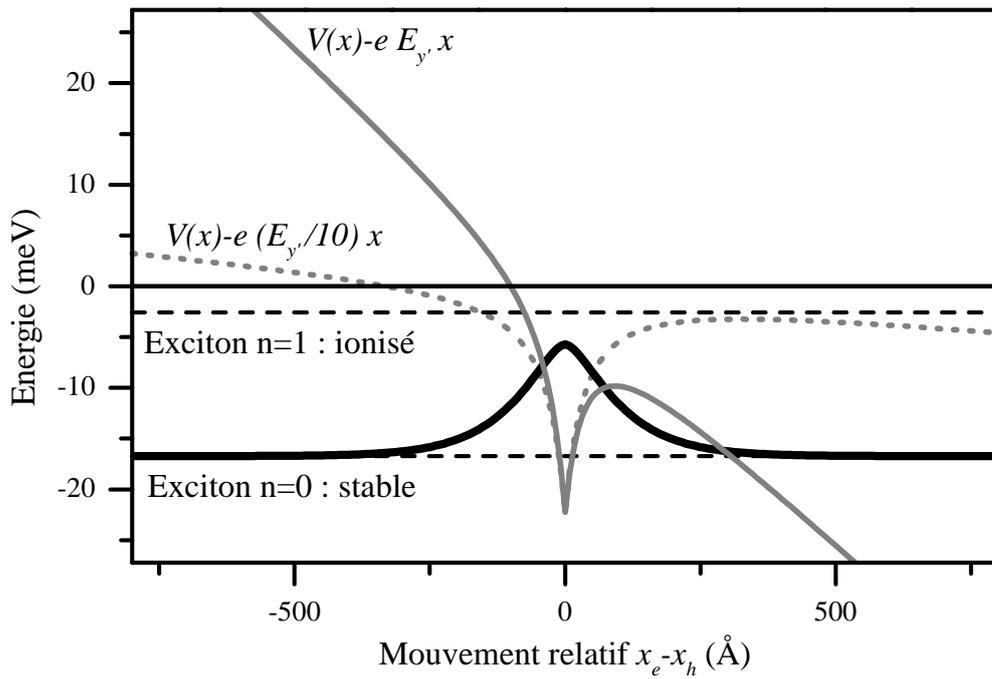


FIG. 3.23 – Représentation schématique de l'effet d'un champ électrique selon la direction libre du fil quantique. Les deux premiers états excitoniques calculés dans la section 1.4 sont présentés, ainsi que la somme du potentiel Coulombien effectif $V_{1,1,1,1}(x)$ (défini au paragraphe 1.4) et du potentiel généré par les champs $E_{y'}$ (traits pleins) et $E_{y'}/10$ (traits pointillés).

orienté dans le même sens, les champs piézo-électriques générés par chacune des facettes sont aussi de même sens, alors que si les cisaillements sont de sens opposés, les champs sont de sens contraires et leurs interactions avec le mouvement relatif de l'exciton se compensent au premier ordre suivant l'axe du fil. Nous sommes donc amenés à nous interroger sur la nature de l'ordre sur les facettes latérales. Les contraintes sur les deux facettes de part et d'autre du V sont-elles corrélées? Cela est peu vraisemblable car les facettes sont séparées par une interface (100) non contrainte. Quelle est la longueur de corrélation de la contrainte sur ces facettes? Les études réalisées en microscopie à force atomique et en microscopie électronique en transmission ne donnent pas accès à ce type d'informations, qui nécessiteraient une résolution sub-atomique et une analyse très complexe [69]. Il est cependant probable que la contrainte relaxe à chaque marche d'une mono-couche sur les interfaces, voire même sur des distances beaucoup plus courtes. Dans tous les cas, le mouvement relatif de l'exciton sonde le champ piézo-électrique moyenné sur les deux facettes gauche et droite, et sur le rayon de Bohr de l'exciton. Même dans le cas où ce champ moyenné est 10 fois inférieur au champ calculé, comme présenté sur la figure 3.23, son effet resterait non négligeable et entraînerait en particulier l'ionisation des états excités de l'exciton et influencent sa formation.

Mise en évidence de l'existence de ce champ dans certains échantillons de fils en V

Nous avons déjà cité les travaux expérimentaux et théoriques réalisés sur une structure laser à base de fils en V InGaAs/GaAs [68]. Lorsque le courant d'injection, et donc la densité de porteurs, est augmentée, la raie d'électro-luminescence se déplace vers les hautes énergies d'environ 4 meV. Le calcul de la composante du champ piézo-électrique perpendiculairement à l'axe du fil montre que la correction associée est de l'ordre de 5 meV sur l'énergie de confinement des porteurs. En raison du faible confinement dans ces fils de 10 nm d'épaisseur, l'énergie de liaison des excitons y est faible et les auteurs associent la luminescence à la recombinaison de paires électron-trou libres quelle que soit la densité de porteurs, comme le confirment les résultats de magnéto-luminescence; la composante du champ piézo-électrique selon l'axe du fil est négligée. Le déplacement de 4 meV de la raie en fonction de l'intensité injectée est attribué à l'écrantage par le gaz de porteurs des champs piézo-électriques internes, qui comme nous l'avons vu abaissent l'énergie de la transition. Il se produit à une densité de porteurs qui égale la densité de charges de polarisation. Ce dernier argument peut être compris comme suit : les charges de polarisation, qui sont *virtuelles*, s'accumulent sur les interfaces (311) inférieure et supérieure du fil dans le cas du champ perpendiculaire au fil, avec une densité de l'ordre de $10^{-4} C.m^{-2} \approx 10^{15} e.m^{-2}$. En prenant, comme précisé dans cet article, pour extension latérale de la fonction d'onde confinée 25 nm, cela correspond à une densité linéique de charges de l'ordre de quelques $10 \mu m^{-1}$ dans le fil. Ces travaux mettent donc en évidence l'existence du champ piézo-électrique dans les structures de fils gravés en V, et son écrantage par les porteurs.

Des expériences réalisées par X.Q. Liu ont récemment permis de mettre en évidence l'existence de champs piézo-électriques dans les fils quantiques GaAs/GaAlAs gravé en V fabriqués par X.L. Wang [70]. L'échantillon étudié est singulier, et le comportement observé n'est reproduit par aucun des échantillons présentés dans ce mémoire. Sa spécificité est de comporter un super-réseau de courte période en-dessous du fil en V, permettant d'améliorer la qualité des interfaces (311) et d'y supprimer une partie de la rugosité à courte échelle [14]. Il a été réalisé avec l'ancienne source d'arsenic (AsH_3), et en utilisant

3.4 Signatures du désordre résiduel

le procédé d'attaque chimique du substrat à l'ammoniac. Les principales caractéristiques de cet échantillon sont les suivantes : à basse température ($T = 10\text{ K}$), le spectre de luminescence dépend fortement de la densité de porteurs, et la raie se déplace d'environ 5 meV vers le bleu tout en s'affinant spectralement (de 16 à 10 meV). La dépendance de l'intensité intégrée en fonction de la puissance intégrée montre qu'une partie de la recombinaison est non radiative à très faible densité de porteurs. Ces effets sont complètement absents à plus haute température ($T = 100\text{ K}$). D'autre part, l'absorption dans la première sous-bande est complètement inhibée à basse température et faible densité de porteurs, et est recouverte lorsque la température est augmentée ou lorsqu'un second faisceau laser crée des porteurs à plus haute énergie. Ces deux propriétés sont interprétées comme la signature de l'existence de champs électriques internes, d'origine piézo-électrique, dus à l'amélioration de la qualité des interfaces (311). Leur disparition lorsque la température ou la densité de porteurs augmente, comme dans les expériences réalisées sur des fils InGaAs, montre que ces champs internes sont écrantés par le gaz de porteurs photocréés. En conclusion, ces expériences ont montré qu'il existe un fort effet piézo-électrique dans les fils quantiques GaAs gravés en V lorsque les interfaces latérales (311) sont de grande qualité structurale.

3.4.2 Le désordre résiduel statique

Le désordre résiduel statique, i.e. constant au cours du temps à l'échelle de la durée de vie de l'exciton, a plusieurs origines structurales [71] : il peut être dû au désordre d'alliage, à la rugosité des interfaces à une échelle inférieure au rayon de Bohr de l'exciton, à la présence d'impuretés ou à l'existence de champs piézo-électriques internes. Il a été mis en évidence au début des années 1990 dans les puits quantiques, lorsque les progrès de la croissance ont permis d'obtenir des interfaces relativement lisses [72]. Le spectre de luminescence de tels échantillons est alors composé de deux ou trois raies, chacune associée à la luminescence d'excitons dans des zones étendues d'épaisseur quantifiée en un nombre entier de mono-couches. Mais deux observations sont venues modérer cette image presque parfaite. D'une part la position de ces raies dépendait de la position sur l'échantillon, et les différences d'énergie entre elles étaient inférieures de 20% à celle prédite pour une variation d'une monocouche de l'épaisseur du puits. D'autre part la largeur des raies de luminescence, de l'ordre de 1 meV , était trop importante, comme dans notre cas, pour être due à un élargissement homogène d'origine intrinsèque [73]. Des expériences complémentaires de cathodoluminescence ont montré que ce désordre a une longueur de corrélation très courte, inférieure à la résolution spatiale de l'ordre de 60 nm [74]. Le potentiel désordonné agissant sur les électrons possède donc plusieurs longueurs caractéristiques, qui apparaissent plus clairement dans l'espace réciproque comme le montre le schéma 3.24.

Rugosité des interfaces à l'échelle atomique

Nous avons supposé jusqu'à présent que les hétéro-interfaces sont parfaitement lisses mais présentent des marches abruptes d'une mono-couche. Cette image est cependant simplificatrice et il existe aussi des fluctuations d'interfaces à l'échelle atomique. Celles-ci sont statiques et l'amplitude de la perturbation ainsi générée est difficile à évaluer.

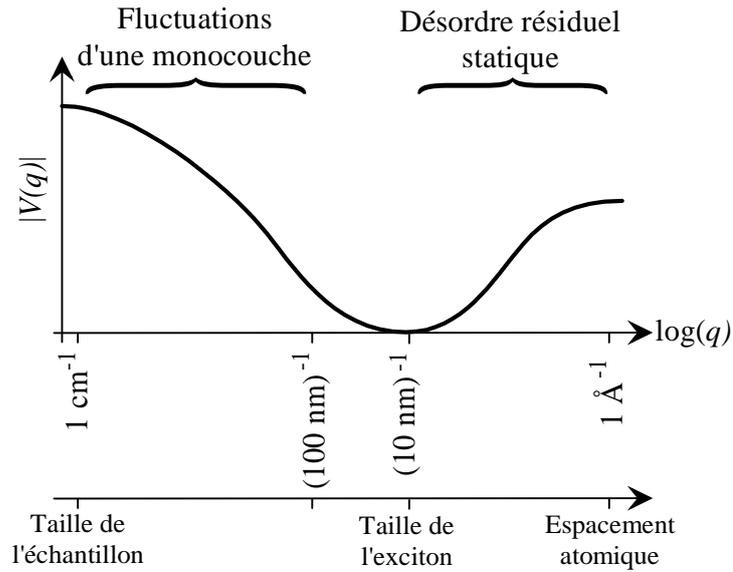


FIG. 3.24 – Représentation schématique du potentiel désordonné dans l'espace réciproque.

Le désordre d'alliage

Le désordre d'alliage est dû à la répartition aléatoire dans l'espace des atomes de Ga et d'Al dans le matériau barrière ($\text{Al}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$) [16, p 219]. Il n'existe pas dans le matériau puits (GaAs). La longueur de corrélation du potentiel ainsi généré est aussi de l'ordre de la distance inter-atomique. Etant donné l'épaisseur du fil quantique, la proportion de la fonction d'onde des électrons et des trous hors du GaAs est faible mais non négligeable, et correspond à une probabilité de présence dans la barrière de 14% pour l'électron et 8% pour le trou dans nos fils, d'après les fonctions d'onde calculées au paragraphe 1.3.2.

Les impuretés

La présence d'impuretés, en particulier dans la barrière, ne peut être complètement exclue. D'après les mesures réalisées sur des échantillons non gravés dans les mêmes conditions, les densités typiques d'impuretés dans le matériau épitaxié, telles le carbone, sont inférieures à 10^{15} cm^{-3} dans le GaAs et à 10^{17} cm^{-3} dans le GaAlAs. En prenant pour section¹⁰ de la fonction d'onde de porteurs confinés $5 \times 12 \text{ nm}^2$, cela correspond une densité linéique maximale d'impuretés présentes dans le GaAs (respectivement dans l'AlGaAs) vues par un électron ou un trou de l'ordre de $0,05 \mu\text{m}^{-1}$ (respectivement $1 \mu\text{m}^{-1}$). Selon le type d'impureté, neutre ou chargée, celle-ci interagit par un potentiel électrostatique avec les excitons, avec une longueur caractéristique de l'ordre du rayon de Bohr excitonique.

Il est à noter que nous pouvons exclure l'hypothèse d'une luminescence d'excitons liés à des impuretés. Si cela était le cas, la transition associée présenterait une saturation en fonction de la puissance d'excitation au profit de la transition d'exciton non lié, ce que nous n'observons pas (Sec 5.3.1). De plus, les spectres de PLE devraient présenter des signatures de l'origine extrinsèque de la luminescence : l'absorption se fait sur les

10. La section moyenne de la fonction d'onde $f_1^{2D}(y,z)$ perpendiculairement à l'axe du fil dans la première sous-bande est donnée de manière plus rigoureuse par $\iint dy dz |f_1^{2D}(y,z)|^2 / \iint dy dz |f_1^{2D}(y,z)|^4$, et vaut 65 nm^2 pour les électrons et 55 nm^2 pour les trous.

3.4 Signatures du désordre résiduel

états libres à toute température, alors que dans le cas d'une luminescence extrinsèque, celle-ci ne se produit qu'à basse température et ce sont les excitons "libres" qui se recombinaient à haute température. Dans l'hypothèse d'une recombinaison extrinsèque, la distance énergétique entre la raie de luminescence et la transition $e2h2$ mesurée sur les spectres de PLE devrait donc intégrer une contribution due à l'énergie de liaison des excitons sur l'impureté à basse température uniquement, ce qui est en contradiction avec nos mesures qui montrent que cette distance énergétique est indépendante de la température (Sec 4.3.2). Enfin, la luminescence de biexcitons observée lorsque la densité de porteurs augmente montre aussi que les excitons ne sont pas liés à des impuretés.

Simulation du désordre statique

Tous les mécanismes envisagés pour générer un désordre résiduel statique ont donc une longueur de corrélation de l'ordre du rayon de Bohr de l'exciton ou inférieure. Le potentiel aléatoire correspondant est moyenné sur l'extension de l'exciton et est gaussien, si l'on suppose qu'il n'existe pas de corrélations spatiales, de faible amplitude et de longueur de corrélation de l'ordre du rayon de Bohr de l'exciton. Il se superpose à celui présenté sur la figure 3.16 dû aux variations abruptes d'une monocouche de l'épaisseur du fil, et qui correspond aux composantes de petits vecteurs d'onde sur le schéma 3.24.

Pour tenter de comprendre si un tel désordre peut expliquer la raie de μ -PL large observée sur les échantillons en régime 1D, nous pouvons simuler les états propres d'un tel potentiel en reprenant le modèle développé par David Larousserie [64] et présenté dans la section 3.3.3, pour des jeux de paramètres différents. Les résultats obtenus pour une longueur caractéristique $L_C = 10 \text{ nm}$ comparable au rayon de Bohr, et une profondeur moyenne V_{loc} de 0,2 et 0,5 meV sont représentés sur les figures 3.25 et 3.26.

Un potentiel d'amplitude $V_{loc} = 0,5 \text{ meV}$ permet de reproduire la largeur d'environ 2 meV des spectres de μ -PL, mais ceux-ci devraient être constitués d'une raie large avec des pics discrets à basse énergie d'après nos calculs. Un potentiel d'amplitude plus faible ($V_{loc} = 0,2 \text{ meV}$) donne lieu quant à lui à des spectres de μ -PL élargis de manière inhomogène, les états ne pouvant être distingués spectralement. La largeur de ces spectres est de 0,8 meV . L'utilisation de longueurs L_C supérieures au rayon de Bohr (200 ou 500 Å) accentue le caractère discret des spectres calculés avec $V_{loc} = 0,5 \text{ meV}$.

Il apparaît donc difficile de reproduire les spectres lorentziens de μ -PL, larges de 1 meV et dépourvus de pics fins, observés sur les échantillons en régime 1D dans l'hypothèse d'un désordre purement statique. En particulier, le caractère lorentzien de la raie de μ -PL, observé sur la plupart des pics et mis en évidence par l'étude statistique, imposerait des conditions fortes sur la distribution statistique du potentiel aléatoire généré par un tel désordre, qui devrait être beaucoup plus complexe que le simple désordre gaussien que nous avons considéré. Notons enfin, le spectre obtenu sur les îlots très étendus se décompose en général en deux lorentziennes principales (cf fin de la section 3.1.2), ce qui peut être le reflet d'un désordre statique résiduel qui deviendrait sensible sur une longueur de plusieurs microns. Néanmoins, la largeur de ces lorentziennes est là encore de l'ordre de 1 meV , montrant qu'un désordre dynamique participe à leur élargissement.

3.4.3 Le désordre résiduel dynamique

Comme il a été précisé dans l'introduction de cette section, la forme lorentzienne de la raie est en général la signature d'un élargissement homogène, c'est-à-dire une ou plusieurs interactions avec un continuum caractérisées par une probabilité de transition de

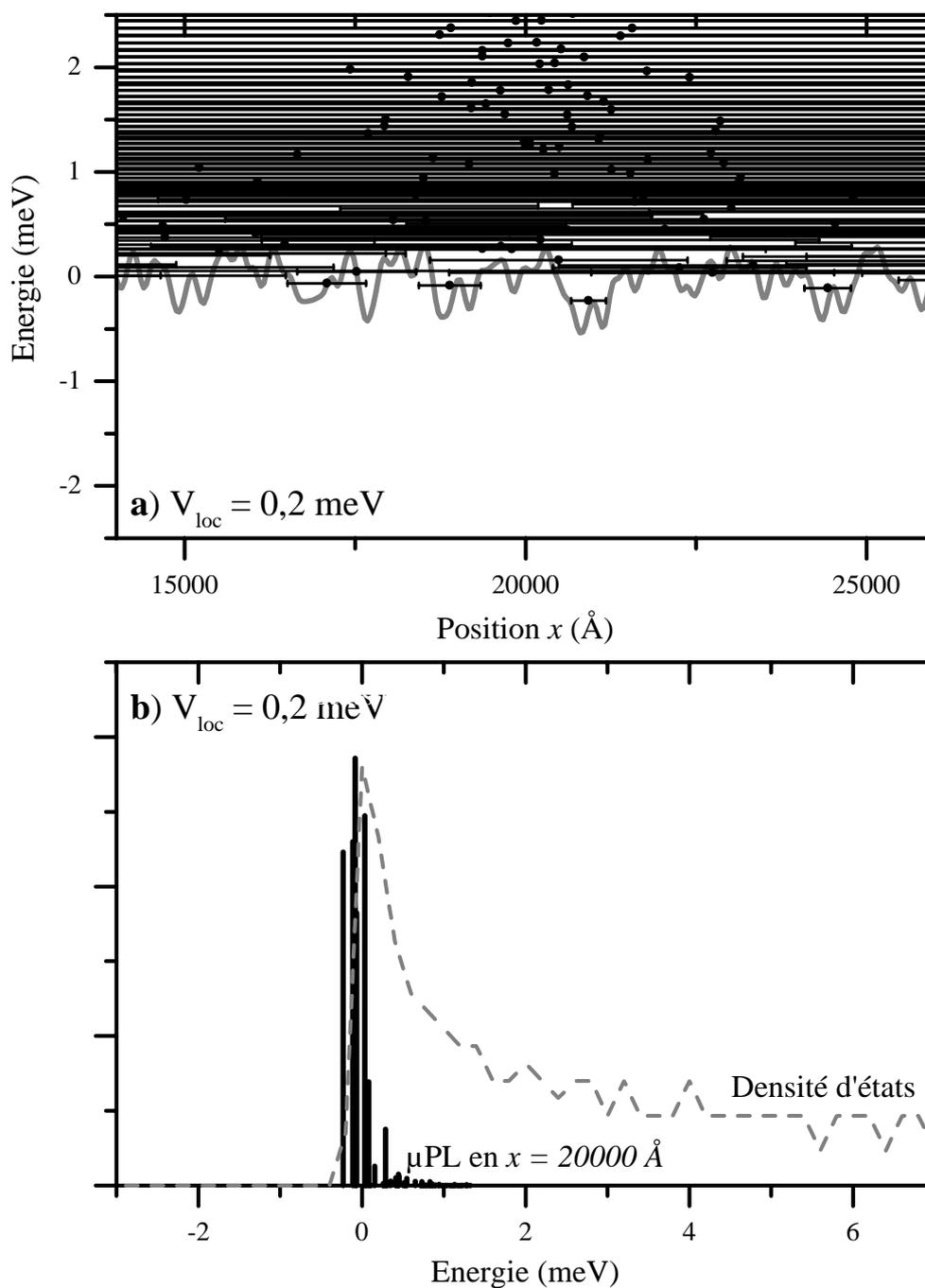


FIG. 3.25 – (a) *Etats propres et leur extension (barres horizontales) d'un potentiel aléatoire gaussien de paramètres $L_C = 100 \text{ \AA}$ et $V_{loc} = 0,2 \text{ meV}$; (b) spectre de $\mu\text{-PL}$ associé (pics), ainsi que la densité d'états (trait plein).*

3.4 Signatures du désordre résiduel

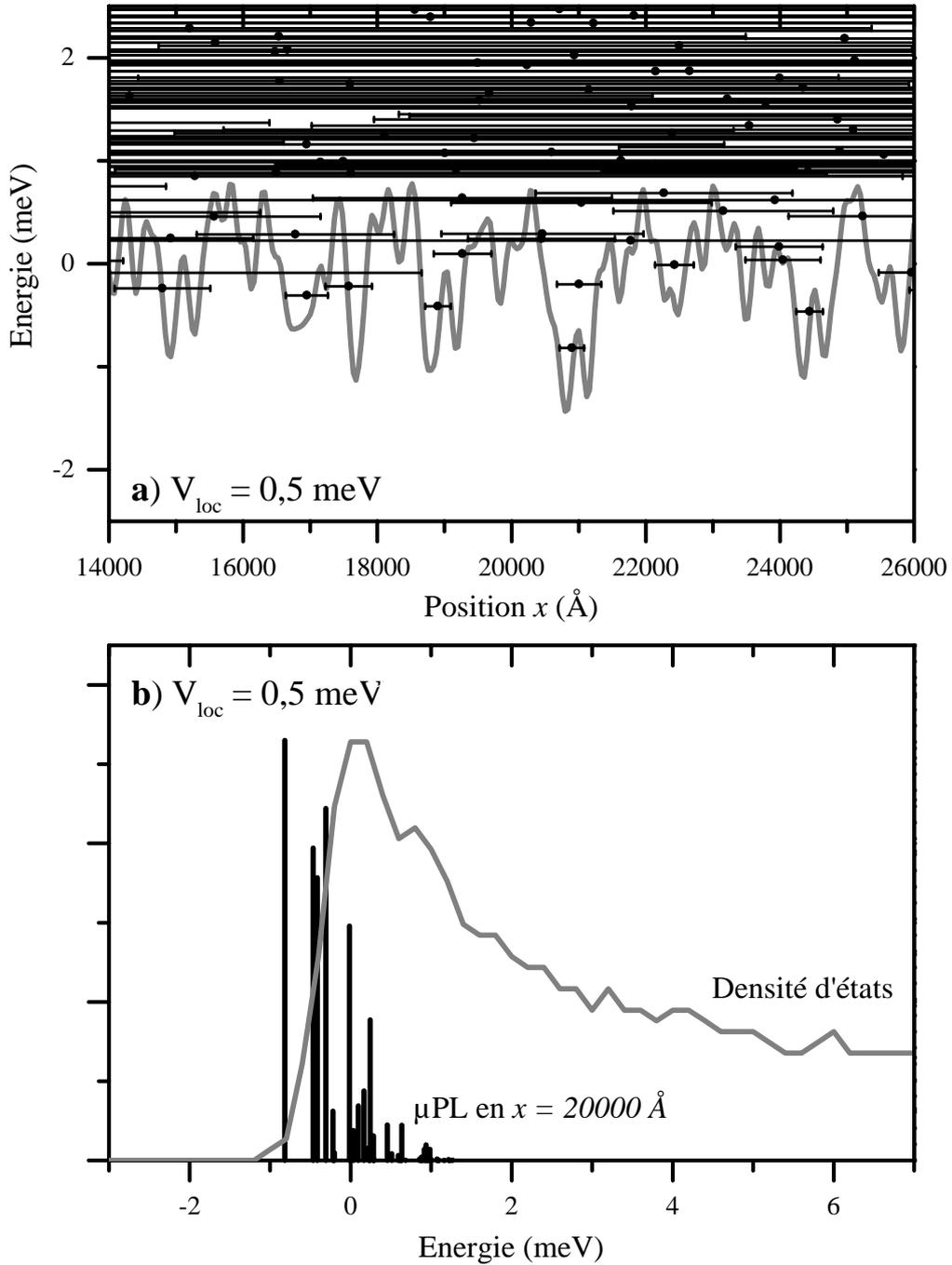


FIG. 3.26 – (a) Etats propres et leur extension (barres horizontales) d'un potentiel aléatoire gaussien de paramètres $L_C = 100$ Å et $V_{loc} = 0,5$ meV; (b) spectre de μ -PL associé (pics), ainsi que la densité d'états (trait plein).

l'exciton $1/\tau = \Delta E/\hbar$. Cependant, le temps τ associé à la largeur $\Delta E \approx 1 \text{ meV}$ des raies de μ -PL est trop court ($\tau \approx 1 \text{ ps}$) pour être attribué au déphasage par interaction avec les phonons ($\approx 10 \text{ ps}$) ou par recombinaison radiative ($\approx 300 \text{ ps}$). Les mécanismes de perte de cohérence du spin de l'exciton, qui font intervenir des termes non diagonaux de l'interaction avec les phonons, doivent quant à eux être moins efficaces que l'interaction avec les phonons. L'interaction avec les phonons sera étudiée plus en détail au chapitre 4. D'autres mécanismes d'interaction de l'exciton avec son environnement peuvent donner lieu à un élargissement homogène. Nous avons principalement envisagé les collisions Coulombiennes avec des impuretés, et celles avec des charges présentes dans le fil et issues de paires photo-crées n'ayant pas formé d'exciton.

Collisions Coulombiennes avec les impuretés

Nous avons considéré dans le paragraphe précédent deux conséquences possibles de la présence d'impuretés dans l'hétéro-structure : d'une part, l'hypothèse d'une luminescence extrinsèque d'excitons liés à des impuretés a été écartée; d'autre part, les impuretés peuvent générer un potentiel électrostatique selon l'axe du fil, c'est-à-dire un désordre résiduel statique sondé par l'exciton et donnant lieu à un élargissement inhomogène de la raie de μ -PL. Les impuretés peuvent aussi interagir avec les excitons par collisions Coulombiennes. A la différence de l'approche statique de l'influence des impuretés, l'état de l'exciton comme celui de l'impureté changent au cours des collisions, par échange de quantité de mouvement, d'énergie et/ou de spin entre les porteurs.

Collisions avec des charges

De la même manière, la présence de charges dans le fil quantique est une source de déphasage des excitons, par collisions Coulombiennes. Les fils ne sont bien entendu pas dopés de manière intentionnelle. Mais d'éventuelles impuretés-donneurs (respectivement accepteurs) dans les barrières pourrait introduire des électrons (respectivement des trous) dans le fil quantique, dans lequel elles seraient confinées, comme les paires photo-crées. La séparation de paires photocrées en charges libres ne doit pas non plus être négligée. Comme nous l'avons vu au 3.4.1, l'interaction Coulombienne entre électron et trou est fortement perturbée en présence de champ piézo-électrique interne. Lors de leur création par absorption non résonante d'un photon, une paire électron-trou non liée est créée, qui se liera le plus souvent au cours de la relaxation pour former un exciton avant de se recombiner. Mais les dérivées de l'électron et du trou sont opposées en présence d'un champ électrique permanent, et la formation de l'exciton peut donc être inhibée. Si l'on suppose que des charges ont été séparées à l'intérieur d'un îlot, elles n'interagissent que faiblement par interaction Coulombienne, et ne peuvent se recombiner de manière radiative. Les temps de piégeage dans ces états non radiatifs peuvent être longs, et sont limités par la diffusion, au cours de laquelle la paire peut de nouveau se lier, et par la fuite des charges hors de l'îlot.

Néanmoins dans le cas du champ piézo-électrique, la polarisation induite selon l'axe du fil par la contrainte est faible ($P_y \approx 5.10^{-5} \text{ C.m}^{-2}$). La section de la fonction d'onde des porteurs, perpendiculairement à l'axe du fil, étant d'environ $5 \times 12 \text{ nm}^2$ (Cf Sec. 3.4.2), les charges virtuelles associées à cette polarisation sont de $3.10^{-21} \text{ C} \approx 0,02 \text{ e}$. Elles sont donc écartées dès qu'une première paire électron-trou est créée localement, et la deuxième paire créée n'y est pas sensible.

3.4.4 Signatures expérimentales

Outre la largeur des raies de μ -PL, nous avons réalisé plusieurs expériences, présentées par la suite, que nous avons reliées à la présence du désordre résiduel.

En imagerie

Nous avons parfois observé des structures “anormales” sur les cartes, dont un exemple est présenté sur la figure 3.27. A la position $x = 2 \mu m$, l'énergie de luminescence des excitons dépend de manière très sensible de la position de l'excitation, et la tache associée à l'îlot considéré ne peut être séparée en une fonction spectrale et une fonction spatiale indépendantes. L'énergie de la transition principale varie d'environ $1 meV$, sur une distance de l'ordre de $2 \mu m$ de part et d'autre du défaut, et de nombreux pics satellites apparaissent à son voisinage, à basse et haute énergie. Ce type de structure ne peut être dû à la présence d'un désordre statique non électromagnétique, et semble caractéristique de l'existence, localement, de champs électriques internes. Il est difficile d'identifier le type de défaut ou d'impureté à l'origine de ce phénomène. Néanmoins, ceux-ci sont très rares dans les fils étudiés, et n'ont été rencontré que deux fois dans l'échantillon NM79, sur lequel nous avons réalisé des cartes de plusieurs centaines de microns de fils.

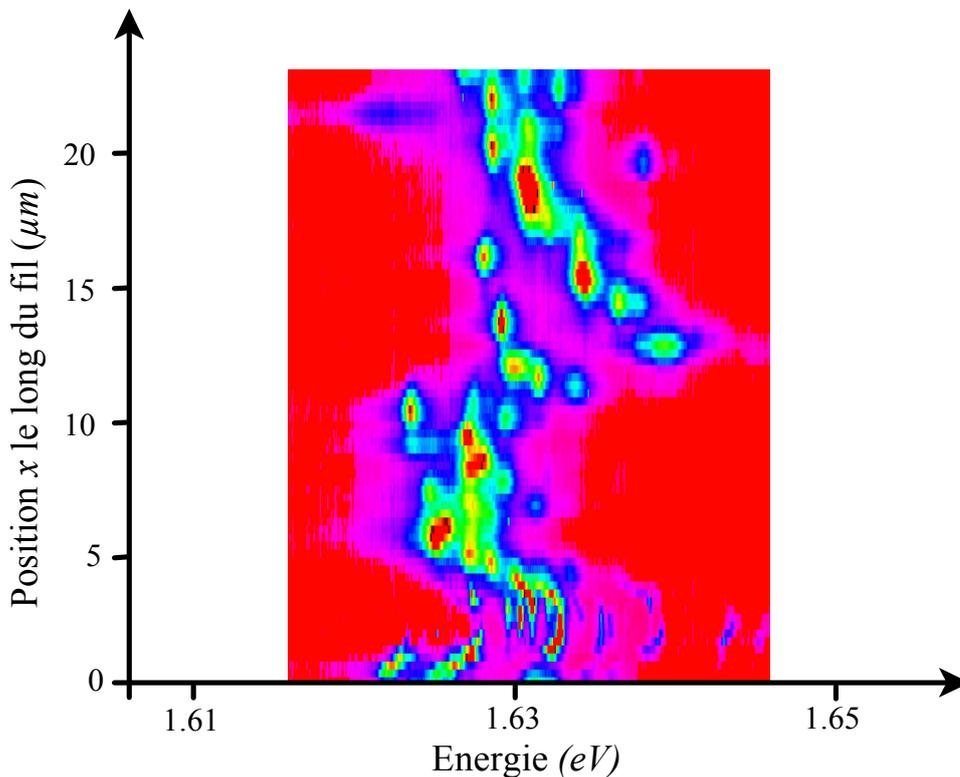


FIG. 3.27 – “Anomalie” d’un fil quantique à $x = 2 \mu m$, mise en évidence sur une carte (NM79).

Une autre observation peut être réalisée sur cette carte, à la position $x = 18 \mu m$: la tache associée à un îlot étendu sur $2 \mu m$ est légèrement inclinée. Son énergie de luminescence dépend de la position, selon un gradient d'environ $0,1 meV.\mu m^{-1}$. Ce type de gradient a été observé sur la plupart des îlots étendus, et plaide en faveur de l'existence de champs électriques internes. Ici le sens du gradient est constant.

Luminescence à très faible puissance d'excitation

Nous avons remarqué que, d'une manière surprenante, le spectre de μ -PL d'îlots étendus dans les fils quantiques de la nouvelle génération dépend de la puissance d'excitation dans le régime des très faibles puissances. Alors que la puissance nécessaire pour créer un exciton par temps de vie radiatif est de l'ordre de $P_0 = 400 \text{ W.cm}^{-2}$ en μ -PL (voir Sec. 5.2.1), le spectre de μ -PL varie dans le domaine des puissances inférieures à $P' = 2 \text{ W.cm}^{-2}$ (Figure 3.28). La raie principale se déplace spectralement de 0,5 à 2 meV, dans un sens qui dépend de l'îlot étudié. A la puissance P_0 , une paire est créée tous les temps de vie radiatif $\tau_{rad} \approx 300 \text{ ps}$ en moyenne, alors qu'à la puissance P' les paires sont créées toutes les $\tau_{rad}(P_0/P') \approx 50 \text{ ns}$. Cela signifie donc que toutes les paires créées ne se recombinent pas en un temps de l'ordre du temps de vie (300 ps), mais que certaines paires restent beaucoup plus longtemps dans le fil (quelques dizaines de ns) et interagissent avec l'exciton créé suivant. Malheureusement, étant donné les très faibles puissances mises en jeu, ce temps ne peut être mis en évidence par des expériences résolues temporellement, même en macro-luminescence, car la sensibilité du dispositif de détection n'est pas suffisante.

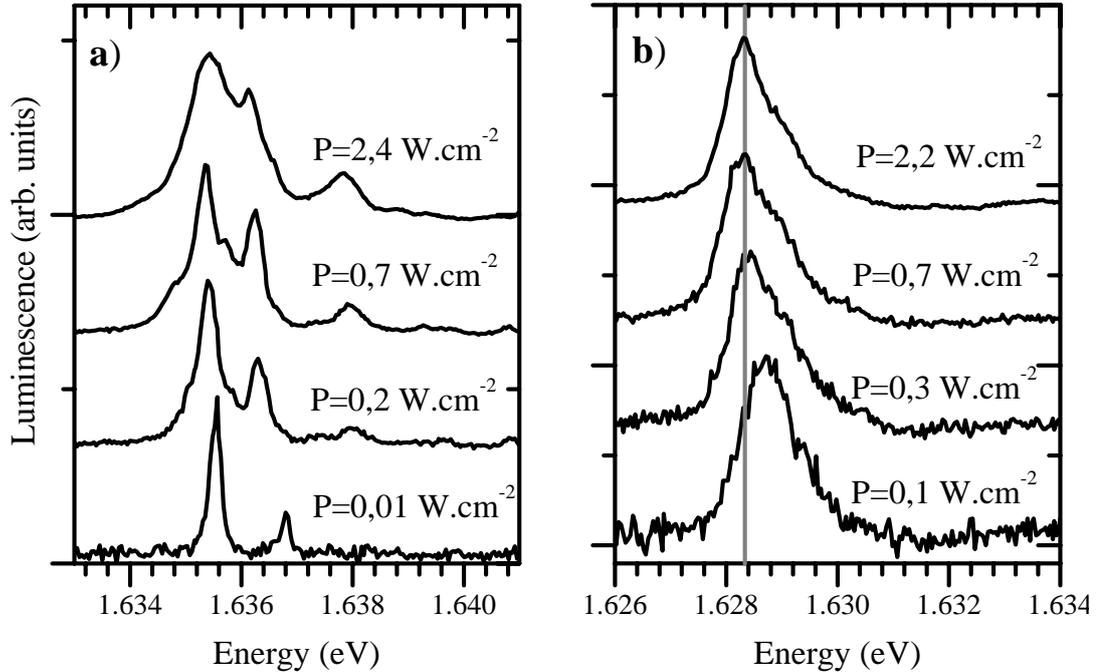


FIG. 3.28 – Spectre de μ -PL de deux îlots étendus (a – NM125 et b – NM79), dans le régime des très faibles puissances d'excitation.

Un tel comportement, très difficile à mettre en évidence en raison des très faibles puissances d'excitation¹¹, n'avait pas été observé dans les échantillons de la génération précédente pour des puissances supérieures à $0,2 \text{ W.cm}^{-2}$. L'existence de ce temps long montre que dans le régime habituellement qualifié de linéaire, entre 2 et 100 W.cm^{-2} , le nombre d'excitons présents dans un îlot et ses proches voisins est supérieur à 1. La "première" paire créée dans l'îlot ne forme pas en général un exciton qui se recombine, mais est plus vraisemblablement "stockée" dans un état non radiatif où les charges sont

11. Le temps d'acquisition d'un spectre sous une excitation de $0,5 \text{ W.cm}^{-2}$ est d'une heure !

séparées. Il est difficile d'évaluer précisément la densité de ces charges séparées. Des expériences réalisées dans les puits quantiques [75] ont montré que l'élargissement homogène de l'exciton est de l'ordre de 1 meV pour une densité d'électrons de 5.10^9 cm^{-2} dans le puits, équivalente à 10^4 cm^{-1} dans le fil, soit un électron par îlot.

Cependant, dans l'hypothèse où le champ piézo-électrique serait à l'origine de cette séparation de charges, un petit nombre de paires électron-trou serait suffisant pour écranter ce champ, car les charges virtuelles associées à la polarisation sont comme nous l'avons déjà évalué de l'ordre de de $0,02\text{ e}$. Enfin, il n'y a pas dans le processus mis en évidence de pertes de porteurs, électrons ou trous, par des canaux non radiatifs, car l'intensité intégrée de la raie de μ -PL reste proportionnelle à la puissance d'excitation jusqu'aux plus basses puissances.

Influence d'un éclairage annexe par un laser Helium-Néon

Nous avons remarqué que dans de nombreux cas, un très faible éclairage supplémentaire par un laser Helium-Néon (HeNe) modifie de manière notable le spectre de luminescence [44]. Dans l'exemple présenté sur la figure 3.29, obtenu sur deux îlots d'extension moyenne présents dans la zone excitée de $1\text{ }\mu\text{m}$, les raies lorentziennes associées à chacun des îlots se déplacent dans un premier temps vers le rouge puis vers le bleu lorsque la densité de paires augmente jusqu'à 10^4 cm^{-1} , i.e. un exciton par micron, puis dépasse cette valeur. Ce déplacement s'accompagne d'un léger élargissement des deux raies. Des raies associées à la luminescence de biexcitons apparaissent à basse énergie (voir Sec. 5.3.1). Lorsqu'à une puissance intermédiaire la zone excitée est éclairée simultanément, avec la même résolution spatiale, par un faisceau laser HeNe, les raies se déplacent vers le bleu et s'affinent, le spectre de luminescence (Fig. 3.29c, cercles blancs) devenant similaire à celui obtenu à basse puissance (Fig. 3.29a).

Nous devons préciser que cet éclairage supplémentaire, d'une puissance égale à environ 2% de la puissance d'excitation par le colorant, ne contribue que très faiblement à la création de paires dans le fil. L'énergie de cette excitation ($1,97\text{ eV}$) est inférieure au gap de la barrière ($2,14\text{ eV}$), mais supérieure à l'énergie du puits quantique vertical qui entoure le fil quantique (voir Sec. 1.2). Les spectres sous cet éclairage seul montre que la luminescence est dans ce cas principalement émise depuis le puits quantique vertical.

L'éclairage par le faisceau HeNe n'a pas d'effet sur le spectre mesuré à basse puissance d'excitation. De plus, lorsque la puissance d'excitation augmente, il induit un déplacement vers le bleu et compense le déplacement vers le rouge de la raie par rapport à sa position à basse énergie, qui varie de 0 à 2 meV suivant les îlots étudiés. Le déplacement de la raie de μ -PL et celui induit par le faisceau HeNe ont donc une origine commune.

L'utilisation d'une excitation à haute énergie, dans les barrières ou ici dans le puits quantique vertical, a souvent été utilisée dans divers buts. Dans les puits quantique, elle permet de créer des porteurs, électrons et trous, qui évoluent indépendamment dans la barrière, où la densité de défauts et d'impuretés est beaucoup plus importante que dans le GaAs. Si la plupart de ces porteurs se recombinent radiativement, éventuellement après avoir relaxé vers le puits, certains d'entre eux sont piégés par les défauts et les impuretés, et créent une distribution de charges autour du puits. Ce procédé a été utilisé dans de nombreuses études pour introduire de manière contrôlée des porteurs libres dans le puits [76], pour exalter la luminescence d'excitons liés à certaines impuretés [77] ou à des défauts d'interface [78], et enfin pour écranter des champs électriques externes [79] ou internes [80].

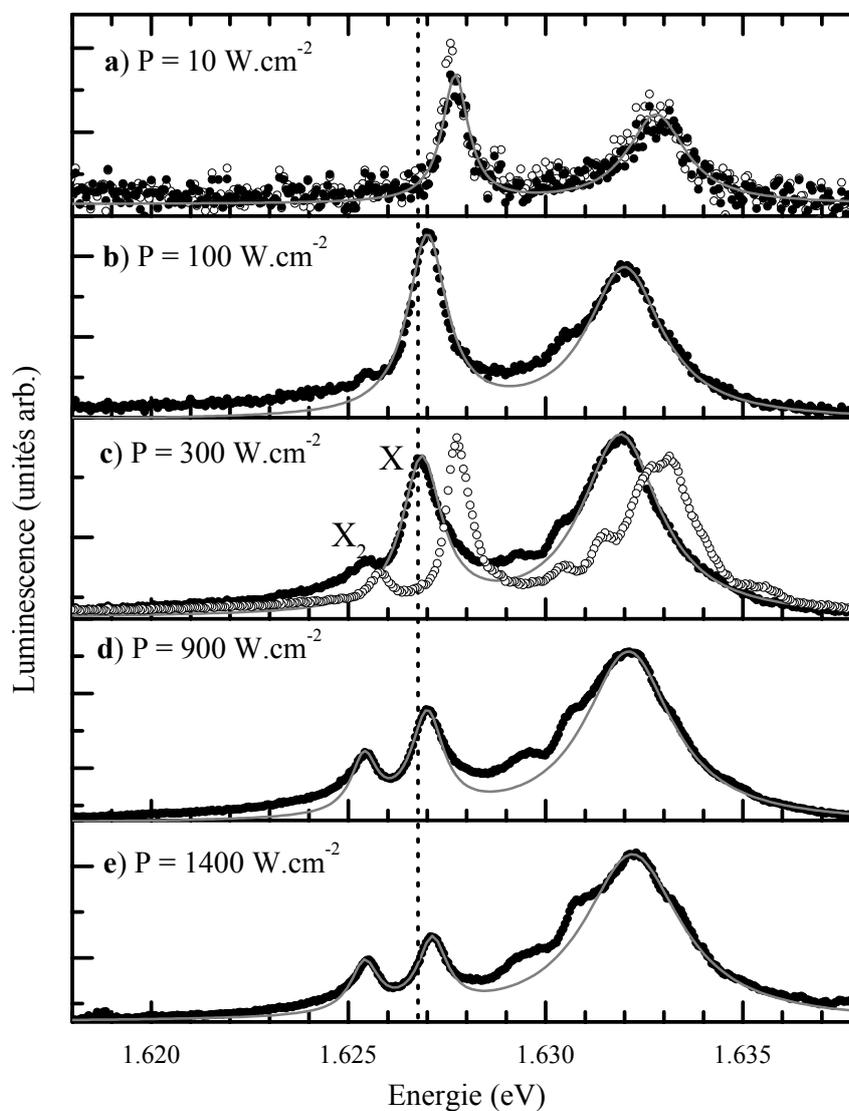


FIG. 3.29 – Spectre de μ -PL de deux îlots, dans un fil quantique en régime 1D (NM79), en fonction de la puissance d'excitation (à 1,77 eV dans la sous-bande $e4h4$) par un laser à colorant (cercles noirs), et leur interpolation par des pics lorentziens (courbes grises); spectre obtenu en présence d'une excitation supplémentaire de $0,5 \text{ W.cm}^{-2}$ à 1,97 eV par un laser He-Ne (cercles blancs).

3.4 Signatures du désordre résiduel

Dans notre cas, cette excitation additionnelle ne donne pas lieu à l'apparition d'une nouvelle raie, comme dans le cas d'excitons liés à des impuretés ou des défauts, mais à un déplacement continu de la raie de μ -PL, caractéristique d'un processus d'écrantage. On peut de plus remarquer que le déplacement de la raie du biexciton, qui est un complexe quadrupolaire moins sensible à la présence d'un champ statique, est deux fois moins important que celui de la raie d'exciton.

La nature des champs électromagnétiques écrantés est cependant difficile à interpréter. L'écrantage du champ piézoélectrique par des porteurs libres a été démontrée dans les boîtes quantiques auto-organisées InAs réalisées sur des substrats GaAs de grand indice (N11), les porteurs étant créés par un laser à Argon dans la couche de mouillage (wetting layer) d'InAs, sur laquelle se forment les boîtes quantiques [81]. Dans ces travaux, le champ électrique interne abaisse par effet Stark l'énergie de la transition excitonique d'une quantité proportionnelle au carré dudit champ. Les porteurs libres écrantent ce champ et induisent un déplacement vers le bleu de la transition, comme nous l'avons observé. Cependant, l'effet de l'HeNe est nul pour de faibles densités de porteurs dans notre cas, ce qui montre que les porteurs libres n'écrantent pas l'éventuel champ électrique interne statique, mais plutôt les interactions exciton-exciton qui ont lieu à plus forte densité. Nous reviendrons sur ce point au paragraphe 5.3.1.

3.4.5 A propos de la localisation d'Anderson dans les fils quantiques en V

“Dans les systèmes unidimensionnels, tous les états électroniques sont localisés”. Telle est la conclusion des études théoriques menées par Anderson et Thouless [50, 51]. Cependant, le mécanisme de localisation en jeu est très différent de celui que nous avons envisagé dans cette section.

Les états propres de haute énergie semblent dispersifs et possèdent un vecteur d'onde bien défini d'après nos simulations. En fait, un électron injecté à haute énergie avec une impulsion bien définie ressent le potentiel aléatoire sous-jacent, et est atténué exponentiellement dans le fil quantique avec une longueur caractéristique proportionnelle à son énergie [82]. Dans le formalisme d'Anderson, l'électron est diffusé par les défauts du potentiel aléatoire, et les diffusions multiples interfèrent de manière destructive pour donner lieu à la localisation. Cet effet a été étudié théoriquement dans les fils quantiques GaAs par D. Liu et al. [83], qui a montré que la longueur de localisation par ce mécanisme est de plusieurs microns, dépend de la qualité des échantillons et est en particulier supérieure au libre parcours moyen des électrons dans le fil. Ceci explique que même dans des expériences de transport ce phénomène n'est pas observable et est dominé par les autres formes de désordre.

Les états de basse énergie sondés dans les expériences d'optique ressentent de manière différente le potentiel aléatoire. Nous avons vu (Fig. 3.25) que pour un potentiel d'amplitude $0,8 \text{ meV}$, le spectre de μ -PL présente un élargissement inhomogène d'environ $0,3 \text{ meV}$. Celui-ci pourrait donc éventuellement être masqué par l'élargissement homogène de 1 meV des transitions. Dans ce cas, les fonctions d'onde des excitons sont délocalisées sur plusieurs centaines de nanomètres, et sur plusieurs minima du potentiel, et la densité d'état est peu modifiée. Ceci peut être interprété comme une localisation d'Anderson, c'est-à-dire une localisation faible des excitons, par opposition à la localisation forte des excitons dans des boîtes quantiques indépendantes dans les fils en régime 0D. Cependant, nous n'avons aucune indication de l'existence de ce phénomène dans nos résultats

expérimentaux.

3.4.6 Conclusion sur le désordre résiduel

La largeur des raies de μ -PL, de 1 meV , est une signature de la présence d'un désordre résiduel dans la structure. La forme lorentzienne de cette raie et l'absence de pics fins permettent d'exclure l'hypothèse d'un désordre purement statique, dû au champ piézo-électrique ou à la rugosité à courte échelle des interfaces en particulier, même si le champ piézo-électrique vu par l'exciton est d'après nos calculs non négligeable, comme l'ont montré les expériences réalisées sur un échantillon possédant des interfaces (311) extrêmement bien contrôlées [70]. Le rôle des impuretés dans la structure semble réduit, comme le confirme la faible recombinaison non radiative dans les échantillons de la nouvelle génération [61], même si certaines structures rencontrées très rarement dans les cartes d'excitation montrent qu'il peut exister localement des champs importants qui leur sont peut-être associés. L'élargissement est donc vraisemblablement de nature homogène, et l'hypothèse la plus plausible est la présence de paires photocréées séparées par le champ piézo-électrique et stockées pendant plusieurs dizaines de nanosecondes dans des états non radiatifs, qui font perdre sa phase à l'exciton par des collisions Coulombiennes.

Nous devons donc constater que la réduction du désordre d'hétéro-interfaces, qui est la cause principale de la localisation et de l'élargissement inhomogène des transitions, rend l'exciton beaucoup plus sensible aux autres formes de désordre, que nous avons qualifiées de résiduelles. D'une part, un désordre statique générant un potentiel aléatoire de faible amplitude sera en effet ressenti par des excitons libres qui verront leur fonction d'onde mélangée dans l'espace des k_x , alors que dans les fils en régime 0D les états propres sont ceux d'une boîte quantique, et ont un spectre d'énergie discret qui est très peu modifié par l'existence du potentiel aléatoire. Ceci est résumé sur le schéma 3.30.a. D'autre part, en présence de champs électriques internes parallèles à la direction libre du fil, par exemple dûs à l'effet piézo-électrique, les électrons et les trous peuvent être séparés spatialement par le champ dans les fils en régime 1D, dans des états de paires non radiatifs, alors que l'interaction Coulombienne est assez forte pour former un exciton lié et radiatif dans les fils en régime 0D, comme résumé sur le schéma 3.30.b.

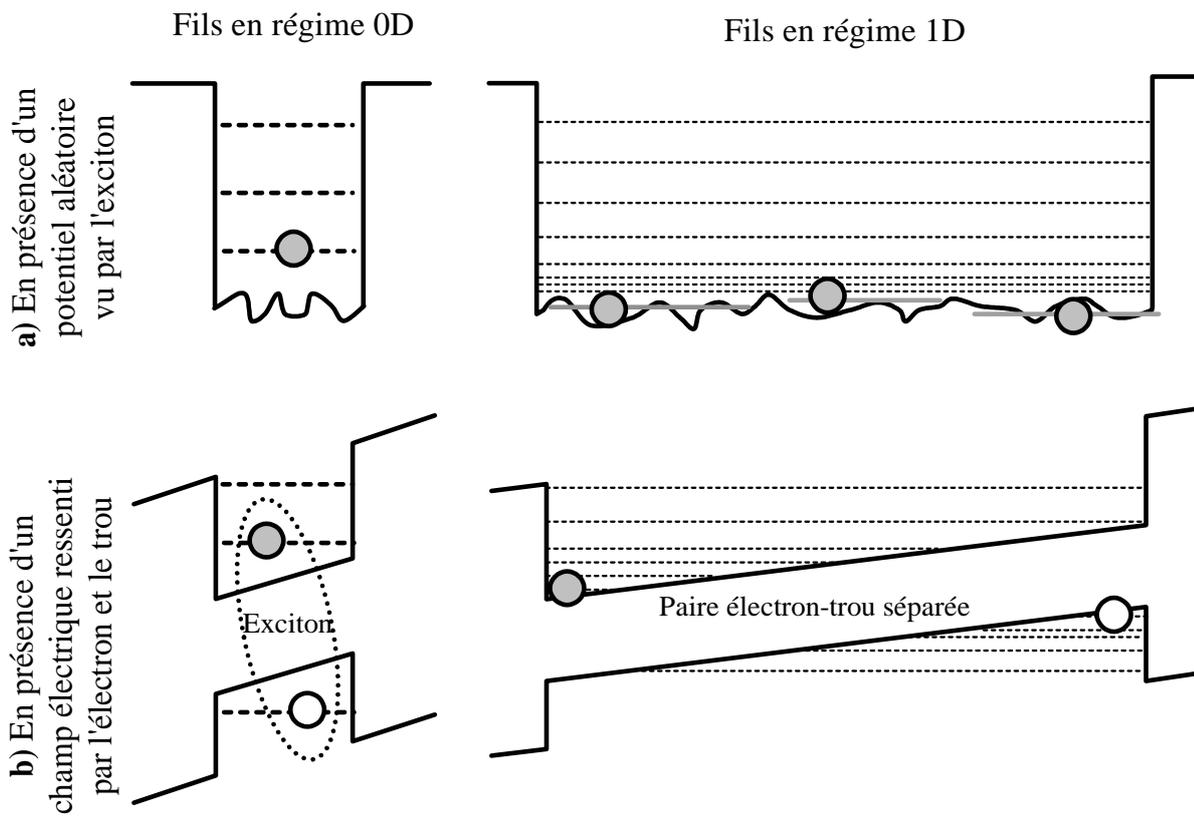


FIG. 3.30 – Comparaison des effets sur l'exciton (a) d'un potentiel aléatoire résiduel, et (b) d'un champ électrique interne dans les fils quantiques en régime 0D et 1D.

3.5 Conclusion

L'imagerie par balayage d'excitation permet de cartographier localement le désordre et les états localisés. Elle a mis en évidence la réduction de la rugosité à longue échelle des hétéro-interfaces, c'est-à-dire des fluctuations abruptes d'une monocouche, entre les fils quantiques de l'ancienne et de la nouvelle génération, prouvant ainsi l'efficacité des améliorations apportées par X.L. Wang aux procédés d'élaboration. L'utilisation d'une attaque chimique du substrat gravé, pour aplanner les facettes du V, a permis d'obtenir des zones longues de 5 à 10 μm dépourvues de marches d'une monocouche sur la facette (100). Mais les marches présentes sur les facettes latérales (311) et (111) du V sont aussi liées à l'alignement angulaire de la gravure du V sur la direction cristallographique $[01\bar{1}]$, dont la réduction à des angles inférieurs à $0,001^\circ$ a permis d'obtenir des terrasses sur ces interfaces longues de 0,5 μm en moyenne, et jusqu'à 3 μm localement, dans lesquelles les états excitoniques forment un quasi-continuum unidimensionnel.

Néanmoins, dans ces fils en régime 1D, le caractère délocalisé des excitons les rend beaucoup plus sensibles aux causes de désordre résiduel. En particulier, l'élargissement homogène de 1 meV des transitions observées en μ -PL est attribué aux collisions Coulombiennes avec des charges résiduelles photo-crées dans le fil, et vraisemblablement séparées après leur création par des champs piézo-électriques.

Chapitre 4

Un exciton seul dans un fil quantique

Cette partie est consacrée à l'étude des excitons dans le régime dit linéaire, où la densité de porteurs dans le fil quantique est suffisamment faible pour que les paires électron-trou soient très éloignées et puissent être distinguées, et que les interactions entre paires puissent être négligées. Cela est d'autant plus "simple" dans des expériences de μ -PL, au cours desquelles à faible puissance d'excitation au plus une paire est présente à un instant donnée dans la zone de $1 \mu m$ excitée.

Nous nous sommes principalement intéressés à l'étude de deux propriétés des excitons en régime linéaire: la structure fine des excitons, i.e. leur état de spin; et l'interaction exciton-phonon, et ses manifestations dans la dépendance en température des spectres de μ -PL. Ces deux sections s'appuient sur des modèles théoriques développés en collaboration avec Robson Ferreira, du Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (Ecole Normale Supérieure, Paris). La troisième section de ce chapitre aborde la question de la description thermodynamique des excitons en régime linéaire, et plus particulièrement *les* équilibres thermiques —au pluriel— et les conditions de leur établissement. Dans chacune de ces études, nous nous attacherons à comparer les propriétés des fils quantiques dans les deux régimes de localisation 0D et 1D.

Dans la première section, nous présenterons la structure de spin théorique des excitons dans un fil quantique, déterminée par l'interaction Coulombienne d'échange à longue portée. Elle se traduit dans les spectres de luminescence par une levée de dégénérescence du doublet radiatif de l'exciton lourd et par des règles de sélection en lumière polarisée que nous avons mises en évidence en μ -PL dans les fils quantiques en régime 0D. L'interprétation de ces résultats nécessite de tenir compte de la localisation des excitons dans le fil. Nous tenterons d'expliquer pourquoi cette structure fine semble très "fragile", et n'est en particulier pas observée dans les fils quantiques en régime 1D.

La deuxième section présente le rôle de l'interaction des excitons avec les phonons dans les fils quantiques. Elle se traduit dans les spectres de μ -PL par une disparition rapide des pics fins lorsque la température atteint $30 K$. Ces pics fins sont en effet les transitions zéro-phonon de la luminescence excitonique. Ils sont atténués lorsque la température augmente au profit des transitions assistées par phonons acoustiques qui donnent lieu à une raie beaucoup plus large. Cette interprétation est appuyée par la modélisation en termes de polarons en couplage faible dans un fil quantique, dont nous présenterons les résultats et les limites dans les deux régimes de localisation. Nous montrerons en particulier qu'un régime de couplage fort faisant intervenir des processus multi-phonons s'établit à partir de $30 K$.

La troisième section regroupe plusieurs résultats expérimentaux reflétant chacun de

manière différente la statistique thermodynamique des porteurs. En particulier les mesures de temps de vie radiatif mettent en évidence sa dépendance en \sqrt{T} dans les fils quantiques en régime 1D. Cette loi est spécifique des systèmes uni-dimensionnels et est reliée à l'existence d'un équilibre thermique "local" des excitons de la sous-bande fondamentale que nous définirons. Nous montrerons que la dynamique temporelle de la raie de macro-luminescence et les spectres de PLE reflètent quant à eux l'équilibre thermique "global" des excitons dans le fil quantique.

4.1 Interaction d'échange et structure fine

4.1.1 Introduction

La structure de spin de l'exciton, que nous n'avons pas considérée dans le premier chapitre, est relativement complexe et souvent négligée. Nous avons vu que le mélange de bandes de valence (Sec. 1.3.2) conduit dans les hétéro-structures confinées, puits et fil quantiques, à une levée de dégénérescence des états de trous lourds et légers, de moments cinétiques respectifs $J_z^h = \pm 3/2$ et $\pm 1/2$, mais à ce stade les deux états de trous lourds restent dégénérés en énergie, comme ceux de trous légers et ceux des électrons $J_z^e = \pm 1/2$. Nous avons pris ici pour direction de quantification l'axe de croissance z . Le spin σ de l'exciton, défini comme la somme des moments cinétiques du trou et de l'électron, prend donc pour valeur $\pm 2, \pm 1$ pour l'exciton lourd et $\pm 1, 0$ pour l'exciton léger, qui sont chacun 4 fois dégénérés. Etant donné que la première sous-bande de trous h1 du fil quantique est de nature lourde à 96%, et séparée de 18 meV de la deuxième sous-bande h2, nous ne nous intéresserons dans cette section qu'aux quatre états de l'exciton lourd.

Cette dégénérescence de spin est levée par l'interaction Coulombienne dite d'échange, car les deux états de paires électron-trou $((\mathbf{k}, \uparrow_e), (-\mathbf{k}, \downarrow_h))$ et $((-\mathbf{k}, \downarrow_e), (\mathbf{k}, \uparrow_h))$, entre lesquels impulsions et spins des électrons et trous ont été échangés, sont dégénérés en énergie et couplés par l'interaction Coulombienne (Fig. 4.1). Cette levée de dégénérescence est de plus augmentée lorsque le degré de symétrie du système est réduit (Fig. 4.2), comme l'a montré l'étude de David Larousserie dans les puits et les fils quantiques [64, 84], poursuivant les travaux de M.Z. Maialle dans les puits [85]. Notre étude, menée en collaboration avec Robson Ferreira, s'inscrit dans la continuation du travail de thèse de D. Larousserie. En particulier, les états en $K = 0$ du doublet radiatif $\sigma = \pm 1$ de l'exciton lourd, qui sont couplés à la lumière, sont non dégénérés lorsque le système ne présente plus de symétrie uniaxiale (rotation autour de l'axe de quantification z) [86], ce qui est le cas dans les fils quantiques et les boîtes quantiques anisotropes.

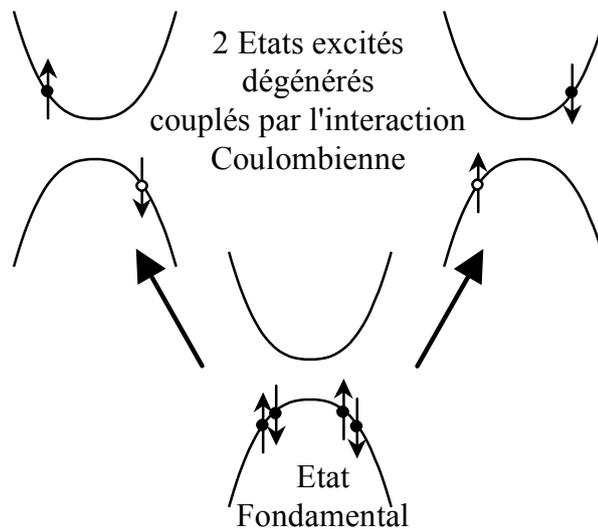


FIG. 4.1 – Schéma de principe de l'interaction d'échange entre paires électron-trou.

Dans les fils quantiques, les états propres du doublet radiatif de l'exciton lourd sont donc a priori accessibles en luminescence, d'autant plus que la polarisation de la lumière émise reflète la structure de spin de l'exciton. L'interaction avec la lumière est en effet

4.1 Interaction d'échange et structure fine

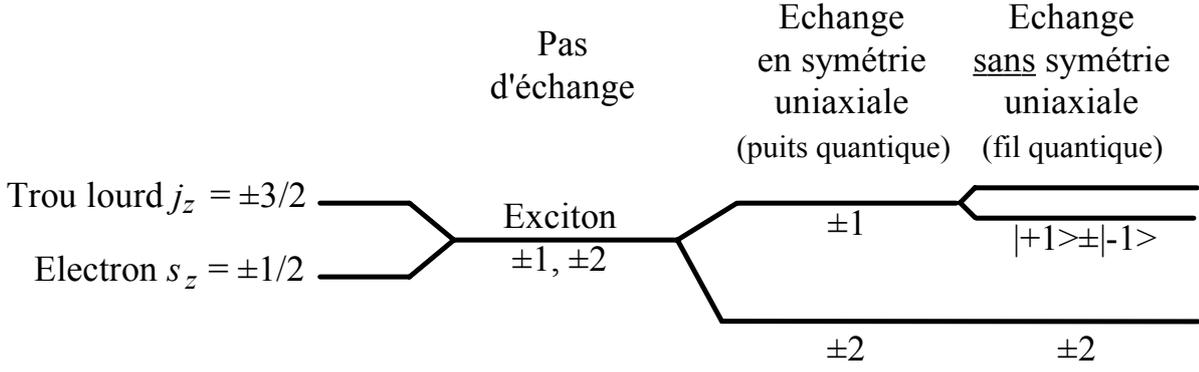


FIG. 4.2 – Levée de dégénérescence de l'exciton lourd par l'interaction d'échange.

gouvernée par la règle de sélection de conservation du moment total, soit $\sigma_{photon} = \sigma_{exciton}$. Les faibles levées de dégénérescence mises en jeu, inférieures à 1 meV , sont en général masquées par l'élargissement inhomogène des transitions. Elles sont par contre observables en μ -PL, comme l'ont montré les études réalisées dans les puits quantiques [87] et dans les boîtes quantiques [88, 89].

Après avoir présenté la structure fine de l'exciton dans un fil quantique parfait, nous présenterons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus dans les fils quantiques en régime 0D, puis introduirons le rôle de la localisation sur la structure fine pour analyser ces résultats. Nous présenterons enfin les résultats obtenus sur des fils en régime 1D, et tenterons d'expliquer pourquoi nous n'y avons pas observé la structure fine de l'exciton.

4.1.2 Interaction d'échange dans un fil quantique idéal

Le calcul de l'interaction d'échange [85] fait ressortir deux termes, l'un d'interaction à courte portée (H_{SR}) et l'autre d'interaction à longue portée (H_{LR}), parfois aussi artificiellement qualifiés d'analytique et non analytique respectivement. Aucun de ces termes n'agit sur le doublet non radiatif $\sigma = \pm 2$ de l'exciton lourd. Ils couplent par contre les excitons du doublet radiatif $\sigma = \pm 1$ et lèvent la dégénérescence entre les deux doublets. Les deux termes présentent une règle de sélection δ_{K_x, K'_x} sur l'impulsion du centre de masse des états initial et final de l'exciton et peuvent donc être diagonalisés indépendamment pour chaque valeur K_x de l'impulsion. Dans la base ($|K_x, \sigma = -1\rangle, |K_x, \sigma = +1\rangle$), les deux termes de l'interaction d'échange s'écrivent respectivement [64, 84] :

$$H_{SR} = \frac{3}{4} \Delta E_{SR} \left| \frac{\varphi_{1D}(0)}{\varphi_{3D}(0)} \right|^2 \begin{pmatrix} I_{SR} & 0 \\ 0 & I_{SR} \end{pmatrix}$$

et

$$H_{LR} = \frac{3}{32\pi^2} \Delta E_{LT} \left| \frac{\varphi_{1D}(0)}{\varphi_{3D}(0)} \right|^2 \begin{pmatrix} I_{LR,1}(K_x) + I_{LR,2}(K_x) & I_{LR,1}(K_x) - I_{LR,2}(K_x) \\ I_{LR,1}(K_x) - I_{LR,2}(K_x) & I_{LR,1}(K_x) + I_{LR,2}(K_x) \end{pmatrix}.$$

Les constantes du couplage d'échange dans le GaAs massif ont pour valeurs $\Delta E_{SR} = 20 \text{ } \mu\text{eV}$ et $\Delta E_{LT} = 80 \text{ } \mu\text{eV}$ [90].

φ_{1D} et φ_{3D} désignent les fonctions d'ondes du mouvement relatif de l'exciton dans le fil et dans le matériau massif. Cette étude étant antérieure à celle de l'exciton présentée dans la section 1.4, nous avons utilisé pour l'exciton une fonction d'onde gaussienne :

$$\varphi_{1D,var}(x) = e^{-x^2/(2a_{var}^2)} / (\pi^{1/4} a_{var}^{1/2}),$$

avec $a_{var} = 85 \text{ \AA}$, obtenue de manière variationnelle. La quantité $\varphi_{3D}(0)$ vaut quant à elle $1/(\pi a_{X,3D}^3)$ avec $a_{X,3D} = 145 \text{ \AA}$. Nous avons vérifié que l'utilisation de la fonction d'onde calculée analytiquement ne modifie que de 5% la valeur du rapport en jeu dans les deux hamiltoniens, et n'influe donc pas sur les résultats qui vont être présentés.

Les intégrales en jeu s'écrivent :

$$\begin{aligned} I_{SR} &= \iint dy dz |f_e(y,z)|^2 |f_h(y,z)|^2 \\ I_{LR,1}(K_x) &= \iint dk_y dk_z \left| \langle f_e(y,z) | e^{i(k_y y + k_z z)} | f_h(y,z) \rangle \right|^2 \frac{k_y^2}{K_x^2 + k_y^2 + k_z^2} \\ I_{LR,2}(K_x) &= \iint dk_y dk_z \left| \langle f_e(y,z) | e^{i(k_y y + k_z z)} | f_h(y,z) \rangle \right|^2 \frac{K_x^2}{K_x^2 + k_y^2 + k_z^2}, \end{aligned}$$

où f_e et f_h désignent les fonctions d'onde latérales des électrons et des trous confinés dans le fil, modélisé par un fil rectangulaire à barrières infinies (Sec. 1.3.2). Nous utilisons les mêmes conventions qu'au premier chapitre (Fig. 1.3).

L'interaction d'échange à courte portée est indépendante de K_x , et présente donc un terme $\delta(X)$ dans l'espace réel pour le mouvement du centre de masse, justifiant son appellation. Elle induit un déplacement de l'énergie du doublet radiatif par rapport au doublet non radiatif, qui vaut dans nos fils :

$$\begin{aligned} \Delta E_{1D,SR} &= \frac{3}{4} \Delta E_{SR} \left| \frac{\varphi_{1D}(0)}{\varphi_{3D}(0)} \right|^2 I_{SR} \\ &\approx 180 \mu eV. \end{aligned}$$

Pour chaque impulsion K_x , l'hamiltonien d'interaction d'échange à longue portée est de la forme $\begin{pmatrix} E & W \\ W & E \end{pmatrix}$, dont les états propres sont $(|1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$ et $(|1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$, associés aux valeurs propres $E - W$ et $E + W$. En particulier, en $K_x = 0$, l'intégrale $I_{LR,2}$ est nulle et les deux états propres ont pour valeur propres respectives 0 et

$$\begin{aligned} \Delta E_{1D,LR}^0 &= \frac{3}{32\pi^2} \Delta E_{LT} \left| \frac{\varphi_{1D}(0)}{\varphi_{3D}(0)} \right|^2 \times 2I_{LR,1}(K_x=0) \\ &\approx 210 \mu eV. \end{aligned}$$

D'autre part, le doublet radiatif est de nouveau dégénéré en énergie pour la valeur particulière de l'impulsion telle que les deux intégrales $I_{LR,1}$ et $I_{LR,2}$ soient égales, c'est-à-dire $K_x \approx k_y \approx \pi/L_y$, où L_y désigne la dimension latérale du fil rectangulaire.

Les énergies des deux états radiatifs, ainsi que celle du doublet non radiatif, sont représentées sur la figure 4.3. A la différence des puits quantiques, la dégénérescence du doublet radiatif en $K_x = 0$, c'est-à-dire pour les excitons qui participent à la luminescence, est donc levée. Les nouveaux états propres ne sont plus couplés avec la lumière polarisée circulairement ($\sigma_{photon} = \pm 1$), comme c'est le cas dans les puits. L'état $(|1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$ est couplé aux photons polarisés parallèlement au fil (π_x) et l'état $(|1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$ avec ceux polarisés perpendiculairement au fil (π_y). Les contributions de l'interaction d'échange à l'énergie de ces deux états seront par conséquent notées $E_{1D,ech}^x(K_x)$ et $E_{1D,ech}^y(K_x)$ par la suite.

Remarquons que les forces d'oscillateur des deux états radiatifs sont égales si l'on ne tient compte que de l'interaction d'échange. C'est en effet le mélange de bandes

4.1 Interaction d'échange et structure fine

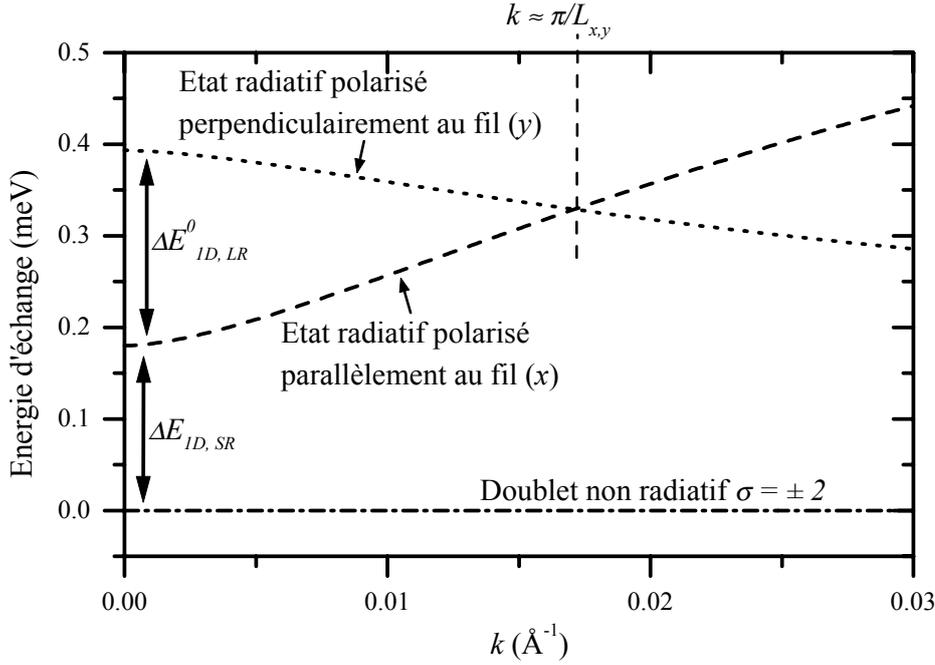


FIG. 4.3 – Dispersion des contributions de l'interaction d'échange à l'énergie des excitons lourds, en fonction de leur impulsion K_x .

(Sec. 1.5.1) qui détermine les forces d'oscillateur des deux états, alors que leurs énergies sont imposées par l'interaction Coulombienne d'échange, les deux effets ayant donc des fondements complètement indépendants !

Les deux énergies caractéristiques de l'interaction d'échange, à courte et à longue portées, s'accroissent lorsque le confinement dans le fil augmente. Elles sont en effet toutes deux approximativement proportionnelles d'une part à l'inverse du rayon de Bohr de l'exciton, dont nous avons vu qu'il diminue lorsque la taille du fil diminue, et d'autre part à $1/(L_y L_z)$ pour $\Delta E_{1D,SR}$ et $1/L_y^2 + 1/L_z^2$ pour $\Delta E_{1D,LR}^0$, en raison des intégrales $I_{SR,LR1,LR2}$ mises en jeu.

Nous avons vérifié a posteriori que ces dispersions, calculées pour un fil rectangulaire à barrières infinies et un modèle variationnel de l'exciton, ne sont modifiées que d'environ 10% lorsque l'on utilise les fonctions d'onde numériques pour un fil en V et la fonction d'onde analytique de l'exciton. En particulier, les énergies en jeu $\Delta E_{1D,SR}$ et $\Delta E_{1D,LR}^0$ sont diminuées d'environ 5%, et l'intersection entre les dispersions des deux états radiatifs se produit toujours au voisinage de $K_x = \pi/L_y$.

4.1.3 Structure fine des excitons dans les fils quantiques en régime 0D

Résultats expérimentaux

Nous avons étudié la dépendance en polarisation des spectres de μ -PL dans un échantillon en régime 0D (M304) [91]. Les spectres ont été acquis avec le spectromètre HRS2 et la caméra CCD refroidie à l'azote liquide (voir Sec. 2.2), l'ensemble ayant une très bonne résolution spectrale ($40 \mu eV$). L'excitation a été réalisée par un laser Ti-Sa, dans la sous-bande e3h3 du fil à $1,73 eV$, à une puissance d'excitation de

30 W.cm^{-2} suffisamment faible pour garantir la présence d'un exciton au plus dans la zone excitée (voir Sec. 5.2.1). La sélection de la luminescence polarisée dans chacune des polarisations linéaires, parallèle (π_x) et perpendiculaire (π_y) à l'axe du fil, est réalisée à l'aide d'un compensateur de Babinet-Soleil et un cube polariseur, de telle sorte que la zone d'excitation ne soit pas déplacée sur l'échantillon par la rotation des polariseurs (voir Sec. 2.1.2).

Des spectres typiques de μ -PL dans les polarisations linéaires sont présentés sur la figure 4.4. Les pics sont associés à la luminescence des excitons localisés dans les boîtes quantiques le long du fil. Certains pics sont à plus basse énergie en polarisation π_x qu'en polarisation π_y , mettant en évidence des levées de dégénérescence de l'ordre de $100 \mu\text{eV}$ des énergies d'excitons de spins différents. Conformément à la théorie, ce sont les états $(|1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$, émettant des photons polarisés parallèlement au fil, qui ont l'énergie la plus basse. Les levées de dégénérescence mesurées, que nous noterons $\Delta E_{y-x} = E_y - E_x$ par la suite, dépendent du pic considéré, et sont toujours inférieures à la valeur théorique d'environ $200 \mu\text{eV}$ prédite par notre modèle. Certains pics ne présentent aucune levée de dégénérescence, et sont en général situés à basse énergie dans la raie alors que les différences d'énergie les plus importantes, jusqu'à $170 \mu\text{eV}$, sont obtenues sur les pics à plus haute énergie.

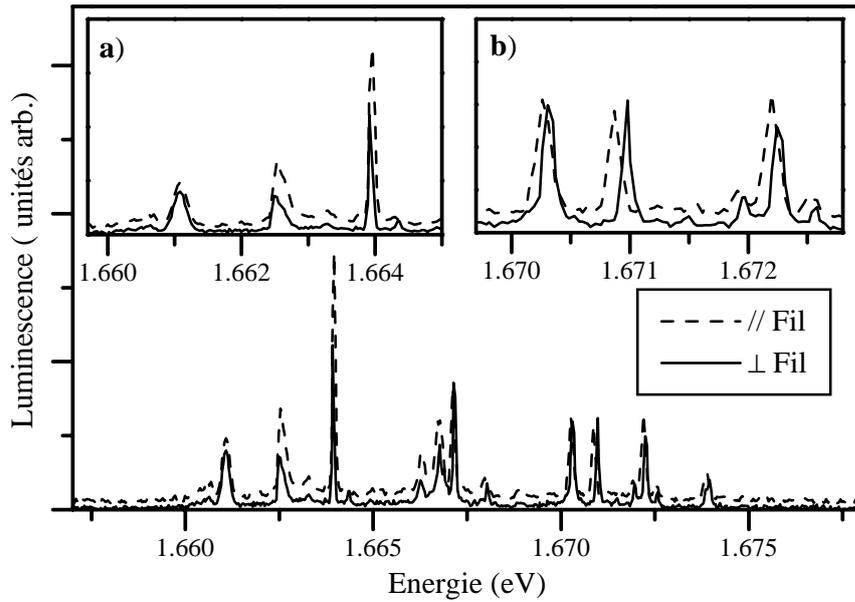


FIG. 4.4 – Spectres de μ -PL obtenus en un même endroit d'un fil quantique en régime 0D (M304), dans les polarisations perpendiculaire (π_y , traits pleins) et parallèle (π_x , traits pointillés) au fil. Des agrandissements des pics à basse et haute énergie sont présentés en encarts.

Nous avons rassemblé les résultats obtenus sur une cinquantaine de pics, correspondant à 7 fils quantiques différents du même échantillon, pour obtenir des informations statistiques. La première d'entre elles est la distribution des levées de dégénérescence, présentée sur la figure 4.5. Elle est assez large, et présente une sorte de "singularité" pour la valeur 0. Deux faits sont donc à expliquer : les écarts énergétiques observés dépendent de l'état d'exciton localisé considéré, et de nombreux états restent dégénérés en énergie, dans la limite de notre résolution spectrale de $40 \mu\text{eV}$. Nous allons tenter de répondre à

4.1 Interaction d'échange et structure fine

ces questions au paragraphe suivant, en étudiant l'influence de la localisation sur l'interaction d'échange de l'exciton.

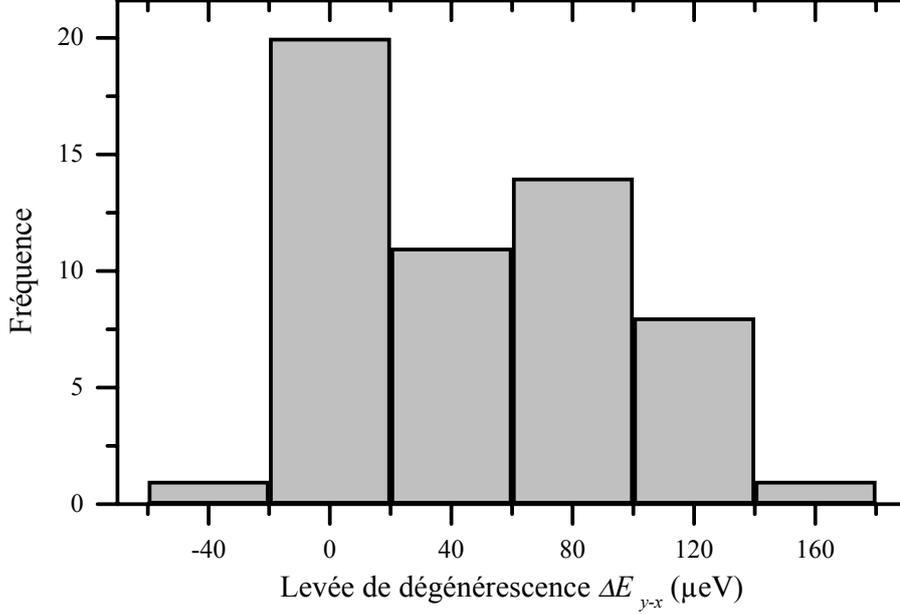


FIG. 4.5 – Distribution statistique des levées de dégénérescences ΔE_{y-x} mesurées entre les deux états radiatifs de l'exciton.

L'interaction d'échange et les excitons localisés

Les états d'excitons localisés dans les fils en régime 0D n'ont pas un vecteur d'onde K_x bien défini. Ils ont une fonction d'onde $\psi_{loc}(K_x)$ dans l'espace réciproque, déterminée par la configuration locale du potentiel aléatoire de localisation. L'interaction d'échange étant d'amplitude petite devant l'interaction Coulombienne directe et le désordre de localisation, elle peut être traitée en perturbation au premier ordre sur les états localisés de l'exciton calculés à la section 3.3. Les principales caractéristiques de la structure fine de l'exciton lourd sont conservées : les états non radiatifs restent dégénérés ; la contribution à courte portée de l'interaction d'échange reste la même que dans le cas d'un fil idéal car elle est indépendante de K_x et donc de la fonction d'onde $\psi_{loc}(K_x)$ de l'état localisé ; les états propres du doublet radiatif sont toujours $(|1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$ et $(|1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$, et interagissent avec les photons polarisés parallèlement et perpendiculairement au fil respectivement. Mais la contribution de l'interaction d'échange à l'énergie de chacun des deux états radiatifs est donnée pour un état localisé par la moyenne sur la fonction d'onde localisée $\psi_{loc}(K_x)$ des quantités $E_{1D,ech}^x(K_x)$ et $E_{1D,ech}^y(K_x)$ obtenues dans un fil idéal :

$$\begin{aligned}
 E_{loc,ech}^x &= \langle \psi_{loc}(K_x) | E_{1D,ech}^x(K_x) | \psi_{loc}(K_x) \rangle \\
 &= \int dK_x |\psi_{loc}(K_x)|^2 E_{1D,ech}^x(K_x) \\
 E_{loc,ech}^y &= \langle \psi_{loc}(K_x) | E_{1D,ech}^y(K_x) | \psi_{loc}(K_x) \rangle \\
 &= \int dK_x |\psi_{loc}(K_x)|^2 E_{1D,ech}^y(K_x)
 \end{aligned}$$

La différence d'énergie entre les deux états, $\Delta E_{loc} = E_{loc,ech}^y - E_{loc,ech}^x$, n'est donc pas égale à celle obtenue dans un fil idéal en $K_x = 0$, mais plutôt à sa valeur en $K_x \approx \pi/l_x$ où l_x est

l'extension spatiale selon l'axe du fil de l'état localisé. Elle est proportionnelle à l'anisotropie spatiale des états et se comporte en première approximation comme $\Delta E_{1D}^0(1 - l_y/l_x)$, où l_y désigne l'extension latérale des états confinés. Elle est donc inférieure à sa valeur dans le fil idéal, qui peut être vu comme la limite $l_x/l_y \rightarrow \infty$ de la boîte quantique.

Nous retrouvons ici, par une approche très différente, les résultats théoriques obtenus dans les boîtes quantiques, pour lesquelles les états propres du doublet radiatif sont polarisés selon les deux axes principaux de la boîte quantique, et la levée de dégénérescence est proportionnelle à l'anisotropie de la fonction d'onde des porteurs confinés, et donc à celle de la boîte quantique elle-même [86].

Nous avons calculé les états propres localisés, puis la différence d'énergie associée entre les deux états radiatifs, dans un premier temps dans une boîte quantique de profondeur 9 meV caractéristique des variations d'une monocouche de l'épaisseur du fil. Les résultats sont présentés sur la figure 4.6. ΔE_{loc} ne varie pas de manière monotone avec L_x , car l'extension l_x d'un état localisé dans une petite boîte est supérieure à L_x , sa fonction d'onde pénétrant fortement dans les barrières de la boîte. Nous constatons que pour cette raison la différence d'énergie vaut au minimum 70% de ΔE_{1D}^0 , soit $140 \mu\text{eV}$, pour l'état fondamental. La levée de dégénérescence des états excités de la boîte est plus faible, mais toujours non nulle, et ces états ne sont a priori pas observés en $\mu\text{-PL}$ car la relaxation vers l'état fondamental est efficace (voir Sec. 4.2).

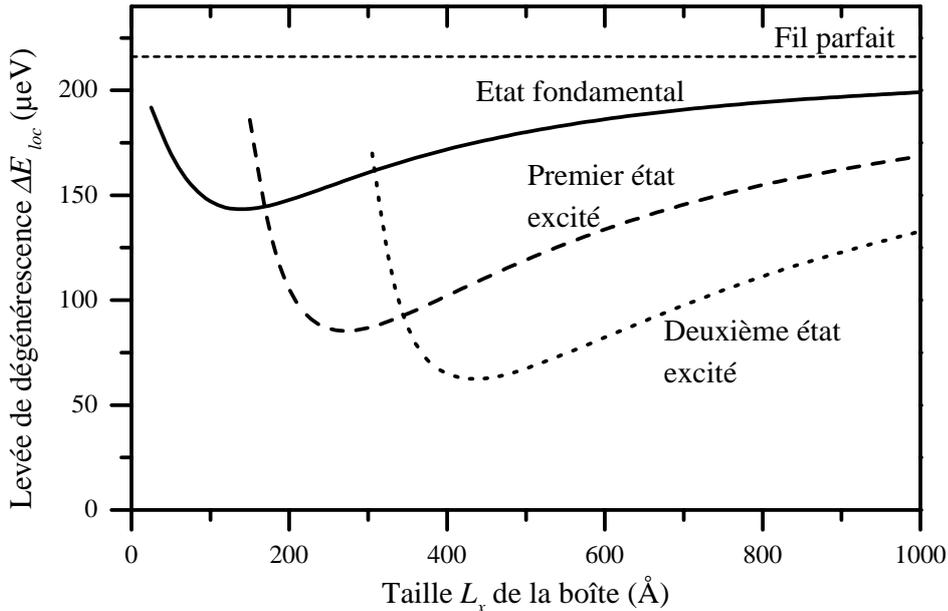


FIG. 4.6 – Différence d'énergie ΔE_{loc} entre les deux états radiatifs d'un exciton localisé dans une boîte carrée de profondeur 9 meV selon l'axe x du fil. Les traits pleins, tiretés et pointillés représentent respectivement l'état fondamental et les deux premiers états excités de la boîte quantique. L'asymptote ΔE_{1D}^0 pour $L_x \rightarrow \infty$ est aussi indiquée.

La localisation des excitons permet donc d'expliquer qualitativement que les levées de dégénérescence ΔE_{y-x} du doublet radiatif mesurées sur des états localisés soient inférieures à celle calculée pour un fil parfait, mais ne justifient pas de manière quantitative la distribution statistique que nous avons obtenue, et en particulier le nombre d'états dégénérés dans la limite de notre résolution expérimentale. La finesse de certains des pics associés à ces derniers états, souvent inférieure à la résolution spectrale, permet

4.1 Interaction d'échange et structure fine

d'exclure l'hypothèse d'une levée de dégénérescence du doublet radiatif vers des états de polarisations différentes de π_x et π_y .

Des constatations similaires ont été faites dans d'autres systèmes, en particulier dans les boîtes quantiques, pour lesquelles une proportion non négligeable de boîtes ne présentent pas, de manière surprenante, de levée de dégénérescence. Peut-être notre modèle ne tient-il pas compte de toute la complexité du désordre de localisation dans les fils? Mais des causes extrinsèques, par exemple des champs internes (cf Sec. 3.4.1), ne sont pas à exclure, qui modifieraient la structure fine des excitons et domineraient l'interaction d'échange.

Nous pouvons aussi remarquer que les pics les plus polarisés sont en général très fins spectralement, et ne sont pas résolus. Cette observation permet de répondre aux interrogations portant sur le lien entre largeur des pics de μ -PL et temps de cohérence des états localisés, longtemps débattues. La borne inférieure à leur temps de cohérence (15 ps pour une résolution spectrale de 40 μ eV) ainsi déduite est en effet compatible avec les temps d'interaction avec les phonons acoustiques (50 ps) et de recombinaison radiative (300 ps) dans ce système (voir Sec. 4.2.5), alors que sans sélection en polarisation les pics de μ -PL étaient souvent plus larges, bien résolus spectralement et laissaient présager de temps de cohérence très courts (< 5 ps) et inexplicables.

Tentative de corrélation entre structure fine et propriétés de localisation

Nous venons de voir, théoriquement et expérimentalement, que la localisation influe sur la structure fine des excitons en affaiblissant la différence d'énergie entre les deux états radiatifs de l'exciton lourd. Le paramètre déterminant est d'après notre modèle l'extension l_x de la fonction d'onde de l'exciton localisé. Nous avons donc entrepris une étude systématique de nombreux états localisés, de manière à déterminer indirectement leur extension spatiale et à la relier à ΔE_{y-x} . Ce type d'étude avait été mis en œuvre avec succès par Joël Bellessa au cours de sa thèse, et permis de démontrer la corrélation entre le temps de vie radiatif et la taille de la boîte quantique d'une part, et entre la différence d'énergie entre états fondamentaux et excités d'une même boîte et le temps de relaxation par émission de phonons acoustiques entre ces deux états d'autre part [52].

Modélisation par des boîtes carrées simples La taille d'une boîte quantique dont la luminescence de l'état fondamental est observée en μ -PL peut être déterminée à partir du spectre d'excitation de cette boîte (μ -PLE). L'énergie de détection étant fixée sur l'énergie de l'état fondamental, la luminescence de cet état est acquise en fonction de l'énergie d'excitation (Figure 4.7). Dans la pratique, l'ensemble du spectre de μ -PL est acquis à l'aide de la caméra CCD pour chaque énergie d'excitation, et les spectres de μ -PLE sont reconstitués a posteriori. Cela permet d'obtenir la PLE de tous les pics de μ -PL en un seul balayage de l'énergie d'excitation. Cette procédure ne peut pas être appliquée au double spectromètre soustractif, qui est incompatible avec l'utilisation d'une caméra CCD pour acquérir un spectre entier. La discrimination du laser est donc moins bonne que dans des expériences antérieures réalisées avec le double spectromètre [23], et la largeur du "pied du laser", visible dans chaque spectre, mesurée dans les spectres de μ -PLE est de 1 à 2 meV, masquant les éventuelles structures qui pourraient exister au voisinage immédiat de l'énergie de détection.

Chaque spectre de μ -PLE présente des résonances plus ou moins marquées, caractéristiques de chacun des états fondamentaux considérés, et une montée de l'absorption

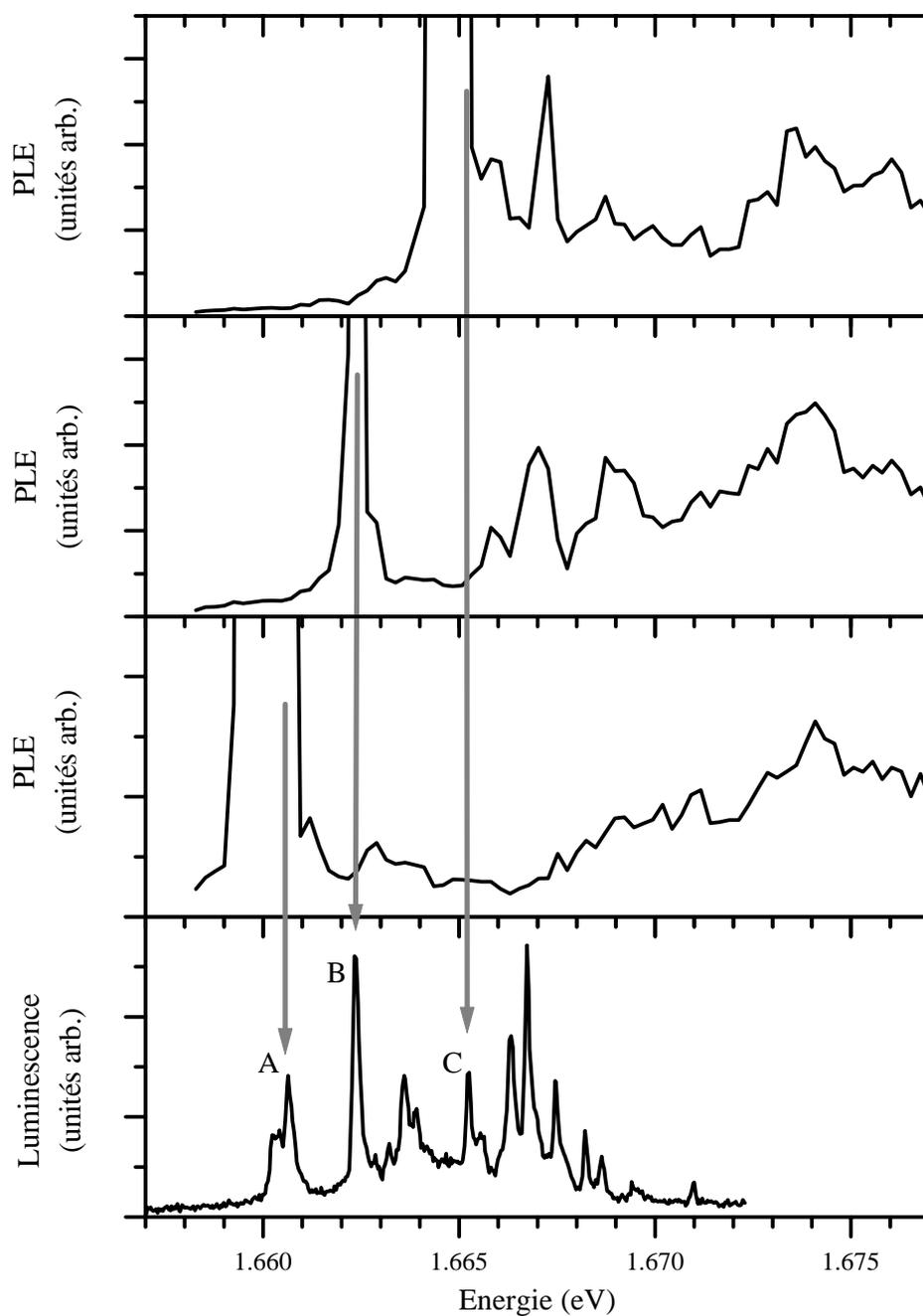


FIG. 4.7 – Exemple de spectres de μ -PLE obtenus en un même endroit d'un échantillon en régime 0D (M304), pour trois énergies de détection correspondant aux pics notés A, B et C sur le spectre de μ -PL.

4.1 Interaction d'échange et structure fine

à $1,674 \text{ eV}$, correspondant à la première transition e1h1 observée dans les spectres de macro-PLE. Les résonances marquées sont attribuées aux états excités des boîtes quantiques considérées. En supposant une profondeur de boîtes quantiques de 9 meV , nous pouvons déduire la taille de la boîte quantique de la différence d'énergie entre état fondamental et état excité. Les différences d'énergie ΔE_{y-x} mesurées en μ -PL en polarisation sont présentées sur la figure 4.8 en fonction de l'écart énergétique entre l'état fondamental et l'état excité des boîtes quantiques correspondantes, mesuré dans les spectres de μ -PLE. Aucune corrélation claire n'apparaît dans ces résultats. La levée de dégénérescence du doublet radiatif n'est donc pas liée à la taille des boîtes quantiques estimées en faisant l'hypothèse de boîtes simples de 9 meV de profondeur.

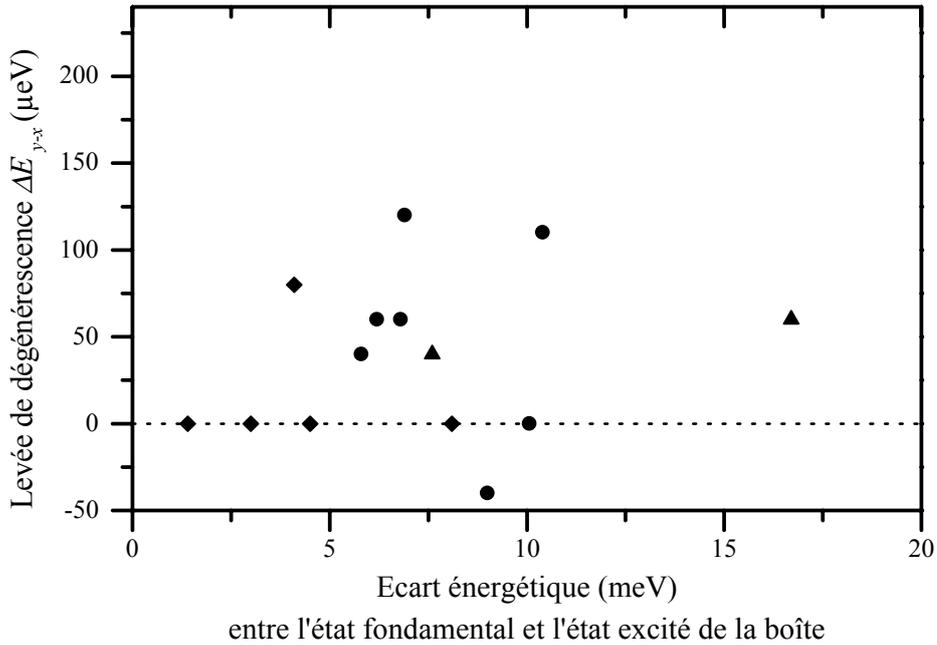


FIG. 4.8 – Statistique des différences d'énergie ΔE_{y-x} mesurées en μ -PL en polarisation en fonction de l'écart énergétique entre état fondamental et état excité des boîtes quantiques correspondantes, dans plusieurs fils quantiques du même échantillon.

Nous avons ensuite considéré un modèle légèrement plus évolué de boîtes quantiques, en remarquant que la plupart des spectres de μ -PLE présentent au voisinage de $1,667 \text{ eV}$ une résonance large qui pourrait être la signature d'états délocalisés existant dans le fil, énergétiquement au-dessus des barrières des boîtes quantiques. De tels états sont en effet obtenus dans les simulations présentées dans la section 3.3. Dans notre modèle, ils n'apparaissent pas en luminescence car l'exciton relaxe vers les états de plus basse énergie sous-jacents, mais ils possèdent de la force d'oscillateur. Nous avons donc ré-interprété nos spectres de μ -PLE en notant pour chaque boîte quantique les différences d'énergie entre état fondamental et état délocalisé, et entre état excité et état délocalisé. A partir de ces deux énergies caractéristiques, nous avons pu obtenir, toujours dans l'hypothèse d'un boîte quantique carrée, la profondeur énergétique de la boîte et sa taille selon l'axe du fil. Le nouveau paramètre ajustable, la profondeur des boîtes, prend dans cette analyse des valeurs comprises entre 7 et 13 meV , et n'est plus contrainte à la variation d'énergie de 9 meV associée à une variation d'une mono-couche de l'épaisseur du fil. Les différences d'énergie ΔE_{y-x} mesurées en μ -PL en polarisation sont présentées sur la figure 4.9 en

fonction de la taille ainsi établie des boîtes quantiques correspondantes. Là encore, aucune corrélation claire n'apparaît dans ces résultats.

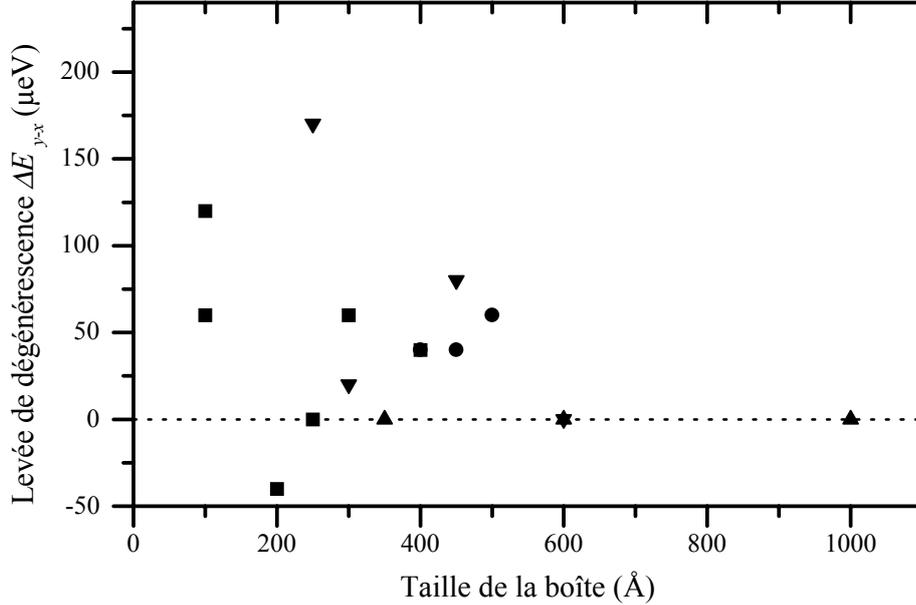


FIG. 4.9 – Statistique des différences d'énergie ΔE_{y-x} mesurées en μ -PL en polarisation en fonction de la taille des boîtes déduites de spectres de μ -PLE, dans plusieurs fils quantiques du même échantillon.

Modélisation du désordre par un potentiel aléatoire Devant l'échec de ces deux tentatives de modélisation par des boîtes quantiques indépendantes, nous avons calculé la levée de dégénérescence par l'interaction d'échange des états localisés dans un potentiel aléatoire gaussien, dans le cadre du modèle présenté à la section 3.3. Deux approches ont été utilisées : d'une part, la levée de dégénérescence ΔE_{y-x} a été calculée au premier ordre en perturbation sur les états localisés; et d'autre part, le potentiel aléatoire et l'interaction d'échange ont été diagonalisés ensemble, les deux interactions étant traitées sur un pied d'égalité. Les états propres ont été obtenus par ces deux méthodes pour un potentiel aléatoire identique à celui présenté dans la section 3.3. Les énergies des deux états du doublet radiatif, et en particulier leurs différences, sont similaires en ce qui concerne les états fondamentaux de chacun des minima du potentiel, qui participent à la luminescence. Par contre, lorsque les deux interactions sont traitées sur le même plan, les états délocalisés à plus haute énergie ne sont pas appariés deux à deux à l'issue de la simulation numérique, comme cela est par construction le cas lorsque l'interaction d'échange est traitée en perturbation. Ces états ne sont cependant pas sondés en μ -PL. Pour pouvoir étudier statistiquement la levée de dégénérescence des états localisés, il est nécessaire qu'à l'issue de la simulation les états polarisés parallèlement et perpendiculairement au fil soient appariés, et nous nous sommes donc concentrés sur le traitement perturbatif de l'interaction d'échange, qui seul fournit les états par paires.

La figure 4.10 présente dans ce cadre les levées de dégénérescence ΔE_{y-x} calculées en fonction de l'extension spatiale des états localisés (l'écart-type de leur fonction d'onde). Les groupes de points les plus denses, indiqués par des flèches, ont été identifiés comme les états fondamentaux, les premiers et seconds états excités des différents minima du

4.1 Interaction d'échange et structure fine

potentiel aléatoire. La levée de dégénérescence des états fondamentaux suit la loi calculée précédemment, et représentée par la courbe. De nombreux états localisés ne se placent pas sur ce graphe dans les 3 groupes indiqués, et correspondent aux états à plus haute énergie, qui ne sont pas bien modélisés par des états propres de boîtes quantiques indépendantes. Cependant, ils n'apparaissent a priori pas dans les spectres de μ -PL car ce ne sont pas des états fondamentaux. De plus les états pour lesquels ΔE_{y-x} est nul ou inférieur à la résolution spectrale ne constituent pas une proportion macroscopique de l'ensemble, comme c'est le cas dans nos résultats expérimentaux.

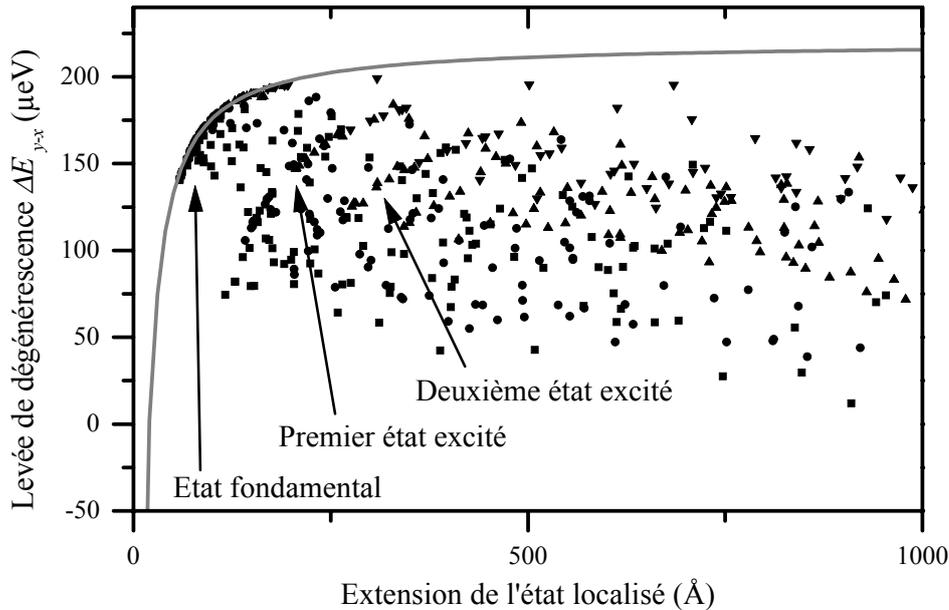


FIG. 4.10 – Levées de dégénérescence ΔE_{y-x} en fonction de l'extension spatiale l_x des états localisés, calculées en traitant l'interaction d'échange en perturbation sur les états localisés, dans quatre configurations de potentiels désordonnés de même amplitude mais de longueur de corrélations égales à 100 (carrés), 200 (cercles), 500 (triangles pointant en haut) et 1000 \AA (triangles pointant en bas). La courbe représente la fonction $\Delta E_{1D}^0(1 - l'/l_x)$ avec $l' = 200 \text{ \AA} \approx L_y$.

Il est dans ce modèle relativement difficile de simuler les spectres de μ -PLE de chaque état fondamental, de manière à les comparer aux spectres expérimentaux. Cependant il apparaît que le modèle de potentiel aléatoire gaussien redonne, comme attendu, les mêmes levées de dégénérescence par interaction d'échange que le modèle plus simple de boîtes carrées. Une information supplémentaire, l'énergie absolue des états, figure dans le modèle de potentiel aléatoire. Même si nos études antérieures [52] ont montré qu'il n'y a pas de corrélation entre l'énergie absolue des pics de μ -PL et la taille des boîtes quantiques associées, nous avons reporté dans la figure 4.11 les levées de dégénérescence mesurées en fonction de l'énergie des pics, d'une part d'après nos résultats expérimentaux et d'autre part d'après le modèle de potentiel de localisation aléatoire. Aucun accord, même qualitatif, n'apparaît entre notre modèle et les résultats expérimentaux. La simulation montre que ce sont les états de plus basse énergie qui ont leur fonction d'onde dans l'espace réciproque concentrée autour de $K_x = 0$, et qu'ils présentent donc les levées de dégénérescence les plus importantes. Les résultats expérimentaux montrent une tendance inverse, les grandes levées de dégénérescence étant observées sur les pics à haute énergie

dans les spectres de μ -PL.

En conclusion de ce paragraphe, l'analyse statistique des levées de dégénérescence ΔE_{y-x} observées n'a pu être reliée de manière directe aux propriétés intrinsèques des boîtes quantiques, malgré les efforts réalisés pour d'une part mieux connaître spectralement les boîtes quantiques, et d'autre part mieux simuler leur environnement.

4.1.4 L'interaction d'échange dans les fils quantiques en régime 1D

Nous avons aussi étudié la dépendance en polarisation des spectres de μ -PL dans les fils quantiques en régime 1D. Ces expériences sont plus compliquées que dans les fils en régime 0D car il n'existe pas dans ces fils de régime vraiment linéaire lorsque la puissance d'excitation est augmentée. Les raies observées en μ -PL se déplacent en effet lorsque la densité de porteurs varie (voir Sec. 5.3.1 et 3.4.4). Au cours de ces expériences, nous avons excité le fil quantique avec un faisceau laser polarisé parallèlement au fil, dans la sous-bande e3h3 du fil à 1,75 eV, et détecté la luminescence dans les deux polarisations linéaires, en coupant le faisceau laser réfléchi à l'aide d'un filtre interférentiel. Nous avons ainsi évité d'utiliser le compensateur de Babinet-Soleil, qui fait tourner à la fois la polarisation de l'excitation et celle de la détection, et oblige à exciter le fil quantique dans deux polarisations différentes, créant selon la polarisation des densités de porteurs légèrement différentes dans le fil.

Les spectres présentés sur la figure 4.12 ont été obtenus sur un îlot étendu sur 2 μm dans un échantillon de fils quantiques en régime 1D (NM125), à deux puissances d'excitation différentes, toutes deux suffisamment faibles pour garantir la présence d'au plus un exciton dans l'îlot. Cet îlot est celui sur lequel ont été réalisées les expériences présentées à la figure 3.28.b, qui ont montré que le pic de μ -PL a une largeur de l'ordre de 1 meV, sauf à très faible puissance d'excitation où le pic s'affine. Dans les deux cas, les spectres acquis dans les deux polarisations linéaires sont très similaires, et aucune levée de dégénérescence n'apparaît, dans la limite de notre résolution spectrale de l'ordre de 100 μeV sur les spectres à très faible puissance (a) et de 40 μeV sur les autres spectres (b). Seules les intensités des pics et leurs rapports relatifs dépendent de la polarisation de détection. Aucune levée de dégénérescence n'a été observée en polarisation sur les spectres de μ -PL dans ces échantillons.

4.1.5 Conclusion

Lorsque l'exciton est localisé, dans les fils en régime 0D, la structure fine de l'exciton est déterminée par l'interaction Coulombienne d'échange. Nous avons montré que le doublet radiatif est séparé en deux états qui interagissent avec les photons polarisés respectivement parallèlement et perpendiculairement au fil, séparés d'environ 100 μeV . Cette valeur dépend de l'état localisé mais n'a pu être reliée expérimentalement à son extension dans l'axe du fil, qui est en principe le paramètre la déterminant. Elle est de plus légèrement inférieure à la valeur de 210 μeV prévue théoriquement pour des excitons libres en $K_x=0$ dans les fils quantiques étudiés, cette diminution pouvant être partiellement attribuée à l'effet de la localisation. L'interaction d'échange est censée séparer les 4 états de l'exciton lourd, le doublet non radiatif $\sigma = \pm 2$ restant dégénéré et à plus basse énergie d'environ 180 μeV . Celui-ci n'est optiquement actif qu'en présence de champ magnétique, et nous n'avons pu l'observer sur notre dispositif.

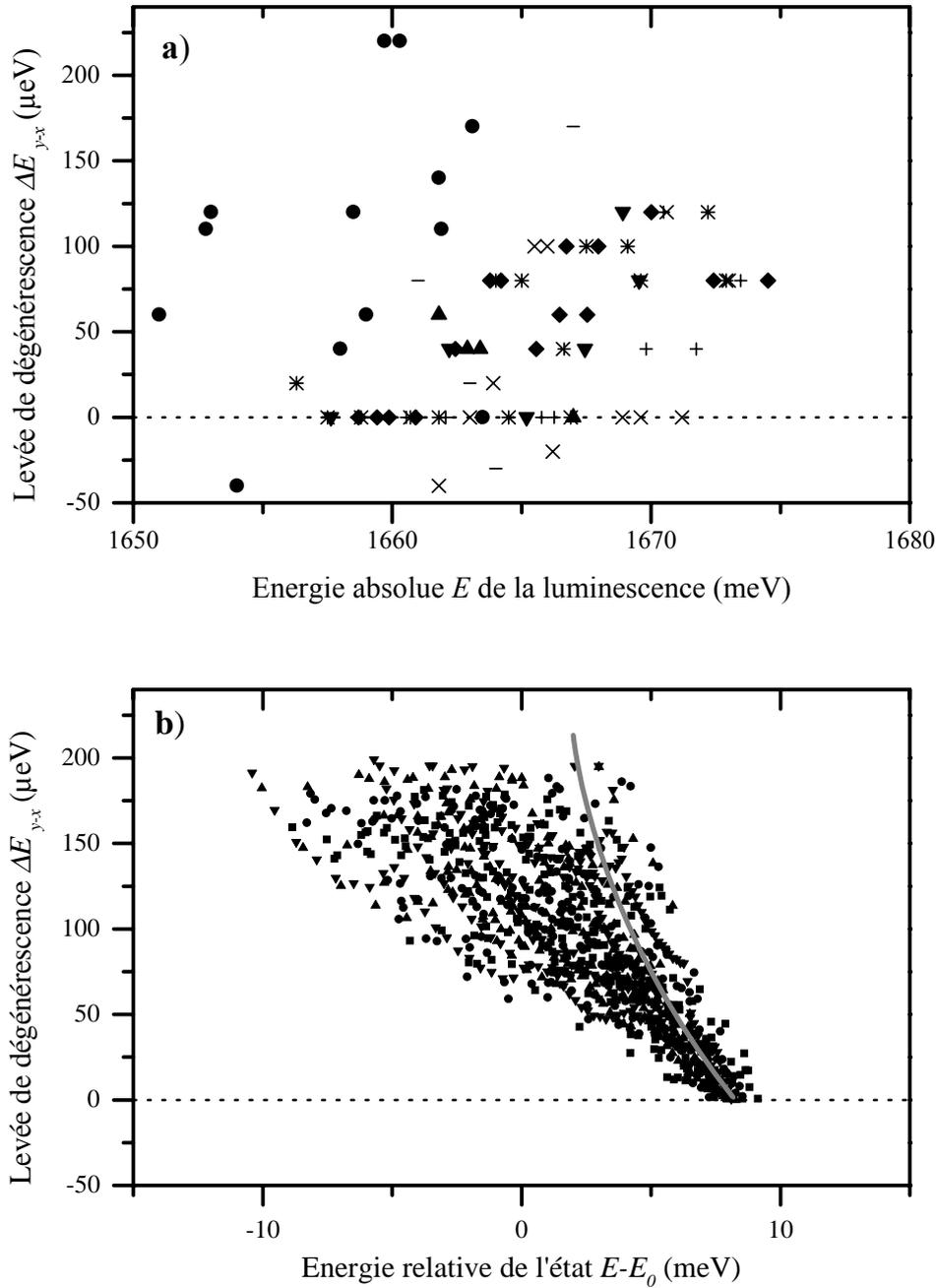


FIG. 4.11 – Levées de dégénérescence ΔE_{y-x} en fonction de l'énergie des états localisés : (a) Résultats expérimentaux obtenus sur plusieurs fils quantiques d'un même échantillon (chaque symbole correspond à un fil étudié); (b) Simulation en traitant l'interaction d'échange en perturbation sur les états localisés, dans 4 configurations de potentiels désordonnés de même amplitude mais de longueur de corrélations égales à 100 (carrés), 200 (cercles), 500 (triangles pointant en haut) et 1000 Å (triangles pointant en bas). La courbe représente la fonction ΔE_{1D} ($K_x = \sqrt{\frac{2m_x E}{\hbar^2}}$) correspondant aux excitons libres dans un fil parfait.

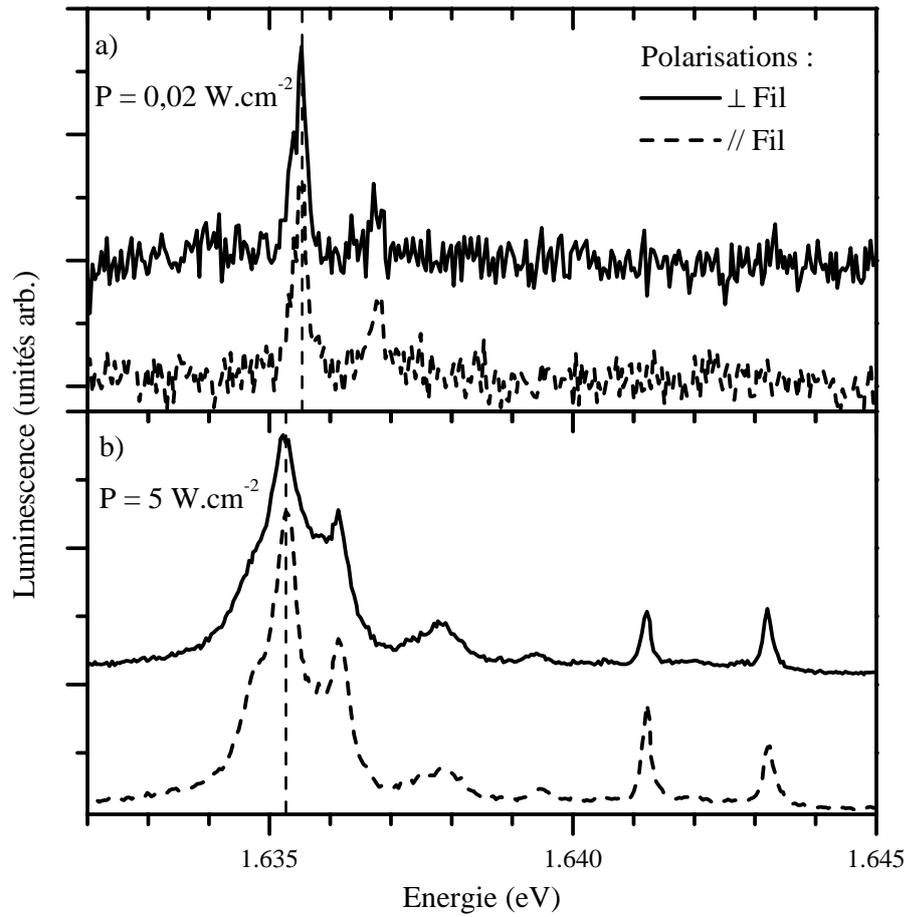


FIG. 4.12 – Spectres de μ -PL obtenus sur un îlot étendu dans un échantillon de fils quantiques en régime 1D (NM125), à deux puissances d'excitations : (a) $0,02 \text{ W.cm}^{-2}$ et (b) 5 W.cm^{-2} .

4.1 Interaction d'échange et structure fine

Mais la structure fine apparaît comme très “fragile” dans les fils quantiques. Dans les fils en régime 0D, 40% des états localisés observés ne présentent pas de levée de dégénérescence, ce que nous ne pouvons pas expliquer par la seule influence de la localisation. Dans les fils en régime 1D nous n'avons observé aucune signature de cette structure fine, peut-être à cause du désordre résiduel (voir Sec. 3.4) qui prend plus d'importance dans ces fils.

Il est intéressant de comparer la levée de dégénérescence du doublet radiatif que nous avons mesurée, soit $100 \mu eV$ en moyenne et $170 \mu eV$ au maximum, avec celles obtenues dans d'autres types de structures et/ou d'autres matériaux. Des valeurs plus importantes ont été observées dans les boîtes quantiques de semiconducteurs II-VI, dans lesquels l'interaction Coulombienne, directe comme d'échange, est plus forte : $320 \mu eV$ dans CdTe [89] et $800 \mu eV$ dans CdSe [88]. Dans les boîtes quantiques InAs, des valeurs similaires ont été observées ($150 \mu eV$) [92], alors que dans les états localisés aux interfaces de puits quantiques les levées de dégénérescence sont plus faibles ($50 \mu eV$) [87], vraisemblablement en raison de l'anisotropie plus faible des états localisés que dans le cas des fils quantiques.

Enfin, si la structure fine des excitons dans les fils quantiques n'avait pas été observée jusqu'à ce jour, quelques expériences ont été menées pour étudier la relaxation de spin dans les fils quantiques. Elles ont en général été réalisées en polarisation circulaire, et non sur les polarisations linéaires des états propres [93, 94]. En excitant l'échantillon par une impulsion de polarisation σ^+ par exemple, un léger déséquilibre entre les populations d'excitons σ^+ et σ^- est initialement créé, et la relaxation de ce déséquilibre est mesurée. L'étape initiale, dite de pompage optique, crée donc des excitons dans une superposition des deux états propres polarisés linéairement, et en raison de la levée de dégénérescence, l'exciton subit des oscillations de Rabi entre ces deux états. En moyennant sur une population d'excitons à l'équilibre thermique, les oscillations de Rabi de chacun des excitons sont brouillées. Les travaux de David Larousserie [64] ont montré que ces résultats pouvaient donc s'interpréter comme la dépolarisation du gaz d'excitons, sans qu'interviennent les processus de relaxation de spin proprement dits, au cours desquels un exciton dans un état propre polarisé linéairement change de spin [95]. En raison de la faible efficacité du pompage optique, nous n'avons pas envisagé d'étudier la relaxation de spin dans nos fils en polarisation linéaire, en μ -PL comme en macro-PL.

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

Dans les fils quantiques des deux générations étudiées, la température s'avère être un paramètre crucial d'évolution des spectres de μ -PL. En particulier, les pics fins observés en μ -PL disparaissent, quel que soit l'échantillon, lorsque la température est augmentée de 10 à 30 K . Nous allons dans un premier temps présenter les résultats expérimentaux obtenus dans les fils quantiques des deux générations, puis étudier d'un point de vue théorique l'influence de l'interaction avec les phonons, et en particulier la formation d'états intriqués de polarons, de manière à expliquer ces résultats. L'étude théorique a été menée en collaboration avec Robson Ferreira.

4.2.1 Influence de la température sur les spectres de μ -PL

Fils quantiques en régime 0D

La plupart des spectres de μ -PL présentés dans cette thèse ont été obtenus à la plus basse température accessible dans notre cryostat, soit $T = 10 K$ ¹. Les pics fins observés dans ces spectres sont en fait très sensibles à la température de l'échantillon, comme le montre la série de spectres obtenus entre 10 et 40 K sur un échantillon en régime 0D (M304), présentée sur la figure 4.13. Les spectres ont été mesurés sous excitation par un laser Ar, à 2,4 eV dans les barrières du fil quantique, à une puissance très faible ($6 W.cm^{-2}$) garantissant la présence d'au plus un exciton dans la zone excitée.

On remarque que l'intensité des pics de μ -PL décroît fortement entre 14 et 18 K , les pics disparaissant au profit d'un fond continu, de largeur 7 meV comparable à l'élargissement inhomogène, représenté par une gaussienne (en gris) sur les spectres. Ce fond représente 70% de la luminescence totale à $T = 21 K$, et les pics fins ont totalement disparu à partir de 30 K . La gaussienne tracée sur le spectre obtenu à 10 K représente environ 30% de la luminescence, mais nous devons noter que ce spectre peut être reproduit uniquement par des lorentziennes associées à chaque pic de μ -PL, dont les bases se chevauchent et donnent lieu au fond observé. Il est donc difficile d'évaluer les proportions respectives de la luminescence due aux pics et au fond pour $T < 14 K$.

La largeur des pics fins à basse température n'est pas résolue spectralement, même lorsque la luminescence est filtrée en polarisation pour ne sélectionner qu'un seul des deux états du doublet radiatif, et qu'un spectromètre de meilleure résolution spectrale (40 μeV) est utilisé. Nous n'avons donc pas accès à l'élargissement homogène de la transition. Lorsque la température augmente, nous n'observons pas d'élargissement des pics fins de μ -PL mais leur intensité diminue. Leur rapport relatif évolue par contre de manière importante, les pics à 1,664 eV disparaissant par exemple rapidement alors que ceux à 1,661 eV persistent jusqu'à 30 K .

L'étude quantitative du spectre de μ -PL associé à une boîte quantique unique est difficile en raison d'une part de la faible distance énergétique entre pics voisins, et d'autre part des transferts observés entre les différents pics lorsque la température augmente. Il est plus aisé de mesurer le rapport global de la luminescence des pics fins et de la contribution du fond. Jusqu'à 21 K une raie large gaussienne a été prise pour le fond,

1. L'utilisation d'un porte-échantillon différent, en contact thermique plus fort avec le réservoir d'hélium liquide, permet d'abaisser la température de l'échantillon à environ 6 K , mais sans possibilité de la faire varier par chauffage.

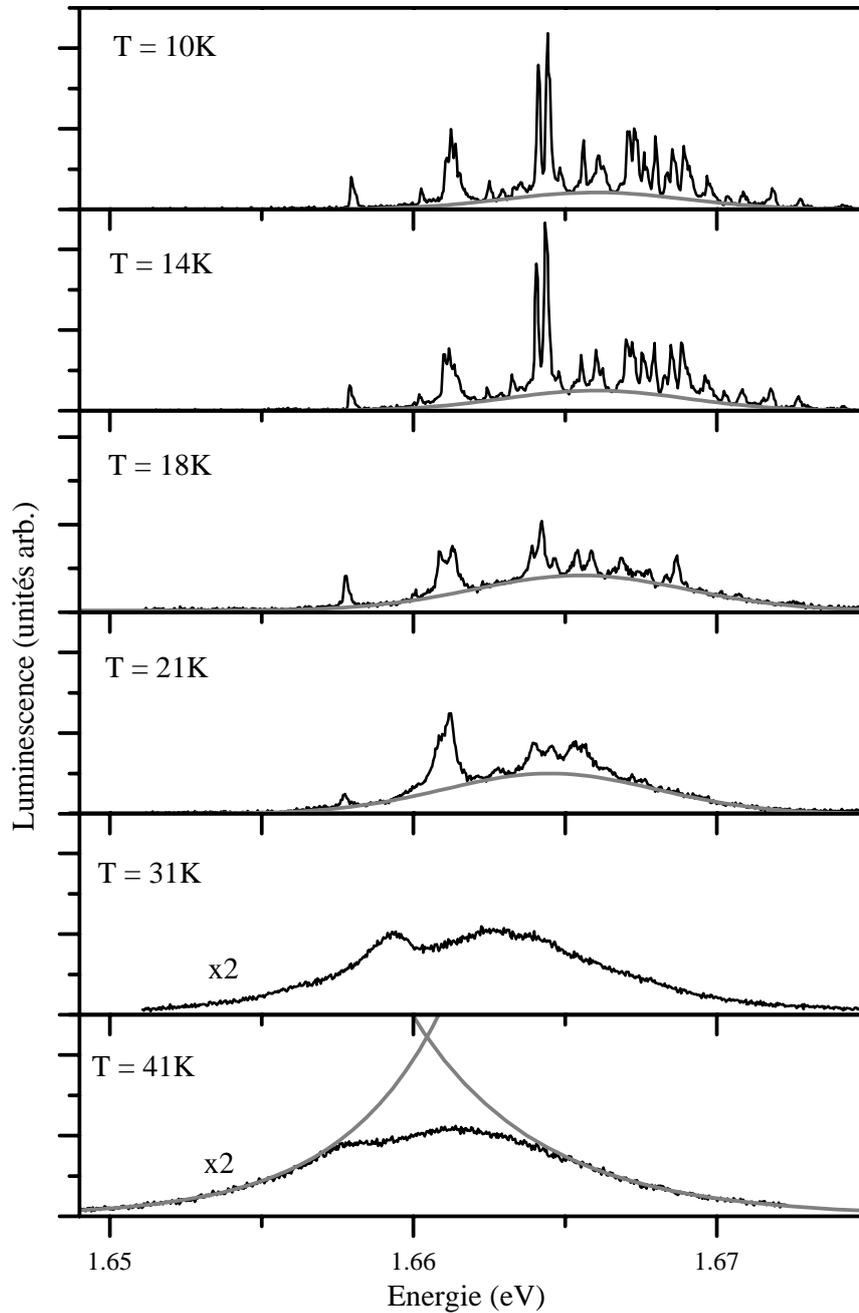


FIG. 4.13 – Spectres de μ -PL sur un échantillon en régime 0D (M304), en fonction de la température. La puissance d'excitation est de 6 W.cm^{-2} , à 2,41 eV, et la résolution spectrale $100 \mu\text{V}$. Sur les quatre premiers spectres, la courbe grise représente le fond sous-jacent aux pics fins. Sur le dernier spectre, les queues basse et haute énergie sont reproduites par des exponentielles (courbes grises).

alors qu'à partir de 31 K , seule la structure à 1,658 eV a été considérée comme un pic distinct du fond. L'intensité relative des pics fins par rapport à l'ensemble de la raie est reportée sur la figure 4.14. Elle décroît de 65% à 5% entre 9 et 30 K , et sera analysée dans la discussion concluant cette section.

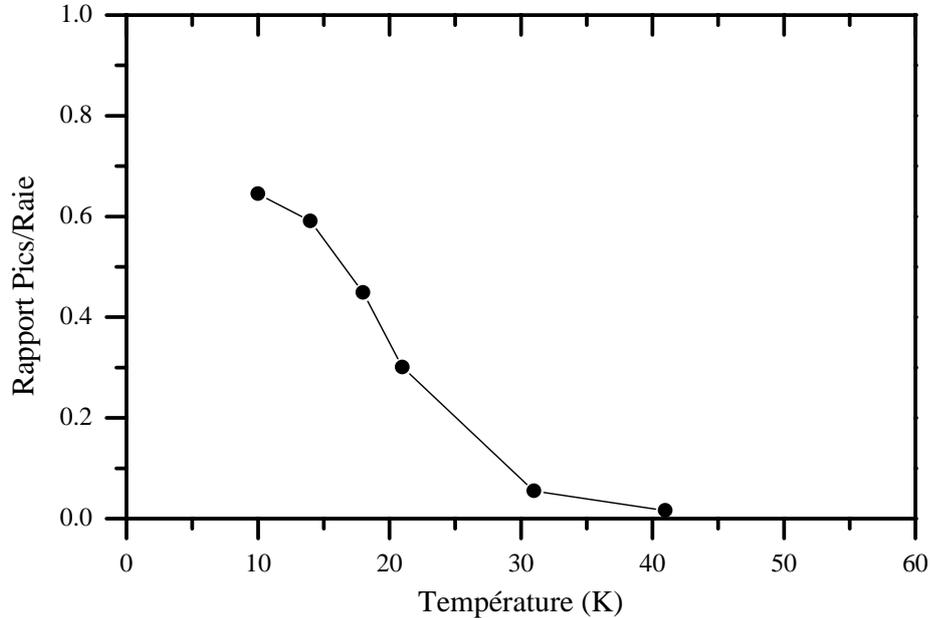


FIG. 4.14 – Intensité des pics fins rapportée à celle de l'ensemble de la raie, en fonction de la température.

L'intensité intégrée de la raie fluctue de 10% lorsque la température augmente, mais reste globalement constante, comme cela est le cas dans les spectres de macro-luminescence [61], montrant que les canaux de recombinaison non radiative ne sont pas activés thermiquement dans ce régime de température. Le déplacement vers le rouge des transitions est dû à la variation du gap du GaAs en fonction de la température.

Le spectre obtenu à la plus haute température possède une queue haute énergie reproduite par une exponentielle décroissante $\propto e^{-E/k_B T'}$ (courbe en gris sur la figure) avec une température effective $T' \approx 47 K$, voisine de la température mesurée $T = 40 K$. Cela montre que les porteurs sont à l'équilibre thermique avec l'échantillon, c'est-à-dire avec le réservoir de phonons du cristal. Les spectres obtenus à plus basse température ne possèdent pas une queue haute énergie parfaitement exponentielle, en raison des pics fins qui subsistent dans le spectre. Il s'avère donc difficile d'en déduire une température effective T' . Nous reviendrons sur la nature des équilibres thermiques dans la section 4.3.

Le profil de la queue basse énergie de la raie suit une exponentielle croissante ($\propto e^{+E/k_B T''}$ avec $T'' \approx 40 K$), qui est vraisemblablement la signature de processus de recombinaisons assistées par phonons. Ce type de queue, dit d'Urbach, est connu dans l'étude des spectres d'absorption en-dessous de la transition excitonique dans les semiconducteurs [96, 97, 98].

Fils quantiques en régime 1D

Nous avons étudié l'évolution du spectre de μ -PL dans les fils en régime 1D sur un îlot étendu sur 3 μm , de manière à isoler la contribution de ce seul îlot. Les spectres obtenus

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

sont présentés sur la figure 4.15. A basse température, ils sont constitués essentiellement d'un seul pic, qui présente un épaulement à haute énergie. Les trois structures beaucoup moins intenses, visibles sur les spectres en échelle logarithmique à 1,633, 1,638 et 1,652 eV, sont attribuées aux îlots voisins de celui étudié, qui ne sont pas parfaitement discriminés et sont situés dans les ailes de la tache d'excitation. Le pic à 1,644 eV est quant à lui dû à une raie de fluorescence du laser à colorant, qui n'a pu être éliminée.

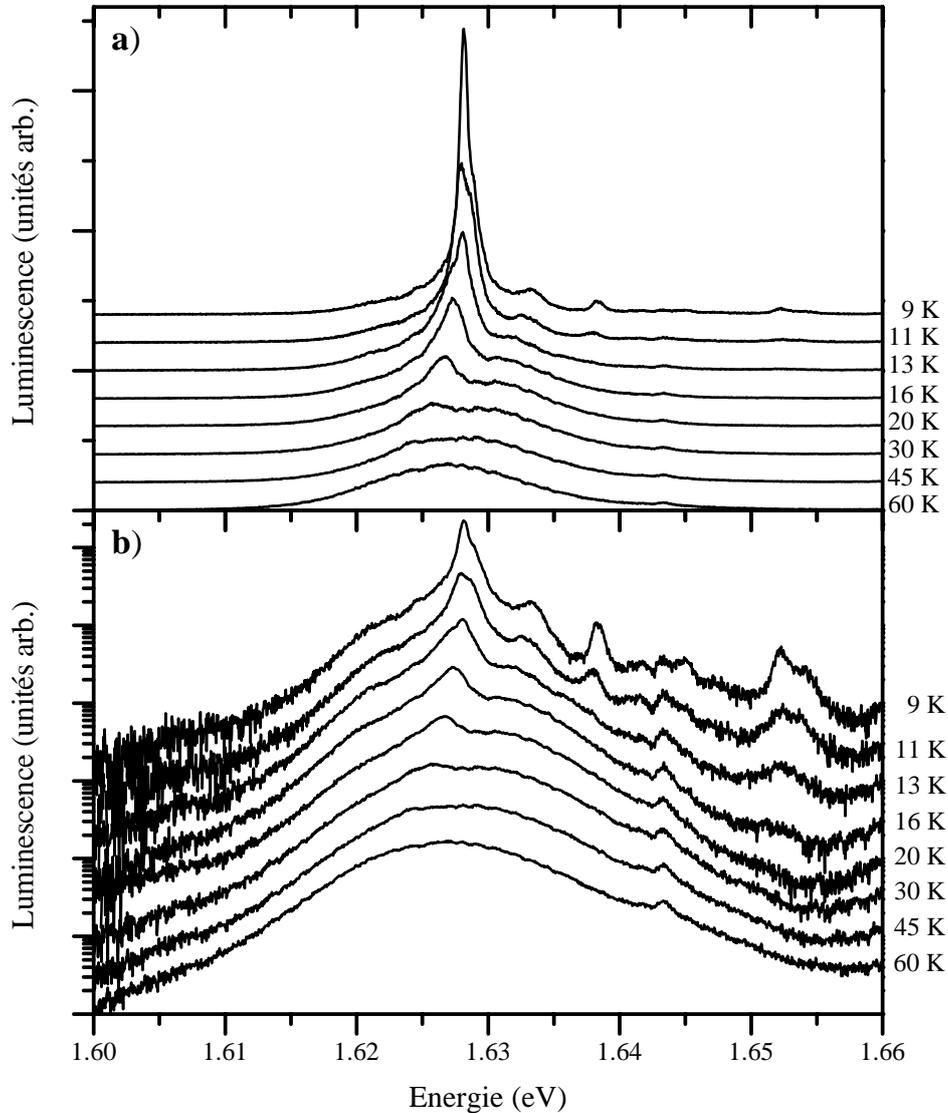


FIG. 4.15 – Spectres de μ -PL sur un échantillon en régime 1D (NM79), en fonction de la température. La puissance d'excitation est de 55 W.cm^{-2} , à 1,74 eV, et la résolution spectrale $100 \mu\text{eV}$. La petite structure présente sur chaque spectre à 1,644 eV est due à une raie de fluorescence du laser d'excitation.

Avant de commenter ces spectres, nous pouvons remarquer que l'intensité intégrée de la raie décroît de moins de 5% entre 9 et 60 K, comme cela est le cas dans les spectres de macro-luminescence [61], montrant que les canaux de recombinaison non radiative ne sont pas activés thermiquement dans ce régime de température.

Lorsque la température augmente de 9 à 20 K, comme dans le cas des fils en régime 0D, le pic fin s'effondre rapidement au profit du fond continu. Dans le même temps, un

transfert d'intensité se produit entre le pic et son épaulement. L'ensemble se déplace vers le rouge d'environ $1,5 \text{ meV}$, ce qui est beaucoup plus important que dans le cas des fils en régime 0D ($0,3 \text{ meV}$) et ne peut s'expliquer uniquement par la variation du gap de GaAs ($0,7 \text{ meV}$).

La largeur homogène de la transition est très difficile à évaluer. En ne tenant pas compte des pics associés aux îlots voisins, le pic central peut être décomposé en une somme de deux lorentziennes sur un fond gaussien, mais celles-ci sont très proches et la décomposition n'est pas univoque.

Nous pouvons par contre aisément évaluer l'intensité intégrée de l'ensemble des deux pics, calculée en intégrant le spectre entre $1,624$ et $1,64 \text{ eV}$, puis en retranchant la contribution du fond gaussien. Elle est reportée sur la figure 4.16. Rapportée à l'intensité totale de la raie, elle décroît de 45% à 5% entre 9 et 20 K . L'analyse de ce résultat sera réalisée après l'étude théorique.

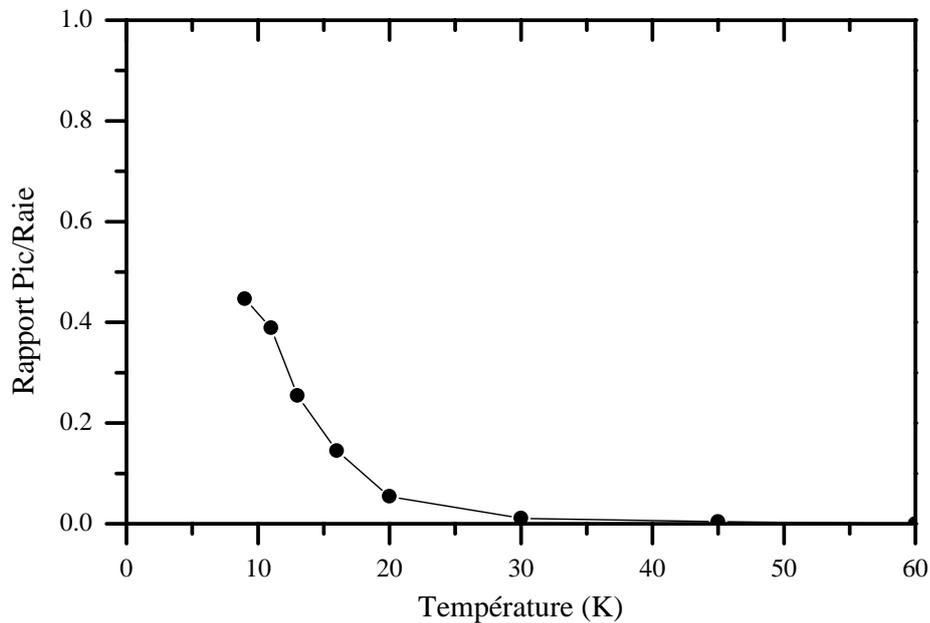


FIG. 4.16 – Intensité du pic fin central et de son épaulement, rapportée à celle de l'ensemble de la raie, en fonction de la température.

Les autres pics fins, associés aux îlots voisins, suivent une évolution similaire.

Comme dans le cas des fils quantiques en régime 0D, la queue haute énergie des spectres est bien reproduite par une exponentielle, caractérisant l'équilibre thermique des porteurs, ce que nous discuterons à la section 4.3. La queue basse énergie est elle-aussi reproduite par une exponentielle $e^{+E/k_B T''}$, T'' variant faiblement de 32 à 43 K lorsque la température de l'échantillon augmente de 9 à 60 K . Comme dans le cas des fils en régime 0D, ceci est attribuée à une queue d'Urbach associée aux processus de recombinaison assistée par émission de phonons.

4.2.2 Présentation de l'interaction exciton-phonons

Pour mieux comprendre les résultats expérimentaux obtenus dans les fils quantiques, dans les deux régimes 0D et 1D, nous nous sommes intéressés à l'interaction exciton-phonons et à ses nombreuses manifestations dans la spectroscopie des excitons. La

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

première d'entre elles, et la plus immédiate, est la relaxation des excitations photo-crées à haute énergie vers les états excitoniques du bas de la première sous-bande, très efficace, qui a été étudiée par Joël Bellessa au cours de sa thèse [52] et a fait l'objet de nombreux travaux théoriques [99, 100, 101]. La deuxième concerne le "désordre" généré par les phonons, dynamique par essence et présent à toute température non nulle. Ce désordre se traduit par la formation de nouveaux états propres du système, les polarons, états liés d'excitons avec un "nuage de phonons" qui les entourent. L'énergie et le temps de cohérence des excitons sont ainsi modifiés, et dépendent de la température. Les processus de recombinaison radiative assistée par absorption et émission de phonons seront aussi étudiés.

Dans cette section, nous allons simplement décrire l'interaction exciton-phonon dans le fil quantique, et calculer les probabilités de transition par la règle d'or de Fermi. Dans la section suivante, nous pourrons ainsi calculer l'élargissement homogène des transitions, dans les régimes 0D et 1D. La modélisation des polarons fera l'objet de la dernière section.

Cadre théorique et hypothèses

Nous nous sommes focalisés dans cette étude sur le régime des basses températures, inférieures à $T \approx 50 \text{ K}$ soit $k_B T \approx 4 \text{ meV}$, dans lequel les spectres de μ -PL évoluent de manière drastique. Les propriétés de l'interaction exciton-phonon sont pour la plupart dictées par la population thermique des phonons impliqués, et nous ne considérerons ici que les phonons acoustiques, les phonons optiques ayant une énergie bien connue de 36 meV dans GaAs, grande devant $k_B T$. De plus, en raison du très faible désaccord de paramètre de maille entre GaAs et GaAlAs, il existe peu de modes de phonons confinés dans le fil quantique, et ceux qui le sont ont des fonctions d'ondes pénétrant très fortement dans les barrières en raison de leur très faible confinement. Nous considérerons donc, par souci de simplicité, uniquement l'interaction avec les phonons du matériau massif. Les phonons acoustiques seront décrits par une relation de dispersion linéaire, dans le cadre du modèle de Debye. Enfin, notre but étant de mieux comprendre les effets de la température sur les spectres de luminescence des fils, nous nous cantonnerons à l'étude des paires électron-trou dans l'état fondamental de l'exciton, et dans la première sous-bande e1h1 confinée dans le fil quantique, dans les régimes 0D et 1D.

Deux mécanismes d'interaction entre porteurs et phonons acoustiques existent dans les matériaux semiconducteurs, de natures différentes : le potentiel de déformation décrit l'effet du déplacement des atomes du cristal, et le potentiel ainsi induit sur les porteurs [103]; le couplage piézo-électrique tient compte, dans les matériaux non centrosymétriques présentant un effet piézo-électrique (Sec. 3.4.1), de l'effet sur les porteurs du champ électrique généré par la contrainte induite par les phonons. Le couplage piézo-électrique est le plus souvent négligé devant le potentiel de déformation dans les structures à base de GaAs, présentant un effet piézo-électrique faible. Sa dépendance en impulsion des phonons est différente de celle obtenue dans le cadre du potentiel de déformation, et favorise les phonons de petite impulsion qui s'avèrent cruciaux dans la description des polarons. Nous l'évaluerons donc, et vérifierons finalement qu'il est négligeable. L'hamiltonien d'interaction par le potentiel de déformation sera pour sa part utilisé dans sa forme la plus simplifiée. Ainsi, l'interaction entre les électrons et les phonons, non nulle seulement pour les phonons acoustiques longitudinaux (LA), sera décrite sans approximation par un potentiel de déformation D_c indépendant de l'impulsion \mathbf{q} du phonon. L'interaction entre les trous et les phonons acoustiques est quant à elle beaucoup plus complexe, en raison de l'anisotropie de la bande de valence du GaAs [104]. Une description riche

et très bien formulée de ce couplage, et de l'interaction exciton-phonon en général, est fournie par I.K. Oh et J. Singh [105]. Bien que les phonons acoustiques transverses soient aussi couplés aux trous, et que ces couplages dépendent de l'impulsion des phonons, nous considérerons en première approximation uniquement les termes indépendants de \mathbf{q} , c'est-à-dire comme dans le cas des électrons, le couplage des trous aux phonons acoustiques longitudinaux par un potentiel de déformation D_v [104, 105].

Hamiltonien d'interaction

Sous ces hypothèses, l'hamiltonien d'interaction exciton-phonons acoustiques par le potentiel de déformation s'écrit, en seconde quantification pour les phonons,

$$V_{exc-ph} = \sum_{\mathbf{q}} \left(\alpha_e(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_e} + \alpha_h(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_h} \right) a_{\mathbf{q}}^{\dagger} + \left(\alpha_e^*(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_e} + \alpha_h^*(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_h} \right) a_{\mathbf{q}},$$

où \mathbf{q} désigne le vecteur d'onde du phonon, \mathbf{r}_e et \mathbf{r}_h sont les positions de l'électron et du trou, $a_{\mathbf{q}}^{\dagger}$ et $a_{\mathbf{q}}$ sont les opérateurs de création et d'annihilation du phonon, et les amplitudes du couplage sont réelles et données par :

$$\alpha_{e,h}(\mathbf{q}) = D_{c,v} \sqrt{\frac{\hbar |\mathbf{q}|}{2 \rho c_{LA} V}}.$$

Dans GaAs, les valeurs numériques utilisées sont $D_c = 8,6 \text{ eV}$ et $D_v = 6,7 \text{ eV}$ pour le potentiel de déformation, pris positif par convention, dans les bandes de conduction et de valence, $\rho = 5320 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ pour la masse volumique et $c_{LA} = 5150 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour la vitesse du son [106]. V désigne le volume de quantification, et est éliminé après intégration dans les résultats finaux. Le couplage piézo-électrique n'est pas pris en compte dans ce paragraphe, et fera l'objet d'un paragraphe spécifique.

Dans un premier temps, nous allons décrire l'interaction des phonons avec les excitons *libres* de la première sous-bande, décrits comme lors de l'étude de l'interaction d'échange par un vecteur d'onde du centre de masse K suivant l'axe du fil, un mouvement relatif figé dans la fonction d'onde $\varphi_{1D,var}$ de l'exciton calculée de manière variationnelle, et un confinement latéral dans un fil quantique rectangulaire à barrières infinies caractérisé par des fonctions d'onde $f^{rect}(y,z)$ identiques pour l'électron et le trou (Sec. 1.3.2)². En fonction de l'opérateur B_K^{\dagger} de création d'un exciton de vecteur d'onde K le long du fil, l'hamiltonien d'interaction s'écrit donc³

$$\tilde{V}_{exc-ph} = \sum_{K_i, K_f, \mathbf{q}} \langle K_f, n_e = n_h = 1, n_X = 0 | V_{exc-ph} | K_i, n_e = n_h = 1, n_X = 0 \rangle B_{K_f}^{\dagger} B_{K_i},$$

chaque élément de la somme comportant quatre termes associés à la création ou l'annihilation d'un phonon par interaction avec l'électron ou le trou. Le premier d'entre eux fait apparaître

$$\begin{aligned} & \langle K_f, n_e = n_h = 1, n_X = 0 | \alpha_e(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_e} | K_i, n_e = n_h = 1, n_X = 0 \rangle \\ &= \alpha_e(\mathbf{q}) \langle K_f | e^{iq_x X} | K_i \rangle \langle \varphi_{1D,var} | e^{iq_x(-x - m_h/m_X)} | \varphi_{1D,var} \rangle \langle f^{rect} | e^{i(q_y y + q_z z)} | f^{rect} \rangle \\ &= \alpha_e(\mathbf{q}) \delta_{q_x = K_i - K_f} e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_h}{2 m_X}\right)^2} F(q_y, q_z), \end{aligned}$$

2. Pour mémoire, nous avons pris $\varphi_{1D,var}(x) = e^{-x^2/(2a_{var}^2)}/(\pi^{1/4} a_{var}^{1/2})$ avec $a_{var} = 85 \text{ \AA}$ pour le mouvement relatif, et $L_y = 160 \text{ \AA}$, $L_z = 80 \text{ \AA}$ pour les dimensions du fil rectangulaire.

3. Comme au paragraphe 1.4, n_e et n_h désignent les sous-bandes de l'électron et du trou et $n_X = 0$ l'état fondamental de l'exciton. Les positions suivant l'axe du fil de l'électron et du trou s'expriment $x_e = X - (m_h/m_X)x$ et $x_h = X + (m_e/m_X)x$ en fonction du mouvement relatif x et du mouvement du centre de masse X de l'exciton.

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

où $F(q_y, q_z) = \langle f^{rect} | e^{i(q_y y + q_z z)} | f^{rect} \rangle$ est le facteur de forme du fil dans les directions confinées.

L'hamiltonien d'interaction se réécrit donc de manière beaucoup plus agréable, pour l'exciton fondamental dans la première sous-bande,

$$\begin{aligned} \tilde{V}_{exc-ph} = & \sum_{K_i, \mathbf{q}} \left(\alpha_e(|\mathbf{q}|) e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_h}{2 m_X}\right)^2} + \alpha_h(|\mathbf{q}|) e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_e}{2 m_X}\right)^2} \right) \\ & \times F(q_y, q_z) \left(a_{\mathbf{q}}^+ B_{K_i - q_x}^+ + a_{\mathbf{q}} B_{K_i + q_x}^+ \right) B_{K_i}. \end{aligned}$$

Nous pouvons remarquer qu'en raison du confinement, il n'y a conservation de l'impulsion que dans la direction libre x du fil, invariante par translation. L'absence de conservation de l'impulsion dans les directions perpendiculaires au fil donne lieu au facteur de forme $F(q_y, q_z)$, caractéristique du confinement latéral des porteurs.

Règle d'or de Fermi pour des excitons libres

La manière la plus simple de considérer l'effet de l'interaction exciton-phonon est de calculer les probabilités de transitions entre les états propres $|K_x\rangle$ de l'exciton libre. La règle d'or de Fermi nous donne la probabilité d'aller d'un état $|K_i, (n_{\mathbf{q}})\rangle$ vers les états $|K_f, (n'_{\mathbf{q}})\rangle$ de vecteur d'onde K_f , où $(n_{\mathbf{q}})$ désigne le facteur d'occupation des différents modes de phonons :

$$\frac{\hbar}{2\pi} \tau_{i, (n_{\mathbf{q}}) \rightarrow f} = \sum_{(n'_{\mathbf{q}})} |\langle K_i, (n_{\mathbf{q}}) | V_{exc-ph} | K_f, (n'_{\mathbf{q}}) \rangle|^2 \delta(E_{K_f, (n'_{\mathbf{q}})} - E_{K_i, (n_{\mathbf{q}})}).$$

La somme sur \mathbf{q} dans V_{exc-ph} compte en fait au plus un terme non nul, pour le vecteur d'onde pour lequel $n_{\mathbf{q}}$ varie d'une unité entre l'état initial et l'état final, alors que les autres nombres d'occupation $n_{\mathbf{q}' \neq \mathbf{q}}$ restent constants. La conservation de l'impulsion suivant x impose que le vecteur d'onde du phonon échangé ait pour composante $q_x = K_f - K_i$, et la conservation de l'énergie détermine l'énergie $E_f - E_i$ de ce phonon, et donc la composante normale du vecteur d'onde $\mathbf{q}_{\perp} = (q_y, q_z)$, dont la norme est telle que $\hbar c_{LA} \sqrt{q_x^2 + \mathbf{q}_{\perp}^2} = \pm(E_f - E_i)$:

$$q_x = K_f - K_i \quad (4.1)$$

$$|\mathbf{q}_{\perp}| = \sqrt{\left(\frac{E_f - E_i}{\hbar c_{LA}}\right)^2 - (K_f - K_i)^2}. \quad (4.2)$$

Les signes $+$ et $-$ correspondent au processus d'absorption et d'émission respectivement. $E_{i,f}$ désigne l'énergie cinétique de l'exciton le long du fil. Nous prenons pour masse $m_X = m_e + m_{h1} \approx 0,178 m_0$ (cf Sec. 1.4).

Tous les degrés de liberté du phonon ne sont cependant pas imposés par les règles de conservation, et l'angle polaire θ dans le plan (y, z) de la composante \mathbf{q}_{\perp} reste libre. Le réservoir de phonons est supposé à l'équilibre thermique à la température T , et est décrit par une statistique de Bose $n_B(E) = 1/(e^{E/k_B T} - 1)$. En moyennant sur cet ensemble statistique, nous effectuons une intégration sur la composante \mathbf{q}_{\perp} qui fait apparaître l'intégrale $I_{Def}(q_{\perp}) = \int_0^{2\pi} d\theta F^2(q_{\perp}, \theta)$, où F est toujours le facteur de forme, mais en coordonnées polaires cette fois-ci. Cette intégrale est le reflet de la conservation de l'impulsion perpendiculairement au fil, et décroît de 2π à 0 avec une largeur à mi-hauteur de

l'ordre de $L_y, L_z/2\pi$. En séparant les processus d'absorption et d'émission de phonons, on obtient :

$$\frac{\hbar}{2\pi \tau_{i \rightarrow f}^{abs,em}} = \frac{|E_f - E_i|^2}{8\pi^2 L_x \rho c_s^2 (\hbar c_{LA})^2} \left(D_e e^{-\left((K_f - K_i) a_{var} \frac{m_h}{2 m_X}\right)^2} + D_v e^{-\left((K_f - K_i) a_{var} \frac{m_e}{2 m_X}\right)^2} \right)^2 \times I_{Def} \left(\sqrt{\left(\frac{E_f - E_i}{\hbar c_{LA}}\right)^2 - (K_f - K_i)^2} \right) \begin{pmatrix} n_B(E_f - E_i) + 0 & \text{si abs} \\ 1 & \text{si em} \end{pmatrix},$$

Toutes les transitions ne sont pas possibles par l'interaction avec les phonons acoustiques. En particulier, pour l'état initial $K_i=0$, seules les transitions vers les états finaux de vecteur d'onde supérieur en norme à $q_0 = 2m_X c_{LA}/\hbar \approx 1,6.10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ sont permises. Ceci est schématisé sur la figure 4.17, où sont aussi représentées les probabilités de transitions depuis certains états initiaux. Nous pouvons remarquer que ces dernières dépendent essentiellement de la différence d'énergie entre états final et initial, et non du vecteur d'onde du phonon mis en jeu, comme le montre le caractère relativement symétrique des courbes dans le cas de l'état initial $K_i \neq 0$. D'autre part, l'énergie-seuil des transitions depuis l'état $K_i=0$ est $\hbar c_{LA} q_0 \approx 50 \mu eV$, très petite devant $k_B T$ dans les conditions expérimentales. Il faudrait descendre à des températures inférieures à $0,5 K$ pour que l'absorption de phonons soit totalement inhibée.

Couplage piézo-électrique

Sur la figure 4.17 sont aussi représentées les probabilités de transitions par émission et absorption de phonons par l'intermédiaire du couplage piézo-électrique. Elles ont été calculées de la même manière que dans le cas du potentiel de déformation, mais en substituant aux amplitudes $\alpha_{e,h}(\mathbf{q})$ leurs analogues $\beta_{e,h}^\sigma(\mathbf{q})$, qui dépendent qui plus est du vecteur polarisation ξ^σ du mode $\sigma = (LA, TA1, TA2)$ considéré. Ce couplage est décrit en détail par I.K. Oh et J. Singh [105]. Les amplitudes de l'interaction s'écrivent pour l'électron et le trou

$$\beta_e^\sigma(\mathbf{q}) = \frac{8\pi e e_{14}}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho c_\sigma |\mathbf{q}|V}} \frac{\xi_x^\sigma q_y q_z + \xi_y^\sigma q_z q_x + \xi_z^\sigma q_x q_y}{q^2} \quad (4.3)$$

$$\beta_h^\sigma(\mathbf{q}) = -\beta_e^\sigma(\mathbf{q}) \quad (4.4)$$

où $e_{14} \approx 0,16 C.m^{-2}$ est la constante piézo-électrique pour GaAs (Sec. 3.4.1) et la vitesse du son des modes transverses est $c_{TA1} = c_{TA2} = 3340 m.s^{-1}$ [102]. Les mêmes règles de sélection s'appliquent dans la règle d'or de Fermi, mais les intégrales sur le facteur de forme $F(q_y, q_z)$ sont différentes de $I_{Def}(q_\perp)$. La différence principale avec l'interaction par le potentiel de déformation réside dans le fait que les amplitudes d'interaction avec l'électron et le trou se compensent dans ce cas, alors qu'elles s'ajoutent pour le potentiel de déformation. Comme dans le cas de l'interaction avec les phonons optiques par le couplage de Fröhlich dans les semiconducteurs polaires [105], si les fonctions d'onde d'électron et de trou sont rigoureusement identiques, l'amplitude totale de l'interaction avec les excitons est nulle, alors qu'elle est comparable avec l'interaction par le potentiel de déformation pour les charges individuelles. Mais les masses de l'électron et du trou étant différentes, le terme

$$\left(e^{-\left((K_f - K_i) a_{var} \frac{m_h}{2 m_X}\right)^2} - e^{-\left((K_f - K_i) a_{var} \frac{m_e}{2 m_X}\right)^2} \right)$$

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

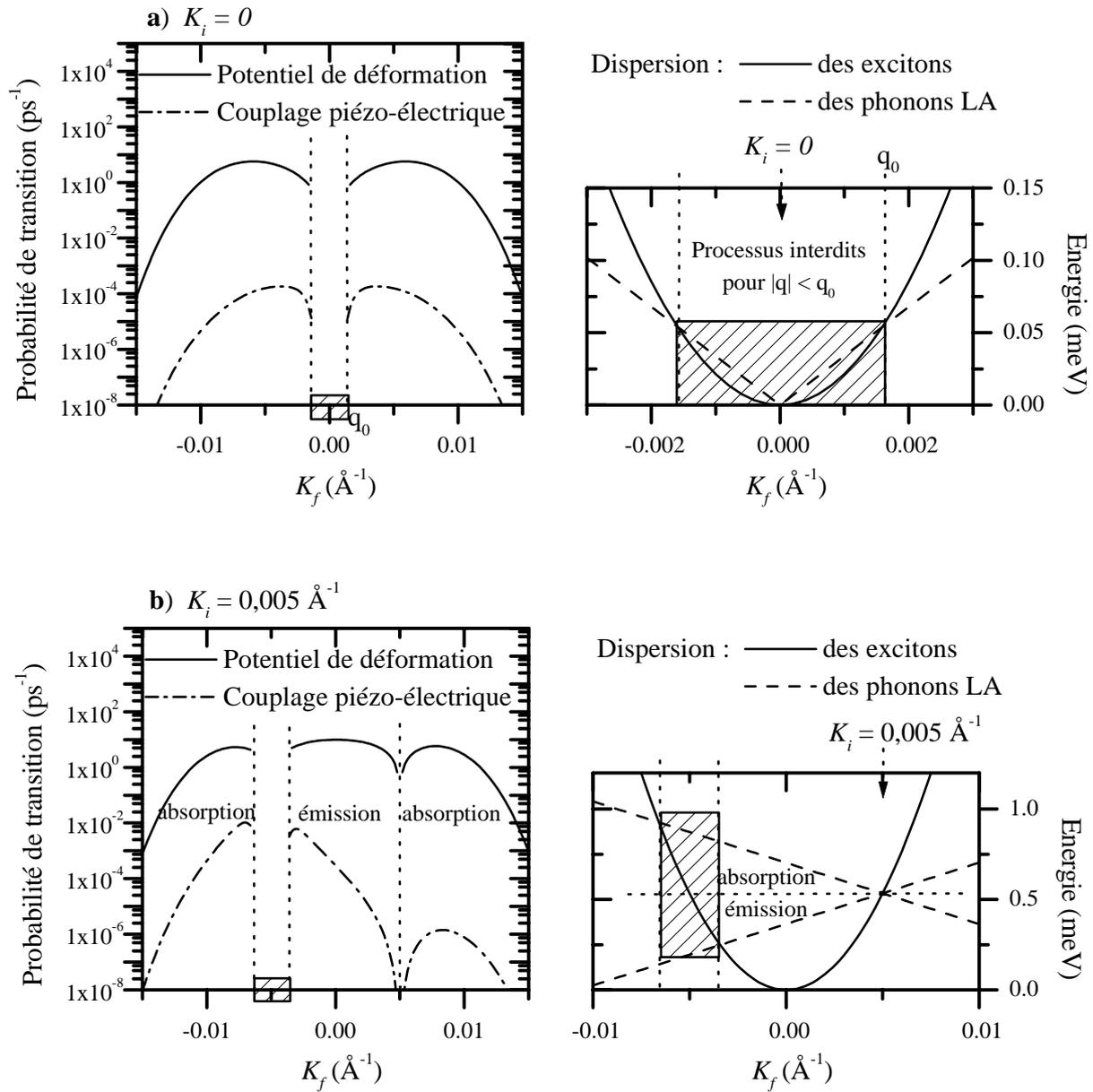


FIG. 4.17 – Dispersions des bandes d'exciton et de phonons, pour des transitions depuis deux états initiaux différents; probabilité d'absorption et d'émission de phonons associées, à une température de 10 K. Les zones hachurées représentent les processus interdits.

n'est pas nul.

Les résultats présentés sur la figure 4.17 sont la somme des contributions de chacun des trois modes de phonons acoustiques. Dans tous les cas considérés, en absorption comme en émission de phonons, ces processus sont au plus 100 fois moins efficaces que ceux impliquant le potentiel de déformation. Malgré la divergence en $1/\sqrt{q}$ de son amplitude, ce couplage reste donc négligeable dans notre système, quels que soient les états initial et final de l'exciton.

Règle d'or de Fermi pour des excitons localisés

Dans les fils quantiques en régime 0D, les excitons sont localisés dans des boîtes quantiques, et leurs états propres sont discrets. La probabilité de transition par interaction avec les phonons entre deux états excitoniques $|i\rangle$ et $|f\rangle$, de fonctions d'ondes ψ_i et ψ_f et d'énergies E_i et E_f , s'écrit alors

$$\begin{aligned} \frac{\hbar}{2\pi \tau_{i \rightarrow f}^{abs,em}} &= \frac{|E_f - E_i|^2}{8\pi^2 L_x \rho c_s^2 (\hbar c_{LA})^2} \left(n_B(|E_f - E_i|) + \begin{array}{l} 0 \text{ si abs} \\ 1 \text{ si em} \end{array} \right) \\ &\times \iint dK_x dK'_x \psi_f^*(K'_x) \psi_i(K_x) I_{Def} \left(\sqrt{\left(\frac{E_f - E_i}{\hbar c_{LA}} \right)^2 - (K'_x - K_x)^2} \right) \\ &\times \left(D_e e^{-\left((K'_x - K_x) a_{var} \frac{m_h}{2 m_X} \right)^2} + D_v e^{-\left((K'_x - K_x) a_{var} \frac{m_e}{2 m_X} \right)^2} \right)^2, \end{aligned}$$

A température finie, la probabilité d'absorption d'un phonon fait intervenir le facteur de Bose $n_B(E_f - E_i)$ (pour $E_f > E_i$), la probabilité d'émission $(1 + n_B(E_i - E_f))$ (pour $E_f < E_i$).

La probabilité d'émission d'un phonon entre deux états consécutifs d'une boîte quantique est représentée sur la figure 4.18, en fonction de la différence d'énergie entre les deux états, à une température de 10 K [62]. Elle a été calculée pour un fil en régime 0D, dans une boîte simple carrée de profondeur 9 meV, et différentes longueurs de manière à faire varier les différences d'énergies entre états. Les courbes associées aux transitions des couples d'états considérés sont superposées, montrant que le seul paramètre important est la différence d'énergie $E_f - E_i$. La relaxation est très efficace pour les énergies inférieures à 2 meV (temps caractéristique de l'ordre de 10 ps), et beaucoup plus lente au-delà de 3 meV (plus de 100 ps). Ceci devrait induire une inhibition de la relaxation par phonons, dite "effet Bottleneck" [99], dans les petites boîtes (de longueur inférieures à 300 Å typiquement), pour lesquels les écarts entre niveaux consécutifs sont supérieurs à 3 meV. Les résultats expérimentaux montrent cependant que même pour de tels écarts énergétiques, la relaxation reste rapide [52]. Les processus multi-phonons, non pris en compte dans notre modèle, doivent en effet être efficaces pour de grands écarts énergétiques, comme l'ont montré des travaux théoriques et expérimentaux dans les boîtes quantiques [107, 108], concernant les phonons acoustiques et optiques.

4.2.3 Elargissement homogène par interaction avec les phonons

Excitons libres - Fils quantiques en régime 1D

La connaissance des probabilités de transition par interaction avec les phonons acoustiques permet de calculer, par intégration sur les états excitoniques finals, la probabilité

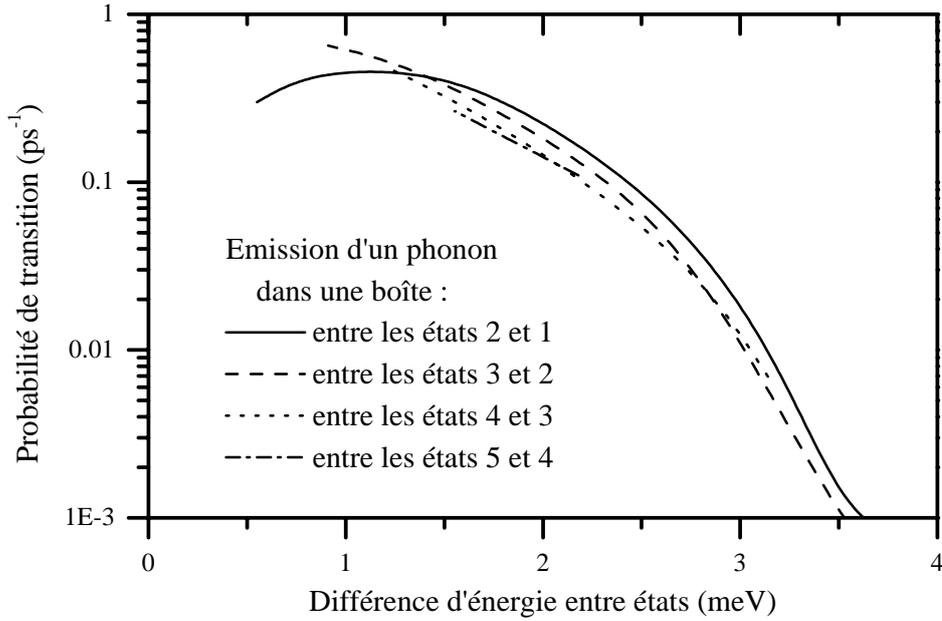


FIG. 4.18 – Probabilité d'émission de phonons acoustiques entre deux états consécutifs d'une boîte quantique dans un fil en régime $0D$, en fonction de leur séparation énergétique, à une température de 10 K .

totale d'absorption ou d'émission $1/\tau^{abs,em}(K_i)$ d'un phonon depuis un état excitonique initial K_i donné. La contribution à l'élargissement homogène de l'état K_i est donné par $\Gamma^{abs,em}(K_i) = \hbar/\tau^{abs,em}(K_i)$. Elle est représentée, en fonction de l'état initial, sur la figure 4.19. L'élargissement homogène de l'état radiatif $K_i=0$, qui est l'état de plus basse énergie, est celui qui détermine l'élargissement homogène de la transition observée en luminescence, et est indiqué par une flèche sur la courbe. Il est uniquement dû aux processus d'absorption de phonons, et vaut environ $60\ \mu\text{eV}$ à $T = 10\text{ K}$. Cela correspond à un temps caractéristique d'absorption de phonons court, de 10 ps . La contribution des processus d'émission est nulle pour les états tels que $|K_i| < q_0$, et maximale pour des états de grand vecteur d'onde ($K_i \approx 0,01\ \text{\AA}^{-1}$), dont l'énergie cinétique est d'environ 2 meV . Ce maximum correspond aux phonons de longueur d'onde comparable avec les extensions de fonction d'onde en jeu (a_{1D} , L_y et L_z), pour lesquels le couplage exciton-phonon est le plus efficace.

La dépendance en température de l'élargissement homogène de l'état radiatif $K_i=0$ est représenté sur la figure 4.20. Elle est linéaire à haute température, ce qui reflète la dispersion de l'énergie des phonons, choisie linéaire en \mathbf{q} . Le coefficient linéaire correspondant est de $12\ \mu\text{eV.K}^{-1}$, et est comparable aux mesures de mélange à 4 ondes et les résultats théoriques obtenus sur des fils InGaAs/GaAs [109]. A basse température ($T < 20\text{ K}$, dans l'encart), l'élargissement homogène est mieux décrit par une loi du type $a T/(e^{E_0/k_B T} - 1)$, avec une énergie d'activation $E_0 \approx 0,13\text{ meV}$ légèrement supérieure à $\hbar c_{LA} q_0 \approx 0,06\text{ meV}$. Dans ce dernier régime de température, l'énergie-seuil $\hbar c_{LA} q_0$, en-deçà de laquelle l'absorption de phonons est inhibée, joue un rôle sur $\Gamma(K_i=0)$, et c'est la population thermique $n_B(\hbar c_{LA} q_0)$ des phonons voisins de $q = q_0$ qui détermine l'élargissement homogène.

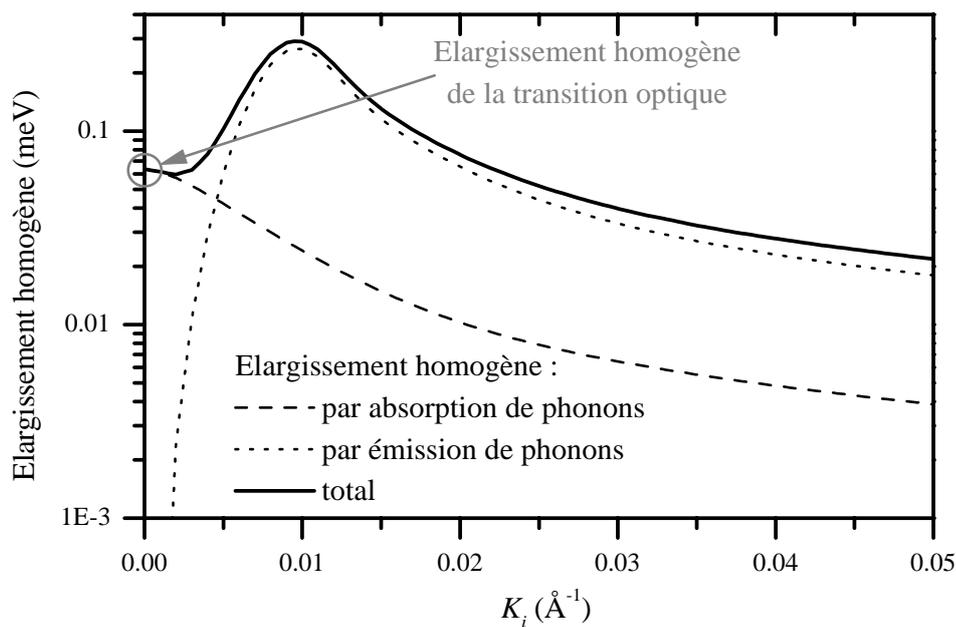


FIG. 4.19 – Contributions à l'élargissement homogène dues à l'absorption et l'émission de phonons acoustiques, à une température de 10 K.

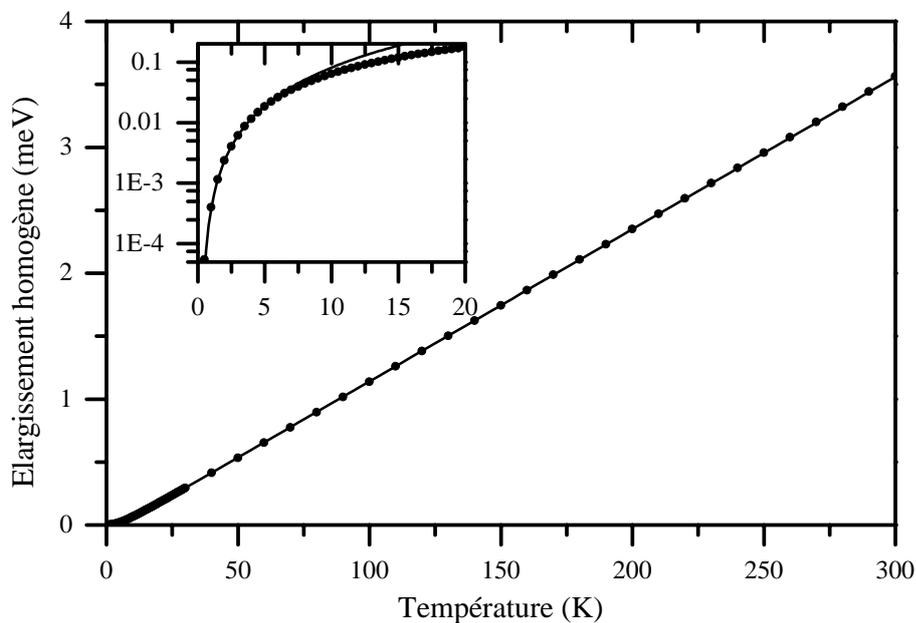


FIG. 4.20 – Contributions à l'élargissement homogène de l'état $K_i=0$ due à l'absorption de phonons acoustiques en fonction de la température (points); Ajustement par une loi d'activation thermique à basse température (dans l'encart), et par une loi linéaire à haute température (courbes).

Excitons localisés - Fils quantiques en régime 0D

Dans le cas des excitons localisés, l'élargissement homogène dû à l'interaction avec les phonons est obtenu en sommant les probabilités de transitions vers tous les autres états discrets. Il est représenté sur la figure 4.21 pour les 3 premiers états d'une boîte quantique de 9 meV de profondeur, dans un fil quantique en régime 0D, en fonction de la longueur L_x de la boîte le long de l'axe du fil, à une température de 10 K . Pour les boîtes de longueurs inférieures à 400 \AA , l'élargissement est très faible en raison du grand écart énergétique entre niveaux consécutifs. Pour les très petites boîtes, l'état fondamental de la boîte est très haut en énergie, proche des états délocalisés, et l'énergie de phonons en jeu redevient inférieure à 3 meV . Enfin, pour les boîtes d'extension moyenne à grande, l'élargissement homogène tend vers la valeur obtenue pour des excitons libres, soit $60 \mu\text{eV}$.

L'élargissement homogène est plus important pour les états excités car l'émission de phonons vers les états de plus basse énergie y contribue aussi. Ces états ne participent pas à la luminescence.

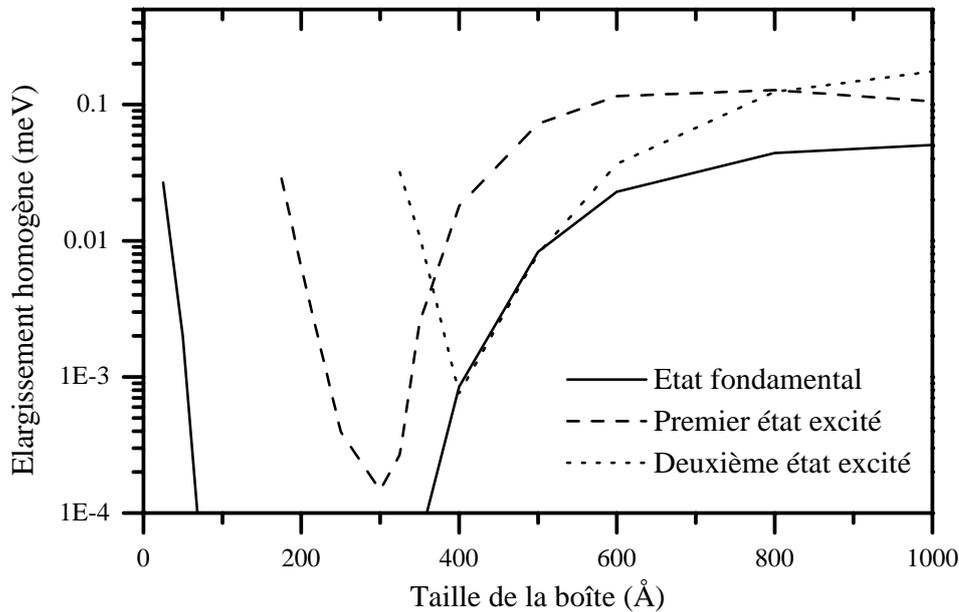


FIG. 4.21 – Contributions à l'élargissement homogène dues à l'absorption et l'émission de phonons acoustiques, à une température de 10 K , pour les 3 premiers états d'une boîte quantique de profondeur 9 meV et de longueur L_x , dans un fil quantique en régime 0D.

4.2.4 Les polarons

L'approche "règle d'or de Fermi" ne donne qu'un point de vue restrictif sur le rôle des phonons dans le système : ils apparaissent uniquement comme des échanges d'impulsion et d'énergie lors des transitions entre les états d'excitons, qui restent les états propres privilégiés. Mais du fait de l'interaction des excitons avec le continuum de phonons acoustiques, il se forme des états stationnaires mélangés, que nous appellerons polarons quel que soit le régime de couplage⁴. Les états excitoniques sont alors habillés d'un "nuage"

4. L'appellation polaron n'est parfois attribuée qu'aux états intriqués exciton-phonon, dans le régime de couplage fort.

de phonons. L'énergie de l'exciton est ainsi renormalisée par l'interaction avec les phonons. De plus, les états excitoniques non radiatifs possèdent alors, dans leur "nuage" de phonons, une composante non nulle en $K = 0$, et donc une faible force d'oscillateur : ils peuvent se recombinaison de manière radiative, au cours de processus assistés par les phonons. Par ailleurs, de récents travaux théoriques [110] et expérimentaux [111, 112] dans les boîtes quantiques ont montré que la durée de vie finie des phonons optiques dans le cristal permet aux polarons (ici en couplage fort) de relaxer par l'intermédiaire de leur composante phonon.

L'étude des polarons, et en particulier de la recombinaison assistée par phonons, a principalement été réalisée pour des états liés, dans des boîtes quantiques [113], des nanocristaux [114] ou sur des impuretés [98], pour lesquels l'interaction électron-phonon est relativement forte. D'un point de vue théorique, ce problème, appelé modèle d'Einstein ou de Huang-Rhys selon les communautés, est soluble de manière exacte [102, 115], en couplage faible comme en couplage fort, si l'on considère un unique état électronique discret interagissant avec un mode de phonons optiques, en faisant l'approximation que tous les phonons optiques ont une même énergie. L'interaction d'un état discret avec des phonons acoustiques est plus compliquée à traiter en raison du continuum de phonons en jeu, mais se résout dans le même cadre [113].

Dans les fils quantiques, l'interaction des phonons acoustiques avec un continuum d'excitons libres est pour sa part plus complexe. L'effet polaronique a principalement été étudié pour les gaz 1D d'électrons en interaction avec des phonons optiques ou acoustiques. La résonance forte, dite transition de Peierls, du gaz d'électrons avec les phonons de vecteur d'onde $2k_F$, double de celui des électrons du niveau de Fermi, modifie de manière importante les propriétés de relaxation et de transport du fil dopé [116, 117]. Le polaron formé sur un électron seul en couplage fort avec les phonons acoustiques a été étudié par Whitfield [118], dans le cas d'une bande de phonons 1D, c'est-à-dire pour des phonons confinés et non la bande de phonons 3D du matériau massif environnant. Son traitement, qui couvre les régimes de couplage faible et fort, s'applique donc uniquement aux fils quantiques suspendus ("free standing quantum wires") [119] et ne peut être repris dans notre cas.

Nous allons présenter dans cette section le traitement du couplage faible, perturbatif, et préciser ses limites de validité. Nous débuterons par le cas le plus simple, d'un exciton localisé dans un fil quantique en régime 0D, puis considérerons un exciton libre dans un fil quantique en régime 1D, pour lequel le modèle est plus complexe.

Excitons localisés - Fils quantiques en régime 0D

A température nulle Nous allons appliquer à un état discret d'exciton $|X\rangle$ la théorie de la perturbation au premier ordre dans le cas non dégénéré. A l'ordre 0 et à température nulle, l'exciton n'est pas intriqué avec les phonons, et est dans l'état $|X^0\rangle = |X, 0\text{ ph}\rangle$, d'énergie E^0 . Le terme du premier ordre étant nul, les fonctions d'onde et énergies perturbées s'écrivent en perturbation au deuxième ordre pour l'énergie :

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

$$|X^1\rangle = |X,0 ph\rangle + \sum_{(n_{\mathbf{q}}) \neq (0 ph)} \frac{\langle X,(n_{\mathbf{q}})|V_{exc-ph}|X,0 ph\rangle}{E^0 - (E^0 + \sum_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{q}} \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|)} |X,(n_{\mathbf{q}})\rangle \quad (4.5)$$

$$= |X,0 ph\rangle - \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} \frac{M_{\mathbf{q}}}{\hbar c_{LA} |\mathbf{q}|} |X,1 ph \mathbf{q}\rangle$$

$$E^1 = E^0 - \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{\hbar c_{LA} |\mathbf{q}|}. \quad (4.6)$$

$(n_{\mathbf{q}})$ désigne comme précédemment les facteurs d'occupation des phonons. Seuls les états finals possédant un unique phonon ont un élément de matrice non nul, qui vaut

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{q}} &= \langle X,1 ph \mathbf{q} | V_{exc-ph} | X,0 ph \rangle \\ &= \left(\alpha_e(|\mathbf{q}|) e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_h}{2 m_X}\right)^2} + \alpha_h(|\mathbf{q}|) e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_e}{2 m_X}\right)^2} \right) F(\mathbf{q}_{\perp}) \int dK_x \psi^*(K_x - q_x) \psi(K_x), \end{aligned}$$

où ψ désigne la fonction d'onde de l'exciton localisé dans la direction x du fil et F le facteur de forme. Notons que ces états ne sont pas normés.

La constante du couplage g mesure le poids du “nuage polaronique” dans la fonction d'onde perturbée [115]:

$$\begin{aligned} g &= \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} |\langle X^1 | X,1 ph \mathbf{q} \rangle|^2 \quad (4.7) \\ &= \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{(\hbar c_{LA} |\mathbf{q}|)^2} \\ &= \langle X^1 | X^1 \rangle - 1. \end{aligned}$$

Elle mesure le nombre moyen de phonons couplés à l'exciton. La condition de couplage faible s'écrit donc $g \ll 1$, et correspond au cas où l'exciton est essentiellement habillé par des composantes à un seul phonon. Lorsque g est de l'ordre de 1 ou supérieur, le couplage est fort et l'approche perturbative n'est plus valable.

Le facteur de couplage g et la correction polaronique à l'énergie de l'exciton $E^1 - E^0$ sont représentés sur la figure 4.22 pour des états localisés de fonction d'onde gaussienne, en fonction de la taille du défaut le long de l'axe du fil. Le couplage est d'autant plus fort que l'exciton est localisé, comme l'ont montré les études sur les boîtes quantiques et les nanocristaux [48]. Pour une boîte quantique de longueur 500 Å, caractéristique de nos fils quantiques en régime 0D, le facteur de couplage vaut à température nulle environ 4%, mais atteint 8% pour une boîte de 200 Å. La correction à l'énergie est faible, de l'ordre de 50 à 100 μeV . Elle est forcément de signe négatif, tous les états intermédiaires intervenant dans la perturbation étant d'énergies plus élevées que l'état initial. Notons que notre modèle, limité à un seul état discret, n'est plus valide pour les boîtes de longueur supérieure à 5000 Å, dans lesquels les états deviennent très rapprochés en énergie et doivent tous être pris en considération. Nous utiliserons alors l'approche opposée, d'un continuum d'excitons dans un fil, pour étudier les propriétés de l'exciton dans ce régime.

Luminescence des polarons Le polaron peut se recombiner de manière radiative par chacune de ses composantes. La composante sans phonon $|X,0 ph\rangle$ de la fonction d'onde perturbée donne lieu à un photon d'énergie E^1 (raie zéro-phonon), et les autres

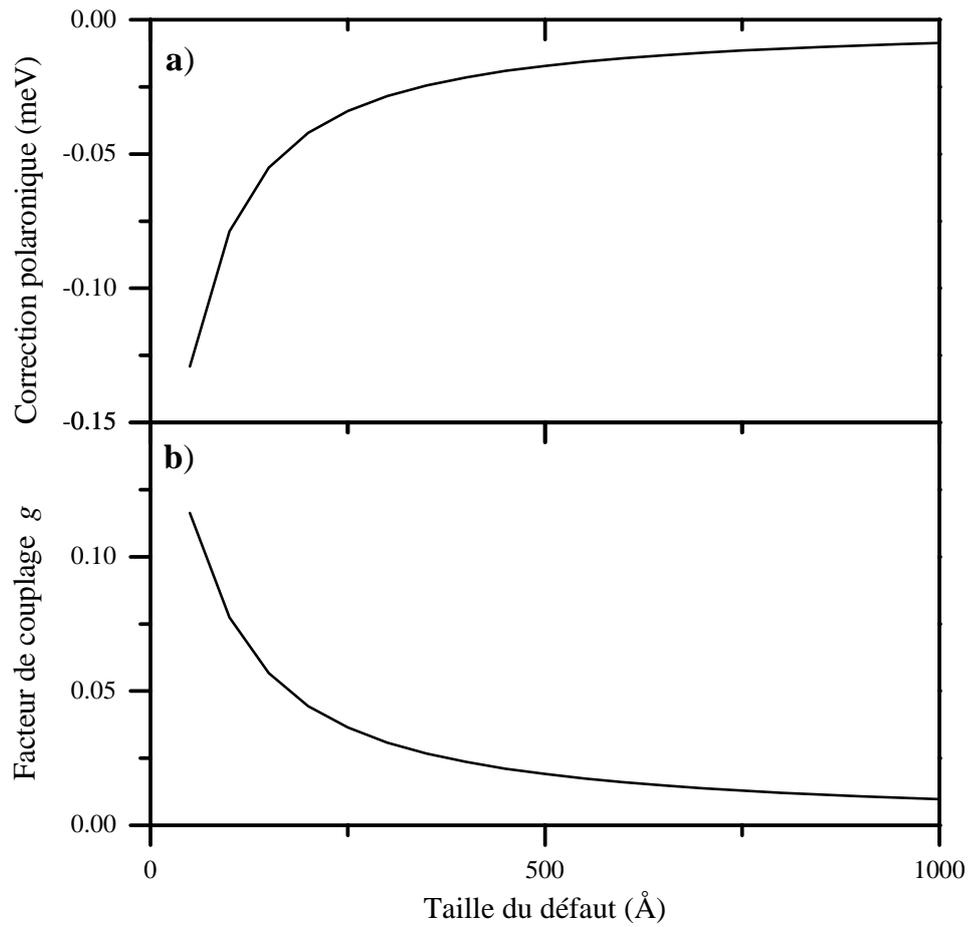


FIG. 4.22 – (a) Correction polaronique et (b) facteur de couplage dans un fil quantique en régime 0D, en fonction de la taille du défaut et à température nulle.

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

composantes se recombinent en un phonon d'énergie $\hbar c_{LA}|\mathbf{q}|$ et un photon d'énergie $E^1 - \hbar c_{LA}|\mathbf{q}|$ (raie de luminescence assistée par émission de phonons).

L'interaction avec les phonons ne contribue donc pas seulement au déphasage des excitons, et à l'élargissement homogène de la raie de luminescence (déphasage "pur"). Elle donne aussi lieu à des "ailes" visibles autour de la raie, associées aux processus de recombinaison assistée par absorption et émission de phonons, sur les flancs haute et basse énergie de la raie zéro-phonon respectivement. Nous verrons que la recombinaison assistée par absorption de phonon n'a lieu qu'à température finie.

Ce phénomène est bien connu dans le cas des phonons optiques, qui ont en première approximation une relation de dispersion plate. Les répliques-phonons sont des pics fins, séparés de la raie zéro-phonon de l'énergie du phonon optique, comme le montre la figure 4.23, qui représente le spectre à température nulle d'un exciton sur un état discret, en interaction avec une bande de phonons optiques ayant tous la même énergie $\hbar\omega_0$, dans le cas d'un couplage "assez" faible ($g = 0,5$) et celui d'un couplage fort ($g = 5,5$) [115]. L'exemple du modèle d'Einstein, dans lequel le couplage est traité à tous les ordres, nous montre les propriétés importantes de la recombinaison assistée par les phonons. g mesure le nombre moyen de phonons impliqués dans les processus de recombinaison. La raie zéro-phonon est déplacée à l'énergie $-g\hbar\omega_0$, et son intensité est atténuée d'un facteur e^{-g} par rapport à celle d'un exciton pur, lorsque le couplage est fort. Dans le cadre du modèle perturbatif que nous avons décrit dans ce paragraphe, la force d'oscillateur est proportionnelle, en prenant soin de normer l'état perturbé, à $|\langle X^1|X,0\ ph\rangle|^2/\langle X^1|X^1\rangle = 1/(1+g)$, donnant pour les phonons acoustiques le même comportement dans la limite des couplages faibles que le facteur e^{-g} obtenu à tous les ordres pour les phonons optiques. Dès $g = 0,5$, la contribution des processus à deux phonons et plus ne peut être entièrement négligée.

Dans le cas des phonons acoustiques, la contribution à la luminescence due à la recombinaison assistée par phonons est dispersée spectralement, et est plus difficile à identifier dans les spectres. Elle a récemment été mise en évidence en μ -PL sur des boîtes quantiques CdTe [113], les raies de μ -PL étant la somme d'un pic zéro-phonon fin, élargi de manière homogène, et d'un pic d'une largeur de l'ordre de 1 meV dont l'intensité croît avec la température, associé à la recombinaison assistée par phonons. Nous n'avons pas observé une telle base large autour des pics fins de μ -PL lorsque la température augmente, mais plutôt la montée d'un fond sur l'ensemble du spectre. Ceci est vraisemblablement dû au nombre trop important de pics présents dans les spectres, qui nous empêche d'isoler la contribution de l'un d'entre eux. Nous ne sommes donc pas intéressé du point de vue théorique au spectre de recombinaison assistée par phonons, mais uniquement à la perte de force d'oscillateur de la transition zéro-phonons, qui vaut comme dans le cas des phonons optiques $1/(1+g)$ dans notre modèle, et peut être extrapolée à e^{-g} lorsque le couplage devient fort, même si cette extrapolation n'est pas rigoureuse dans notre cas et est spécifique aux polarons optiques.

A température finie Le but de cette étude est avant tout de comprendre la dépendance en température des spectres de μ -PL observés, et nous invite à étendre notre modèle au cas des températures finies. L'état initial peut alors avoir une composante phonon, les états $|X,(n_{\mathbf{q}})\rangle$ étant peuplés thermiquement. Les processus d'absorption de phonons contribuent donc aussi dans l'équation 4.5.

Notre modèle ne prend en compte que les processus impliquant un seul phonon. L'effet de la température se traduit donc simplement par la présence de termes multiplicatifs

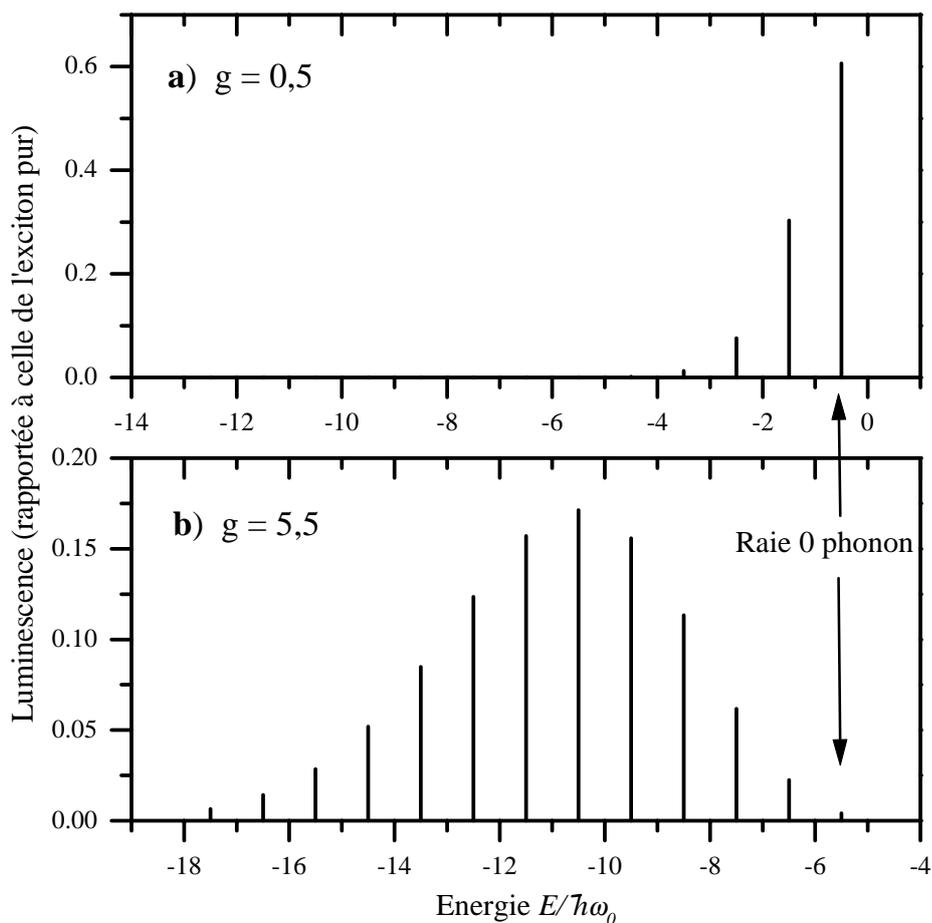


FIG. 4.23 – Spectre de recombinaison assistée par émission de phonons optiques d'énergie $\hbar\omega_0$, à température nulle, d'après [115]: (a) en couplage "assez" faible ($g = 0,5$); (b) en couplage fort ($g = 5,5$).

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

dans l'intégrale égaux à $1 + n_B(\hbar c_{LA}|\mathbf{q}|)$ pour les processus d'émission et $n_B(\hbar c_{LA}|\mathbf{q}|)$ pour les processus d'absorption. La correction polaronique en énergie associée à chacun des processus est représentée à une température de 10 K sur la figure 4.24, analogue à la figure 4.22. Contrairement au cas des processus d'émission, la correction associée à l'absorption de phonons est de signe positif, car l'état initial $|X,1\text{ ph } \mathbf{q}\rangle$ a une énergie plus élevée que l'état intermédiaire $|X,0\text{ ph}\rangle$. La contribution des processus d'absorption fait intervenir le facteur $n_B(E)$ et reste inférieure à celle des processus d'émission, dont le facteur multiplicatif est $1 + n_B(E)$.

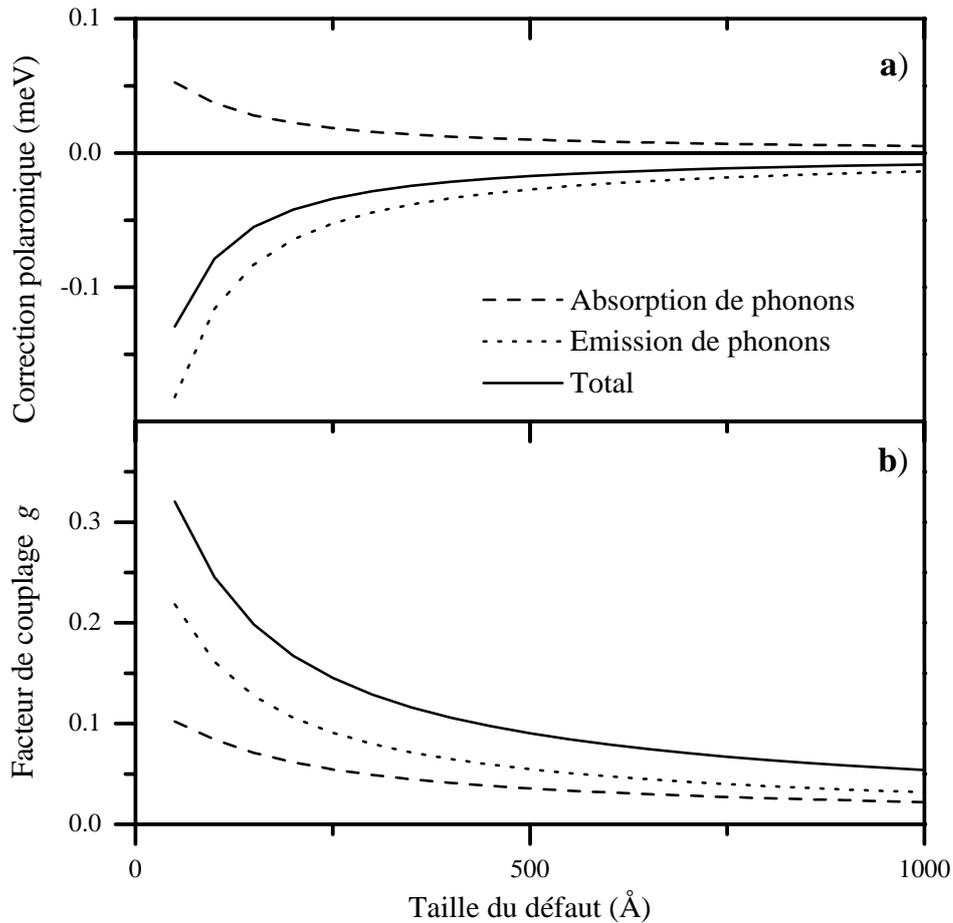


FIG. 4.24 – (a) Correction polaronique et (b) facteur de couplage dans un fil quantique en régime $0D$, en fonction de la taille du défaut et à $T = 10\text{ K}$.

La figure 4.25 présente la dépendance en température de la correction polaronique à l'énergie d'un exciton localisé dans un défaut de 200 Å , décomposée en ses parties associées à l'émission et l'absorption de phonons. Ces deux derniers termes sont linéaires en température au-delà de $T = 10\text{ K}$, et leur somme est constante, de l'ordre de $100\text{ }\mu\text{eV}$. Le coefficient de couplage g est aussi représenté, pour ce même état, linéaire au-delà de 10 K lui-aussi. Il vaut environ $0,2$ à $T = 10\text{ K}$, et dépasse 1 à 50 K . L'approximation de couplage faible doit être remise en cause au-delà de 20 K , où $g \approx 0,5$. L'intensité relative de la transition zéro-phonon, $1/(1+g)$, est déduite de l'expression de la force d'oscillateur, et n'est valide que dans la limite des couplages faibles car elle ne tient compte que des processus à un phonon. Au-delà de 20 K , on s'attend à ce que l'intensité relative de la raie zéro phonon diminue plus rapidement que $1/(1+g)$ en raison du couplage fort.

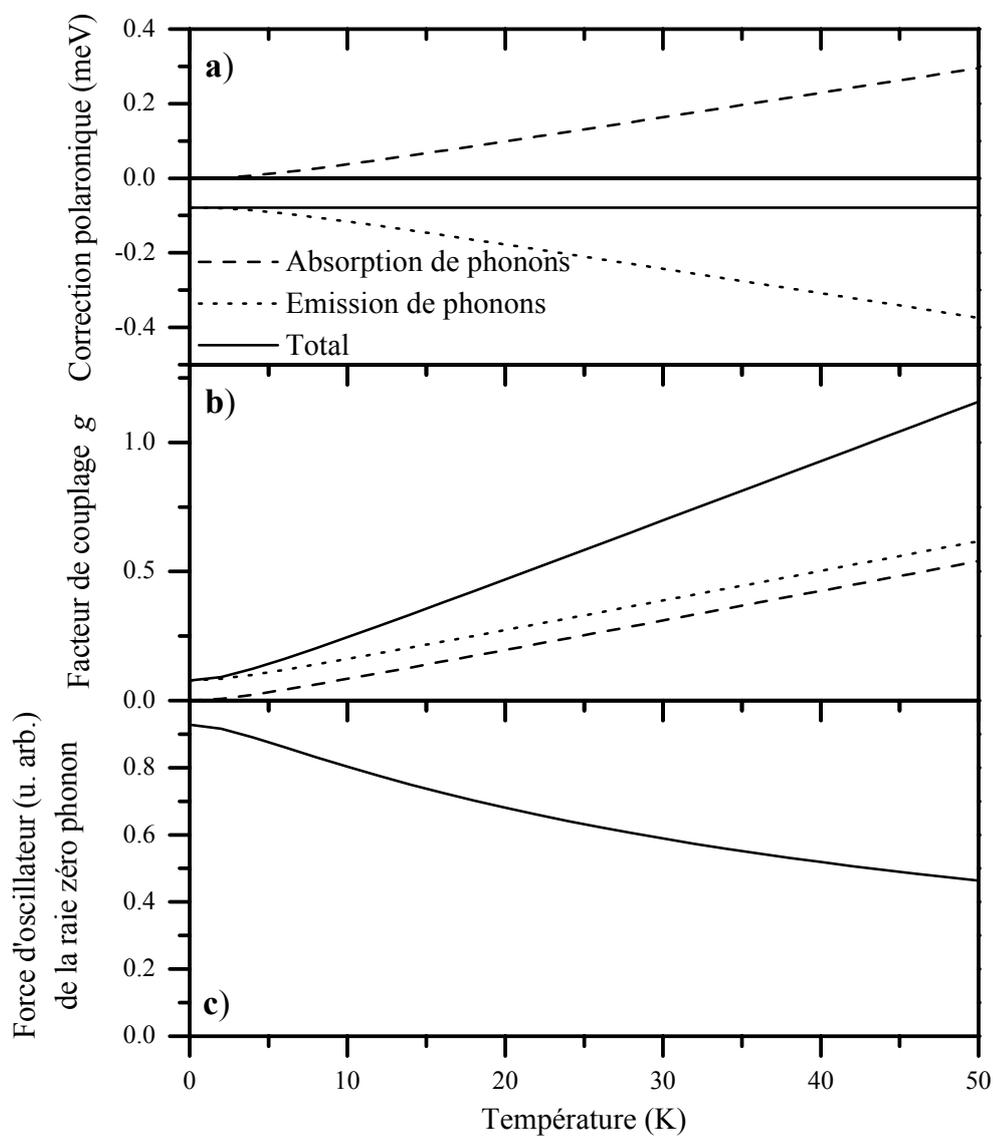


FIG. 4.25 – (a) Correction polaronique à l'énergie d'un exciton localisé dans un défaut de 200 Å, en fonction de la température; (b) Facteur de couplage; (c) force d'oscillateur de la transition zéro-phonon.

Excitons libres - Fils quantiques en régime 1D

Dans le cas d'un exciton libre dans un fil quantique en régime 1D, le traitement rigoureux du polaron est plus complexe en raison de l'interaction de deux continums, celui des excitons et celui des phonons. Comme dans le cas des excitons localisés, le polaron sera construit tout d'abord à température nulle, en perturbation au deuxième ordre, en ne faisant apparaître que des composantes à un seul phonon. Nous vérifierons dans quelles limites le couplage exciton-phonon est faible, validant notre approche. L'effet de la température finie sera ensuite intégré, toujours dans le cadre du couplage faible.

A température nulle La théorie de la perturbation au deuxième ordre pour l'énergie dans le cas non dégénéré nous donne les fonctions d'onde et énergies perturbées d'un état d'exciton pur $|K_i^0\rangle = |K_i, 0 ph\rangle$, d'énergie $E_i^0 = \hbar^2 K_i^2/2m_X$:

$$\begin{aligned} |K_i^1\rangle &= |K_i, 0 ph\rangle + \sum_{K_f, (n_{\mathbf{q}}) \neq K_i, 0 ph} \frac{\langle K_f, (n_{\mathbf{q}}) | V_{exc-ph} | K_i, 0 ph \rangle}{E_i^0 - E_f^0 - \sum_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{q}} \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|} |K_f, (n_{\mathbf{q}})\rangle \quad (4.8) \\ &= |K_i, 0 ph\rangle + \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} \frac{M_{\mathbf{q}}}{E_i^0 - E_f^0 - \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|} |K_i - q_x, 1 ph \mathbf{q}\rangle \\ E_i^1 &= E_i^0 + \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{E_i^0 - E_f^0 - \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|}. \quad (4.9) \end{aligned}$$

Notons que les états excitoniques $|K_i\rangle$ et $|-K_i\rangle$ sont dégénérés en énergie, mais qu'ils ne sont pas couplés par l'interaction avec les phonons (cf Fig. 4.17). Seuls les états intermédiaires possédant un unique phonon et satisfaisant à la règle de conservation de l'impulsion suivant x ont un élément de matrice non nul. Celui-ci est réel, indépendant de K_i et vaut

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{q}} &= \langle K_i - q_x, 1 ph \mathbf{q} | V_{exc-ph} | K_i, 0 ph \rangle \\ &= \left(\alpha_e(|\mathbf{q}|) e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_h}{2 m_X}\right)^2} + \alpha_h(|\mathbf{q}|) e^{-\left(q_x a_{var} \frac{m_e}{2 m_X}\right)^2} \right) F(\mathbf{q}_{\perp}). \end{aligned}$$

La constante du couplage g peut être calculée, de manière similaire au cas d'un état discret d'exciton, à partir de l'équation 4.8 :

$$g_{K_i} = \sum_{q_x, \mathbf{q}_{\perp}} \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{(E_i^0 - E_f^0 - \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|)^2} \quad (4.10)$$

$$= \langle K_i^1 | K_i^1 \rangle - 1. \quad (4.11)$$

Elle dépend de l'état K_i considéré, et est égale à environ 0,04 pour $K_i=0$ à température nulle. Le couplage peut donc être considéré comme faible, ce qui justifie l'approche perturbative employée et la restriction aux processus à un seul phonon.

Le caractère non-dégénéré des états $|K_i, 0 ph\rangle$ et $|K_i - q_x, 1 ph \mathbf{q}\rangle$ en jeu n'est cependant pas garanti, comme c'est le cas dans les systèmes localisés où les états initial et final d'exciton sont égaux. La non-dégénérescence est vérifiée si pour tous les phonons \mathbf{q} , $\hbar^2 K_i^2/2m_X \neq \hbar^2 (K_i - q_x)^2/2m_X + \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|$, c'est-à-dire uniquement pour les excitons de vecteurs d'onde K_i inférieur en norme à $q_0/2$. La théorie de perturbation non-dégénérée ne peut donc en toute rigueur s'appliquer dans notre cas qu'aux états de bas de bande, et est en particulier valide pour l'état radiatif $K_i=0$.

Pour contourner ce problème, nous pouvons considérer l'équation 4.9 sous un angle différent, en tenant compte du temps de cohérence fini des excitons. Dans le formalisme des fonctions de Green, une équation similaire est en effet obtenue, dans laquelle l'énergie des excitons est remplacée par $E + i\Gamma$ où $\Gamma = 1/T_2$ est l'élargissement homogène de l'exciton. Le temps de cohérence T_2 est ici dû aux processus de déphasage autres que l'interaction avec les phonons. En vertu de la formule $\frac{1}{x-x_0+i\epsilon\rightarrow 0} = pp\frac{1}{x-x_0} - i\pi\delta(x-x_0)$, l'énergie perturbée s'écrit donc dans la limite $\epsilon \rightarrow 0$ comme la somme d'une partie réelle égale à la partie principale de l'intégrale 4.9⁵, qui ne tient pas compte des termes résonants et renormalise l'énergie de l'exciton, et d'une partie imaginaire, due uniquement aux termes résonants et égale au déphasage obtenu par la règle d'or de Fermi au paragraphe précédent. Ceci est valide même dans le cas où il existe des états intermédiaires dégénérés avec l'état initial. Les fonctions de Green permettent de perfectionner ce type de raisonnements, classiques dans le calcul de la self-énergie d'un système par exemple [115].

La correction polaronique à l'énergie (partie réelle de la self-énergie) est représentée, pour tous les états initiaux K_i et à température nulle, sur la figure 4.26. L'élargissement homogène obtenu par la règle d'or de Fermi, et correspondant à la partie imaginaire de l'énergie calculée en perturbation, est rappelé. La correction réelle est de l'ordre de $70 \mu eV$ pour l'état radiatif $K_i = 0$. Elle est de signe négatif au voisinage de $K_i = 0$, comme attendu pour une interaction avec des états d'énergie $|K_i - q_x, 1 ph \mathbf{q}\rangle$ plus élevée que celle de l'état $|K_i - q_x, 0 ph\rangle$ initial. Elle s'annule en $K_i \approx 0,12 \text{ \AA}^{-1}$, au voisinage du maximum de l'élargissement homogène, ce qui correspond à des phonons de longueur d'onde comparable aux extensions L_y, L_z et a_{1D} de la fonction d'onde de l'exciton et pour lesquels l'interaction est maximale. Nous vérifions qu'elle est petite devant l'énergie cinétique des excitons, ce qui valide notre approche perturbative.

Luminescence des polarons L'équation 4.8 nous montre que tous les polarons $|K_i^1\rangle$ ont une composante non nulle en $K_f = 0$, due à l'interaction avec le phonon acoustique de vecteur d'onde $q_X = K_i$. La force d'oscillateur étant proportionnelle au carré de la composante en $K = 0$ (Sec. 1.5.1), tous les polarons peuplés thermiquement contribuent donc à la luminescence. Lors de leur recombinaison, le polaron donne lieu à un phonon de vecteur d'onde \mathbf{q} dont la composante suivant l'axe du fil est $q_X = K_i$, ainsi qu'un photon d'énergie $E_i^1 - \hbar c_{LA}|\mathbf{q}|$. Le spectre de luminescence comporte donc aussi, comme dans le cas des excitons localisés, des "ailes" visibles autour de la raie zéro-phonon, associées aux processus de recombinaison assistée par absorption et émission de phonons, sur les flancs haute et basse énergie de la raie zéro-phonon respectivement.

Pour des excitons libres, le calcul du spectre de luminescence tenant compte des recombinaisons assistées par phonons n'est pas réalisable dans notre modèle. Notre traitement perturbatif n'est en effet correct que pour les excitons de vecteur d'onde $|K_i| < q_0/2$, d'énergie inférieure à $60 \mu eV$. La force d'oscillateur de ces états, et le spectre associé, peuvent être facilement évalués, mais les états de plus grand vecteur d'onde contribuent aussi et ne peuvent être pris en considération de manière rigoureuse. Nous avons par contre accès de manière exacte à l'intensité relative du pic zéro-phonon dans le spectre de luminescence. La force d'oscillateur est en effet proportionnelle au carré de la projec-

5. L'intégrale sur \mathbf{q} est triple, et la valeur principale est prise lors de l'intégration sur q_\perp , le pôle étant la valeur de q_\perp qui annule le dénominateur d'énergie, lorsqu'il existe.

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

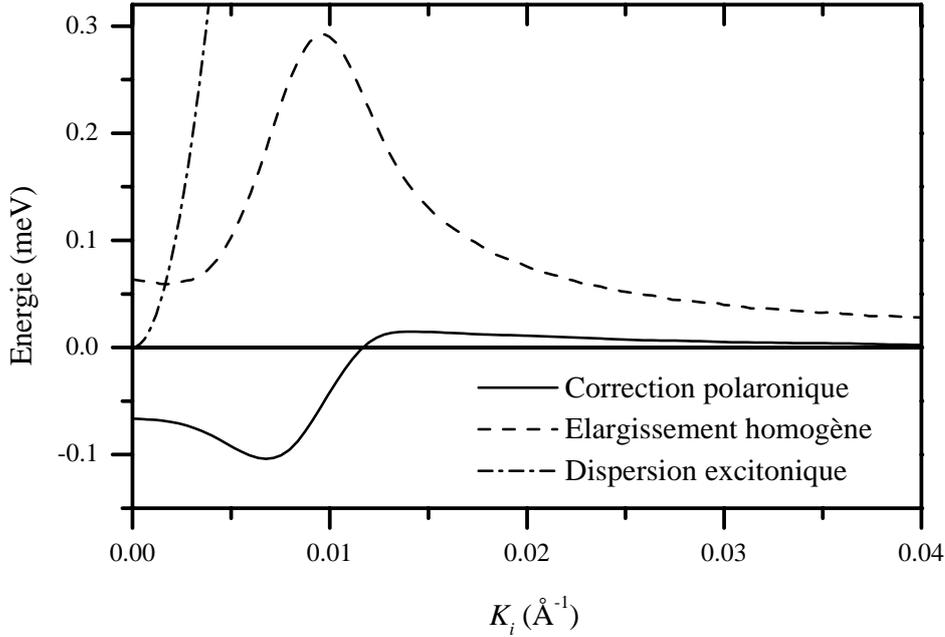


FIG. 4.26 – Correction polaronique à l'énergie et élargissement homogène pour un exciton libre, à température nulle. La dispersion de l'exciton $\hbar^2 K^2/2m_X$ est rappelée pour comparaison.

tion sur $K=0$ des états, et vaut

- pour l'exciton radiatif $K_i=0$:

$$\left| \langle K=0, 0 \text{ ph} | K_i^1=0 \rangle \right|^2 / \langle K_i^1 | K_i^1 \rangle = 1/(1 + g_{K_i=0})$$

- pour les excitons non radiatifs $K_i \neq 0$:

$$\left| \langle K=0, 0 \text{ ph} | K_i^1 \rangle \right|^2 / \langle K_i^1 | K_i^1 \rangle = \left(\sum_{q_x=K_i, q_\perp} \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{(E_i^0 - E_f^0 - \hbar c_{LA} |\mathbf{q}|)^2} \right) / (1 + g_{K_i}).$$

Dans la limite des couplages faibles, nous retrouvons donc la règle de somme de la force d'oscillateur : la somme sur tous les états des carrés des projections sur $K=0$ est égale à 1. L'intensité de la raie zéro-phonon apparaît donc comme proportionnelle à $1 - g_{K=0}$, et l'intensité intégrée de la luminescence assistée par phonons, obtenue en sommant tous les autres termes, est proportionnelle à $g_{K=0}$. Nous pouvons en déduire qu'à température nulle, la luminescence assistée par phonons représente 4% de la luminescence totale. Ce raisonnement étant basé sur le calcul de la force d'oscillateur de l'état radiatif et sur la règle de somme, il est valide dans la limite des couplages faibles, même si une partie de la luminescence assistée par phonons est émise par des polarons dont notre approche ne permet pas a priori de calculer la force d'oscillateur individuellement.

A température finie A température finie, les processus d'absorption de phonons contribuent aussi dans l'équation 4.8. Pour tout vecteur d'onde K_i , il existe un phonon tel que l'état initial $|K_i, 1 \text{ ph } \mathbf{q}\rangle$ soit dégénéré en énergie avec l'état intermédiaire $|K_i - q_x, 0 \text{ ph}\rangle$. La théorie de perturbation non dégénérée utilisée n'est donc a priori pas adaptée à l'étude des processus d'absorption de phonons. Comme précédemment, nous

pouvons cependant calculer la valeur principale de l'intégrale en jeu dans la correction énergétique.

D'autre part, notre modèle ne prend en compte que les processus impliquant un seul phonon. L'effet de la température se traduit donc simplement par la présence de termes multiplicatifs dans l'intégrale égaux à $1 + n_B(\hbar c_{LA}|\mathbf{q}|)$ pour les processus d'émission et $n_B(\hbar c_{LA}|\mathbf{q}|)$ pour les processus d'absorption. La correction polaronique en énergie associée à chacun des processus est représentée à une température de 10 K sur la figure 4.27, analogue à la figure 4.26. Contrairement au cas des processus d'émission, la correction associée à l'absorption de phonons est de signe positif au voisinage de $K_i = 0$, car l'état initial $|K_i, 1\text{ ph } \mathbf{q}\rangle$ a une énergie plus élevée que les états intermédiaires $|K_i + q_x, 0\text{ ph}\rangle$. La contribution des processus d'absorption reste, à cette température, très inférieure à celle des processus d'émission. En effet, le dénominateur d'énergie est $E_f - E_i - \hbar c_{LA}|\mathbf{q}|$ pour les processus d'émission et $E_f - E_i + \hbar c_{LA}|\mathbf{q}|$ pour ceux d'absorption, qui sont beaucoup moins efficaces. Ce n'était pas le cas pour des excitons localisés, pour lesquels $E_f^0 = E_i^0$, et le rapport entre les deux corrections était déterminé uniquement par $(1 + n_B(E))/n_B(E)$.

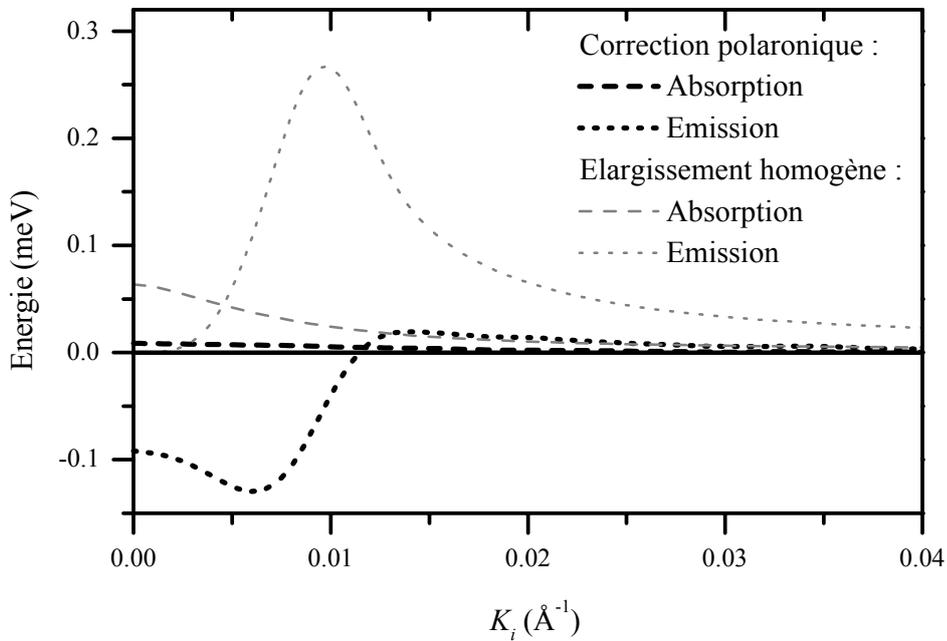


FIG. 4.27 – Correction polaronique à l'énergie et élargissement homogène, associés aux processus d'absorption et d'émission de phonons acoustiques, à $T = 10\text{ K}$.

La figure 4.28 présente la dépendance en température de la correction polaronique de l'état radiatif $K_i = 0$, décomposée en ses parties associées à l'émission et l'absorption de phonons. Ces corrections sont linéaires en température au-delà de $T = 10\text{ K}$, et suivent une évolution similaire à celle de l'élargissement radiatif (voir Fig. 4.20). A la différence du polaron construit sur des états localisés d'excitons, la somme des deux corrections associées aux processus d'émission et d'absorption de phonons n'est pas indépendante de la température, car les processus d'absorption sont moins efficaces que ceux d'émission. Le facteur de couplage g_{em} associé aux seuls processus d'émission est aussi représenté, pour ce même état $K_i = 0$, et est linéaire au-delà de 10 K lui-aussi. Le facteur g_{abs} ne peut être calculé dans le cadre de notre modèle pour les processus d'absorption de phonons, en raison de l'existence des termes résonants, mais d'après la comparaison des corrections

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

polaroniques associées aux deux types de processus, il est vraisemblablement plus petit que g_{em} . g_{em} vaut environ 0,07 à $T = 10 K$, et 0,3 à $T = 50 K$ où l'approximation de couplage faible doit être remise en cause. Ce coefficient nous renseigne aussi sur la proportion de recombinaisons assistées par émission de phonons, qui est de $1 - 1/(1 + g_{em}) \approx 15\%$ à $T = 30 K$. En tenant compte des processus d'absorption de phonons, nous pouvons estimer la réduction de la force d'oscillateur de la transition zéro-phonon à environ 20 – 25% à $T = 30 K$, lorsque seuls les processus à un phonon sont pris en compte.

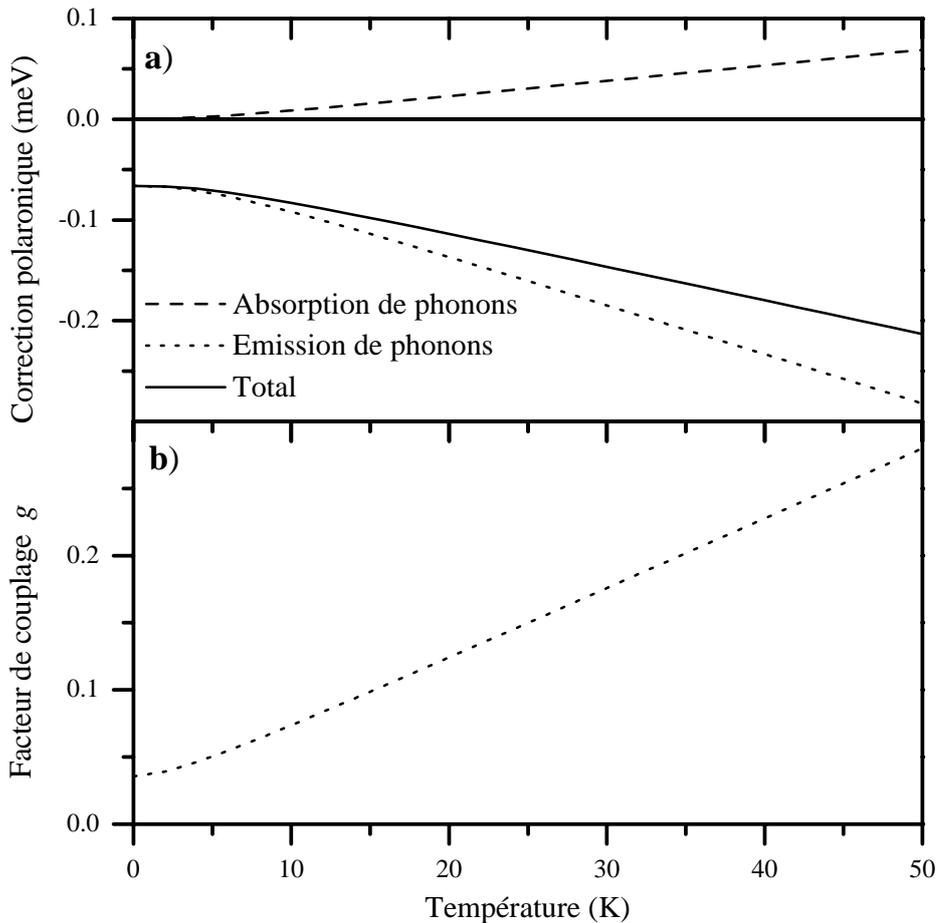


FIG. 4.28 – Correction polaronique à l'énergie de l'état radiatif $K_i=0$ en fonction de la température.

4.2.5 Discussion

L'interaction des excitons avec les phonons acoustiques se traduit donc à basse température par plusieurs effets que nous avons évalués.

L'élargissement homogène des transitions excitoniques est dû à tous les processus de déphasage de l'exciton, les principaux mécanismes intrinsèques étant la recombinaison radiative ($\hbar/\tau_{rad} \approx 2 \mu eV$), l'interaction avec les phonons, et la relaxation de spin, qui est moins efficace que l'interaction avec les phonons. Il apparaît donc que la contribution la plus importante est l'interaction avec les phonons, que nous avons calculée en écrivant les probabilités de transitions dues aux phonons acoustiques par la règle d'or de Fermi.

Par ailleurs, nous avons observé dans les spectres de μ -PL la disparition des pics fins au profit d'une raie large dans les fils quantiques des deux régimes 0D et 1D, entre 10 et 30 K. Cela nous a amenés à considérer l'interaction exciton-phonons dans une description en termes de polarons, qui donnent lieu à des ailes autour de la raie zéro phonon dues à la recombinaison assistée par phonons. Nous avons étudié pour des excitons libres et localisés le couplage exciton-phonons en perturbation, et construit dans le régime de couplage faible les états mélangés de polarons.

Nous allons maintenant comparer ces résultats théoriques avec les observations expérimentales, réalisées dans les fils quantiques en régimes 0D et 1D.

Fils quantiques en régime 0D Dans les fils quantiques en régime 0D, l'élargissement homogène n'a pu être mesuré expérimentalement car il est comparable ou inférieur à la résolution expérimentale ($40 \mu eV$) dans le régime de température où la raie zéro-phonon peut être analysée. Cela est confirmé par nos calculs, qui montrent qu'il est au plus égal à $60 \mu eV$ à $T = 10 K$, dans les plus grandes boîtes quantiques localisant l'exciton. Il est dû aux transitions par absorption de phonons de l'état fondamental vers les états excités de la boîte, et peut donc être très faible ($< 1 \mu eV$) lorsque les états de la boîte sont séparés de plus de $3 meV$, ce qui correspond à des longueurs de localisation de l'ordre de 200 \AA .

L'étude de l'interaction exciton-phonons acoustiques a montré que le couplage peut être considéré comme faible à $T = 10 K$, où le facteur de couplage g est inférieur à 0,2 et dépend de la taille des défauts. Mais celui-ci augmente linéairement avec la température au-delà de $10 K$ et le couplage fort ($g \approx 1$) est atteint à $T = 50 K$ pour de petites tailles de défauts (200 \AA). Cela explique qualitativement la disparition presque totale (95% à $T = 30 K$) des pics de μ -PL, i.e. des raies zéro phonon, au profit d'une raie plus large associée aux processus de recombinaison assistée par phonons. Ceci est confirmé par les queues exponentielles, en particulier à basse énergie (queues d'Urbach) observées sur les spectres à partir de $30 K$. Nos calculs montrent que la force d'oscillateur de la raie zéro phonon est réduite de seulement 50% à $30 K$, mais l'approche perturbative n'est plus valable à cette température car les polarons sont en régime de couplage fort, dans lequel la force d'oscillateur de la raie zéro phonon est beaucoup plus faible.

Fils quantiques en régime 1D Dans les fils quantiques en régime 1D, l'élargissement homogène des transitions observées en μ -PL est important, de l'ordre de $1 meV$. Il n'est pas comparable à celui calculé pour l'état radiatif de l'exciton $K = 0$, qui varie de 60 à $180 \mu eV$ (cf Fig. 4.20) entre $T = 10 K$ et $20 K$. Cela nous a amenés à considérer des causes extrinsèques d'élargissement homogène, qui font l'objet de la section 3.4. Du point de vue théorique, la contribution due à l'interaction avec les phonons est due uniquement aux processus d'absorption de phonons, et est donc nulle à $T = 0$, et linéaire en température au-delà de $10 K$, le coefficient de proportionnalité étant égal à $12 \mu eV.K^{-1}$ pour nos fils.

Comme dans les fils en régime 0D, le couplage peut être considéré comme faible à $T = 10 K$, le facteur de couplage g étant dans notre modèle de l'ordre de 0,1. Il augmente aussi linéairement avec la température. Notre étude n'a tenu compte que des processus d'émission de phonons, qui sont plus efficaces que ceux d'absorption, car ces derniers font intervenir des termes résonants en énergie qui ne peuvent être traités au deuxième ordre en perturbation. Ces termes rendent l'étude du régime 1D beaucoup plus complexe que celle du régime 0D. L'approche perturbative est alors rigoureusement valable uniquement pour les états de bas de bande et sous-estime le facteur de couplage g . Ceci explique que nos calculs prévoient une diminution de la force d'oscillateur de la raie zéro-phonon de

4.2 Interaction avec les phonons et rôle de la température

seulement 30% à 30 K , alors que celle-ci a presque totalement disparu dans les spectres expérimentaux.

Conclusion Notre étude théorique montre que l'effet polaronique est vraisemblablement la cause principale de la disparition des pics de μ -PL lorsque la température augmente. La raie large qui les remplace peut être attribuée aux processus de recombinaison assistée par phonons acoustiques. L'accord n'est cependant que qualitatif, et en particulier le traitement rigoureux du polaron dans un fil quantique en régime 1D est très complexe, car les deux continuums d'excitons et de phonons entrent en interaction, les modes de phonons étant ceux du matériau massif à 3D. Le traitement rigoureux du couplage fort à température non nulle serait donc très intéressant pour mieux comprendre et simuler les spectres de μ -PL. Il est réalisable pour des états localisés dans le cadre du modèle de Huang-Rhys adapté au cas des phonons acoustiques [113], mais devient très difficile pour des excitons libres.

Cependant, à la température de 10 K à laquelle nous avons effectué les autres études présentées dans ce mémoire, le couplage des excitons aux phonons acoustiques est faible, caractérisé par un facteur de couplage g de l'ordre de 10%, et la description en terme d'exciton reste globalement valable. Ce n'est qu'au-delà de 30 K qu'il devient réellement nécessaire de décrire les excitations du système en terme de polarons en couplage fort.

L'interaction avec les phonons dans les molécules de polymère 3BCMU Nous avons mesuré en μ -PL l'élargissement homogène dans les molécules de polymère 3BCMU, où il est plus important (environ 250 μeV à $T = 10 K$) et peut être résolu spectralement [45]. Chaque chaîne de polymère étant un fil quantique de plusieurs microns de long, sa dépendance en température a été modélisée de la même manière que dans les fils en V, et les coefficients du potentiel de déformation dans le matériau ont pu être évalués [26].

François Dubin a par ailleurs mis en évidence récemment le rôle des polarons optiques dans les chaînes de polymère 3BCMU [26] en étudiant la forme spectrale des transitions vibroniques associées à chacun des modes de phonons optiques du matériau. Il a en particulier pu ainsi déterminer la densité d'état des excitons dans la chaîne, en $1/\sqrt{E - E_0}$ et la durée de vie des phonons optiques mis en jeu dans le couplage.

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

Nous souhaitons dans cette section définir et comprendre *les* équilibres thermiques —au pluriel— des porteurs dans les fils quantiques, qui déterminent de nombreuses propriétés physiques du système. Nous distinguerons en particulier l'équilibre thermique “local”, entre les états des paires électron-trou à une position donnée le long du fil, et l'équilibre thermique “global”, entre les états séparés spatialement le long du fil. Dans la pratique, l'équilibre local concerne une boîte quantique (en régime 0D) ou un îlot (en régime 1D) unique, alors que l'équilibre global est défini entre boîtes ou îlots voisins. Si les porteurs avaient une durée de vie infinie dans la structure, l'équilibre thermique⁶ serait atteint aux temps longs, à toutes les échelles de longueur. Mais la recombinaison radiative interrompt la relaxation et la diffusion des porteurs avant l'établissement de l'équilibre, et les spectres de luminescence reflètent tout au plus un quasi-équilibre atteint au moment de la recombinaison.

L'établissement de l'un ou l'autre de ces équilibres dans le système est une hypothèse forte dans l'interprétation de nombreux résultats expérimentaux. Nous allons nous intéresser dans cette section aux résultats d'expériences réalisées dans les fils quantiques en régime 1D — spectres de PLE, mesures de temps de vie, analyses de queues de spectres de luminescence — qui nécessitent de se poser correctement la question de la nature et de l'établissement de l'équilibre thermique. Nous montrerons dans chaque cas quel est l'équilibre thermique utilisé dans la modélisation, et quelle est son importance. Nous vérifierons de plus, à partir de ces résultats, quelles sont les conditions, en particulier sur la température de l'échantillon, qui président à l'établissement de ces équilibres.

4.3.1 L'équilibre thermique local

Nous entendons par équilibre local à une position donnée d'un fil quantique, celui qui intervient entre tous les états de paires électron-trou — liées ou non liées — ayant une fonction d'onde non négligeable à cette position, quels que soient leur sous-bande. Dans les fils quantiques en régime 0D, ce sont les états localisés dans les boîtes quantiques, et les états plus délocalisés qui existent à plus haute énergie, pour les excitons et pour les paires libres. Dans les fils en régime 1D, un îlot pouvant être considéré comme une portion de fil quantique, l'équilibre local est plus simple à définir et concerne tous les états de l'îlot.

Relaxation initiale de la paire photocrée

La manière la plus directe d'observer la mise à l'équilibre thermique des porteurs est de mesurer le temps de montée de la luminescence émise depuis l'état fondamental de l'exciton. Au cours d'une expérience de luminescence résolue en temps, une paire électron-trou est en effet créée par l'impulsion laser, à $t = 0$, à haute énergie dans les sous-bandes excitées du fil quantique, et relaxe par interaction avec les phonons optiques et acoustiques vers l'état fondamental de l'exciton, dans la première sous-bande, avant de se recombiner. Lorsque la relaxation est plus efficace que la recombinaison, ce qui est notre cas, le signal de luminescence croît aux temps courts avec un temps caractéristique de la relaxation (τ_{rel}), et décroît aux temps longs avec un temps caractéristique de la recombinaison radiative (τ_{rad}).

6. L'équilibre thermique est une condition nécessaire, mais non suffisante, de l'équilibre thermodynamique, qui suppose aussi un équilibre mécanique et chimique.

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

Nous avons effectué de telles expériences en μ -PL résolue temporellement dans les fils quantiques en régime 1D, sur un îlot très étendu. L'excitation est réalisée par un laser à colorant à 1,75 eV, dans la sous-bande e3h3 du fil quantique. La durée des impulsions est de l'ordre de 5 ps et la résolution temporelle du dispositif de détection est de 25 ps après déconvolution⁷ (voir Sec. 2.1.1 et 2.2.2). La puissance d'excitation est de 35 W.cm⁻², créant en moyenne un exciton par impulsion. Elle constitue un juste compromis entre la dynamique de notre dispositif de détection (temps d'intégration de 30 min) et la nécessité de travailler dans le régime linéaire. Nous avons vérifié que les temps mesurés sont indépendants de la puissance d'excitation lorsqu'elle reste inférieure à 100 W.cm⁻². La figure 4.29 présente les résultats obtenus à des températures de 9 K et 60 K. Lorsque la température augmente, la montée de la luminescence est plus rapide, et sa décroissance, mono-exponentielle sur une décade, est plus lente. Le régime transitoire est très bien reproduit à toute température dans le cadre d'un modèle à trois niveaux —état de paire photocréée, état fondamental de l'exciton et état vide— par l'expression

$$I(t) = A \frac{e^{-t/\tau_{rad}} - e^{-t/\tau_{rel}}}{\tau_{rad} - \tau_{rel}},$$

où τ_{rad} et τ_{rel} désignent les temps caractéristiques de recombinaison radiative et de relaxation, et sont indiqués sur la figure. Nous nous intéresserons au temps de vie radiatif ultérieurement.

La dépendance en température du temps de relaxation est reportée sur la figure 4.30. A partir de $T = 25$ K, il est comparable ou inférieur à notre résolution expérimentale de 25 ps. Mais il est bien résolu entre 10 et 20 K, et décroît rapidement lorsque la température augmente. Les processus d'émission de phonons acoustiques sont en effet activés thermiquement lorsque la température du bain de phonons augmente, par l'intermédiaire du terme $1 + n_B(E_{ph})$ (voir Sec. 4.2). Nous voyons ainsi que la relaxation n'est pas instantanée, et à basse température le temps de relaxation de l'ordre de 50 ps constitue une borne inférieure au temps caractéristique d'établissement de l'équilibre thermique local.

Un comportement très similaire a été observé par Joël Bellessa dans les fils quantiques en régime 0D, caractérisé par un temps de relaxation identique à basse température [23]. Cela confirme que la relaxation depuis les sous-bandes excitées du fil dépend peu de la localisation, qui n'intervient a priori que dans la relaxation à l'intérieur de la première sous-bande.

Cette relaxation relativement lente dans les fils quantiques est connue sous le nom d'"effet Bottleneck" et est la conséquence de la réduction de l'espace des phases pour les processus d'interaction exciton-phonon, caractéristique de la dimension 1 des fils quantiques [120]. Cet effet est encore plus fort dans les systèmes 0D, en particulier dans les boîtes quantiques. Il est la signature du confinement fort des porteurs et n'est par exemple pas observé dans des structures de fils quantiques sur substrats vicinaux, moins confinantes [121].

Queue haute énergie des spectres de luminescence

Nous avons vu que les spectres de μ -PL présentent une queue haute énergie qui peut être ajustée par une exponentielle décroissante pour des températures supérieures

7. Cette résolution sur les temps de montée et de décroissance de la luminescence est obtenue en modélisant le signal récolté par la convolution du signal théorique et de la fonction de réponse du dispositif, i.e. une gaussienne de largeur à mi-hauteur 40 ps.

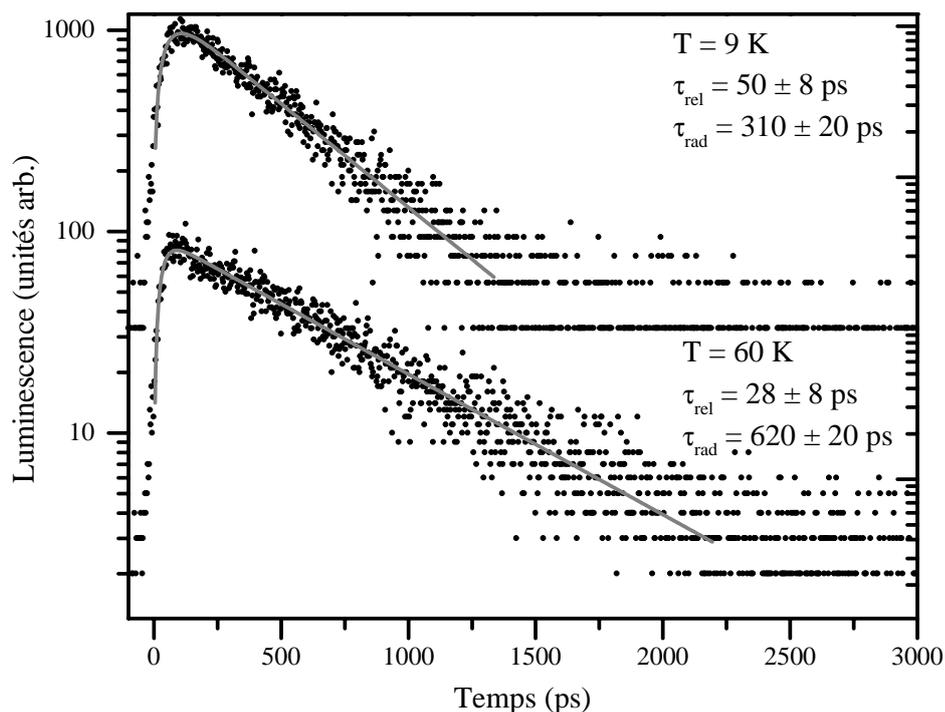


FIG. 4.29 – μ -PL résolue temporellement d'un îlot très étendu dans un fil quantique en régime 1D (NM79), à $T = 9$ (translatée) et 60 K. Les courbes représentent les meilleurs ajustements aux données par un modèle à 3 niveaux, après convolution par la réponse du dispositif.

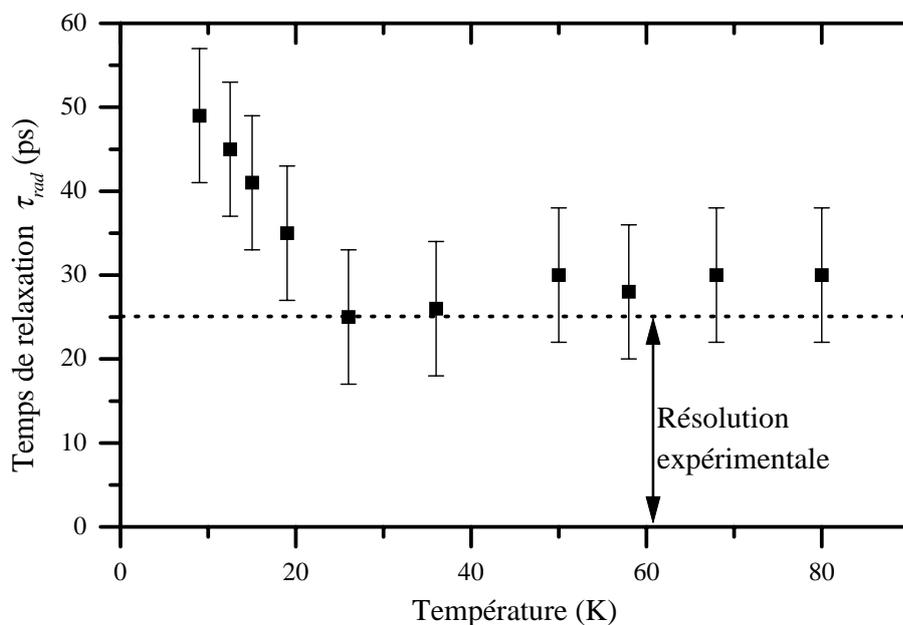


FIG. 4.30 – Temps caractéristique τ_{rel} de la relaxation des paires électron-trou vers le bas de la première sous-bande après leur création, en fonction de la température de l'échantillon.

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

à 15 K (voir Fig. 4.15). Ceci est bien connu dans les puits quantiques, et permet de mesurer une température effective d'équilibre thermique des porteurs libres. En effet, la force d'oscillateur des transitions verticales entre porteurs libres étant en première approximation indépendante de leur énergie, le signal de luminescence est proportionnel au produit de la densité d'état $D(E)$ des porteurs libres par le facteur de Boltzmann $e^{-E/k_B T'}$ si nous supposons que la densité de porteurs est suffisamment faible pour qu'ils soient régis par une statistique de Boltzmann. T' est la température du quasi-équilibre atteint au moment de la recombinaison. La densité d'états $D(E)$ est constante dans les puits quantiques et le signal de luminescence peut directement être ajusté par une loi exponentielle.

La situation est plus complexe dans les fils quantiques pour deux raisons : d'une part, la densité d'état $D(E)$ n'est pas constante comme dans le cas des puits; d'autre part, il n'est pas clair à ce jour que la queue haute énergie du spectre de μ -PL soit effectivement associé à la recombinaison de porteurs libres, ce qui constitue une hypothèse forte que nous n'avons pu tester expérimentalement. L'ajustement aux données d'une courbe du type $e^{-E/k_B T'} / \sqrt{E - E_0}$ fait de plus intervenir un deuxième paramètre ajustable, E_0 , qui correspond théoriquement à l'énergie de la transition bande-à-bande des porteurs libres, c'est-à-dire la somme de l'énergie de luminescence des excitons et de l'énergie de liaison. Enfin, les corrélations Coulombiennes atténuent la force d'oscillateur des états de paires électron-trou libres (Voir Sec. 1.5.1), et suppriment complètement la singularité en $1/\sqrt{E - E_0}$ du spectre [24]. En conclusion, la prise en compte de tous les paramètres dans la simulation de la queue haute énergie de nos spectres est trop ambitieuse pour être bien maîtrisée.

En nous appuyant sur le caractère relativement mono-exponentiel des spectres de la figure 4.15 entre 1,632 et 1,65 eV⁸, nous avons choisi de les ajuster par une simple exponentielle décroissante, ce qui équivaut à supposer que les termes de densité d'états et de force d'oscillateur varie lentement devant l'exponentielle. Les températures effectives T' ainsi déterminées sont reportées sur la figure 4.31. A basse température, elles sont très supérieures à la température T de l'échantillon, et il faut atteindre $T = 60$ K pour obtenir $T \approx T'$, c'est-à-dire pour que les porteurs soient à l'équilibre thermique avec l'échantillon.

Ce phénomène est connu dans les puits quantiques [123]. A basse température, la température effective des porteurs y est supérieure à celle de l'échantillon, car la dissipation de l'énergie cinétique initialement fournie aux porteurs lors de leur création n'est pas assez rapide pour permettre l'établissement de l'équilibre thermique. Si l'excitation est effectuée de manière résonante dans la raie excitonique de la sous-bande e1h1, les excitons sont créés sans énergie cinétique initiale et la température effective des porteurs est de nouveau égale à celle de l'échantillon.

Nos résultats, obtenus pour des fils quantiques en régime 1D, sont comparables à ceux obtenus par D.Y. Oberli et al. sur des fils quantiques d'épaisseur 7 nm au centre du V [122], plus épais que les fils considérés dans ce mémoire, et présentant probablement un régime de localisation 0D moins forte. Dans ces travaux, le spectre de PLE à haute température est utilisé pour évaluer l'absorption, c'est-à-dire le produit de la densité d'états par la force d'oscillateur. Les spectres de macro-luminescence sont alors simulés en multipliant l'absorption par le facteur de Boltzmann, et comparés aux spectres transitoires expérimentaux acquis à différents retards après l'impulsion excitatrice. Pour des

8. Comme il est précisé dans la description de la figure 4.15, la structure à 1,643 eV est une raie de fluorescence du laser à colorant.

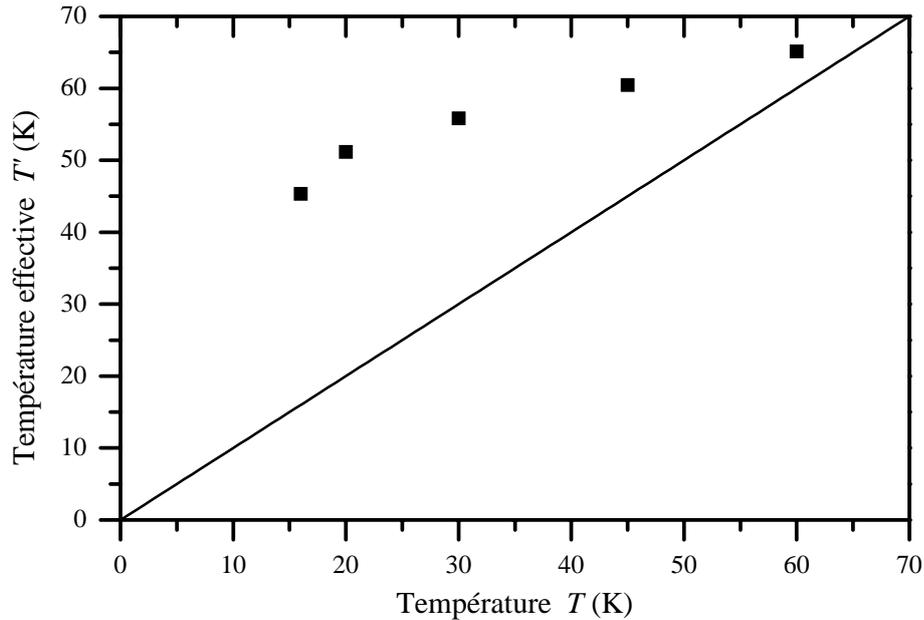


FIG. 4.31 – Température effective T' des porteurs en fonction de la température de l'échantillon, d'après les queues haute énergie des spectres présentés sur la figure 4.15.

températures supérieures à 60 K, les spectres simulés et expérimentaux sont identiques aux temps longs, montrant que 50 ps après avoir été créés, les porteurs sont à l'équilibre thermique avec l'échantillon, i.e. avec le réservoir de phonons du cristal. Mais à basse température, la température effective déduite des spectres transitoires décroît plus lentement et l'équilibre thermique avec l'échantillon n'est jamais atteint ($T' = 25$ K pour $T = 8$ K).

La description thermodynamique des excitons pour des températures inférieures à 60 K lorsque l'excitation est réalisée dans les sous-bandes de haute énergie mérite d'être expliquée de manière plus détaillée, en partant d'un point de vue propre aux expériences de μ -PL. A faible puissance d'excitation, le nombre total de paires présentes à un instant donné dans le fil quantique est égal en μ -PL à 1 ou 0. Créée à haute énergie, cette paire relaxe vers le bas de bande par des processus d'émission de phonons. Au moment de sa recombinaison, elle n'est pas encore statistiquement à l'équilibre thermique avec les phonons, i.e. elle n'a pas le temps de parcourir son espace des phases en interagissant avec les phonons avant de se recombinaison. Le point de vue macroscopique est en général de considérer que, dans une expérience de macro-luminescence, le gaz de paires électron-trou est à l'équilibre thermique, mais que sa température est plus élevée que celle du réservoir de phonons. Cette description ne peut être adoptée en μ -PL, où un seul exciton est présent dans le fil ! Pour autant les résultats obtenus dans les deux types d'expériences sont similaires pour des densités de porteurs très faibles, inférieures à 10^4 cm^{-1} typiquement : à basse température (20 K), la température T' extrapolée à partir des spectres est supérieure à celle du réservoir de phonons. L'exciton n'est donc dans ce régime en équilibre avec aucun réservoir, pas même celui constitué des autres paires, et l'on ne peut pas définir de température pour cette quasi-particule seule. La distribution statistique exponentiellement décroissante mise en évidence dans les queues haute-énergie des spectres de luminescence reflète plutôt la distribution des énergies de l'exciton au moment de sa recombinaison, et il est inadéquat de la décrire comme un quasi-équilibre thermodyna-

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

mique. Des simulations réalisées dans des puits quantiques par R. Zimmermann et non publiées à ce jour ont montré que la “température” T' est en fait reliée à la localisation par $k_B T' \approx \sigma/4$, où σ désigne l’amplitude du potentiel aléatoire. La nature exponentielle de la queue de luminescence n’est donc pas la signature d’un équilibre thermique des porteurs mais reflète le désordre dans la structure. La valeur de σ estimée par cette relation est de 15 meV dans les fils que nous avons étudiés, ce qui est supérieur à la valeur que nous avons utilisée dans les simulations au paragraphe 3.3.3, mais la relation a été obtenue pour des puits quantiques et non des fils.

Temps de vie radiatif

L’équilibre thermique local est très important dans la modélisation du temps de vie radiatif des excitons à basse température. C’est lui qui détermine la dépendance en température du temps de vie des excitons, proportionnel à \sqrt{T} dans un fil quantique et à T dans un puits quantique [124, 125]. En effet, dans les deux systèmes, seuls les états proches de $K=0$ sont couplés à la lumière, alors que tous les états du bas de la première sous-bande, y compris des états non radiatifs, sont peuplés thermiquement (cf Fig. 4.32). Lorsque des excitons sont créés dans le fil, les états radiatifs sont dépeuplés avec un temps caractéristique égal au temps de vie radiatif intrinsèque $\tau_{rad,1D}^0$, mais sont repeuplés par des excitons provenant des états non-radiatifs, de manière à maintenir l’équilibre thermique du gaz d’excitons au cours du temps. Le temps de vie radiatif τ_{rad} est donc un temps de décroissance de la population d’excitons, et n’est pas directement donné par $\tau_{rad,1D}^0$. Son expression reflète le rapport entre les états peuplés thermiquement, dans une distribution de Boltzmann de largeur $k_B T$, et les états radiatifs, d’énergie inférieure à $\Delta_{rad} = \hbar^2 k_\nu^2 / 2m_X$:

$$1/\tau_{rad} = 1/\tau_{rad,1D}^0 \frac{\int_0^{\Delta_{rad}} dE D(E) e^{-E/k_B T}}{\int_0^\infty dE D(E) e^{-E/k_B T}},$$

où $D(E)$ désigne la densité d’états, $k_\nu = nE_\nu/\hbar c$ est le vecteur d’onde dans le matériau du photon, qui correspond au vecteur d’onde maximal des excitons couplés à la lumière. $n = 3,5$ est l’indice de réfraction du milieu et E_ν l’énergie de la transition. A l’énergie E_ν , la longueur d’onde dans le GaAs est de 2100 \AA environ, correspondant à une largeur de la bande radiative d’excitons $\Delta_{rad} \approx 200 \text{ } \mu\text{eV}$ en prenant pour masse effective des excitons $m_X = m_e + m_{h1} = 0,178 m_0$.

Si $k_B T \gg \Delta_{rad}$, le temps de vie radiatif s’écrit :

– dans un fil quantique,

$$\tau_{rad} = \tau_{rad,1D}^0 \sqrt{\frac{\pi k_B T}{4\Delta_{rad}}},$$

– dans un puits quantique,

$$\tau_{rad} = \tau_{rad,2D}^0 \frac{k_B T}{\Delta_{rad}}.$$

La dépendance en \sqrt{T} dans les fils quantiques est donc une signature de l’existence d’un équilibre thermique entre les excitons de bas de bande dans le fil quantique, comme l’est la dépendance en T dans les puits. J. Feldmann et al. [124] a montré dans les puits quantiques que lorsque l’élargissement homogène Γ_h de la transition est supérieur à la largeur de la bande radiative, la longueur de cohérence des excitons devient inférieure à la longueur d’onde de la lumière, et il faut substituer Γ_h à Δ_{rad} dans l’expression de

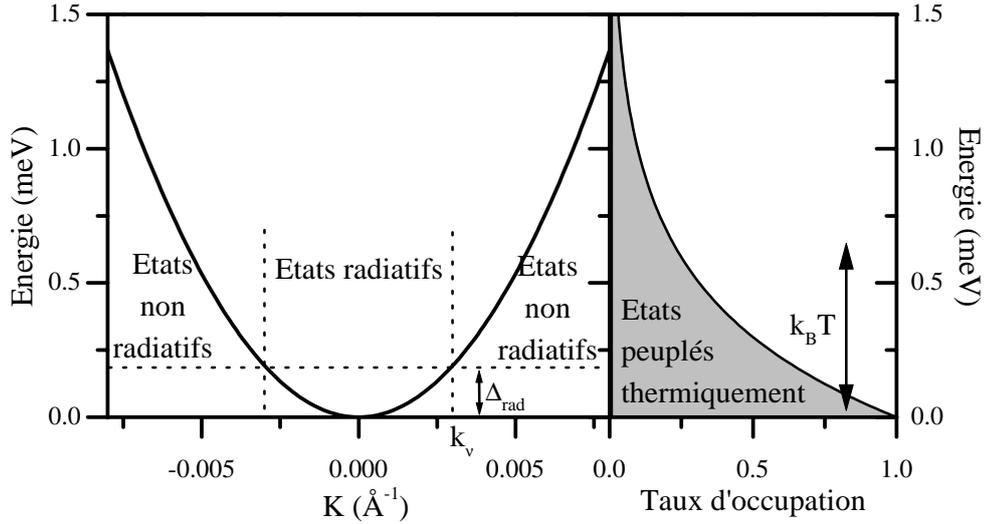


FIG. 4.32 – Dispersion des excitons dans le fil : caractère radiatif et population thermique des états.

τ_{rad} . De la même manière, si les excitons sont localisés dans des défauts de longueur L_{loc} , leur longueur de cohérence est bornée par L_{loc} et est inférieure à la longueur d'onde de la lumière. Il faut alors substituer la distance énergétique entre niveaux localisés consécutifs, $\Delta_{loc} = \hbar^2 \pi^2 / 2m_X L_{loc}^2$, à Δ_{rad} dans l'expression de τ_{rad} . La première condition est vérifiée dans les fils quantiques en régime 1D, où l'élargissement homogène des transitions est de l'ordre de 1 meV. La deuxième condition est pour sa part vérifiée dans les fils quantiques en régime 0D, et donne lieu à une dépendance en $1/L$ du temps de vie radiatif qui a été mise en évidence expérimentalement [23, 52]. Cependant, dans le premier cas, la substitution de Δ_{rad} ne repose que sur un argument qualitatif : tous les excitons dont l'énergie est inférieure à Γ_h sont, selon J. Feldmann, radiatifs en raison de leur élargissement homogène, alors que la nature radiative des états est déterminée par la condition $k < k_v$ et non par l'élargissement homogène. De plus, l'intégration du numérateur s'effectue sur l'énergie des excitons, et substituer Γ_h à Δ_{rad} revient en fait à assimiler partie imaginaire et partie réelle de l'énergie, i.e. élargissement homogène et énergie propre des états, ce qui semble hasardeux⁹. Il semble plus raisonnable de considérer en fait que Δ_{rad} constitue la largeur de la bande radiative, même dans la limite $\Gamma_h > k_B T$, mais que la longueur de cohérence des excitons est en raison des processus de diffusion inférieure à la longueur d'onde de la lumière. Dans le cas des excitons localisés, la substitution de Δ_{loc} à Δ_{rad} permet de rendre compte de la limitation du volume de cohérence des excitons par la localisation, mais est plus simple à décrire, en particulier pour $k_B T \ll \Delta_{loc}$, par un modèle d'états discrets d'excitons liés [126].

L'analyse des expériences de μ -PL résolues temporellement (Figure 4.29) nous donne accès au temps de vie radiatif τ_{rad} des excitons. Les résultats, obtenus d'une part dans un îlot étendu dans un fil quantique en régime 1D et d'autre part dans une boîte quantique dans un fil quantique en régime 0D, sont présentés sur la figure 4.33 en fonction de la température de l'échantillon. Le temps de vie radiatif est identique dans les deux régimes de localisation, sauf à basse température où il suit une évolution moins régulière en

⁹ L'analyse des résultats de J. Feldmann est réalisée dans la limite $\Gamma_h \ll k_B T$, où son modèle est valide.

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

régime 0D. Dans les fils en régime 1D, nous avons observé que le temps de vie radiatif est indépendant de l'îlot étudié à 10% près. Il suit une loi du type $\propto \sqrt{T}$ entre 9 et 25 K et entre 50 et 80 K, une transition se produisant entre 30 et 50 K. Dans le domaine des températures supérieures à 80 K, le temps de vie radiatif ne dépend plus de l'îlot ou de la boîte considéré, et peut être mesuré plus simplement¹⁰ par des expériences de macro-luminescence [61], qui ont par ailleurs montré que les processus de recombinaison non radiative sont négligeables pour des températures inférieures à 120 K et 200 K respectivement dans les fils de l'ancienne et de la nouvelle génération.

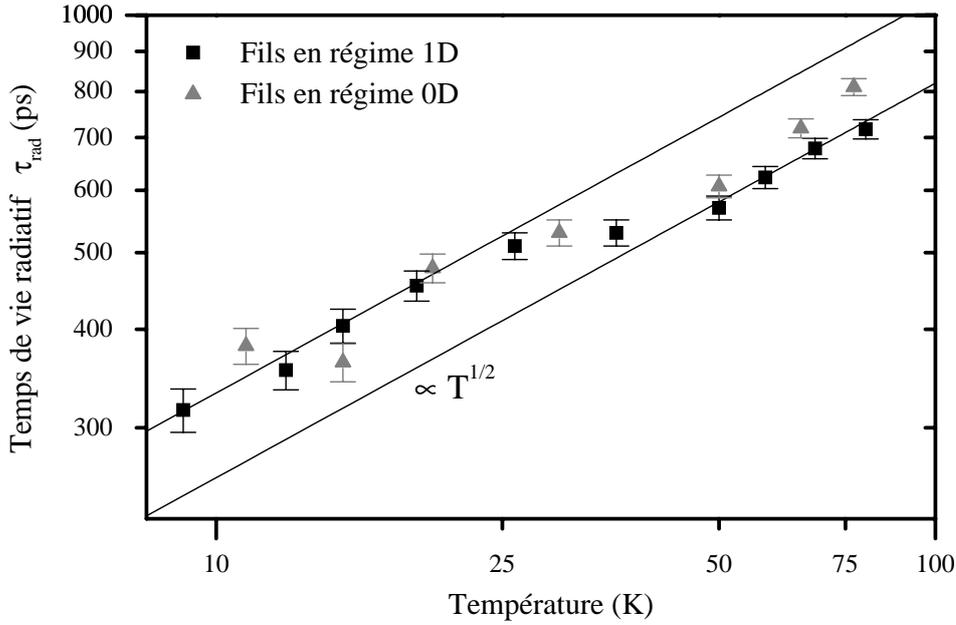


FIG. 4.33 – Dépendance en température du temps de vie radiatif dans un îlot étendu dans un fil quantique en régime 1D (d'après la figure 4.29) et dans une boîte quantique dans un fil quantique en régime 0D (M288).

Dans les fils quantiques en régime 0D, la dépendance en température de τ_{rad} est différente de \sqrt{T} pour $T < 20$ K comme le prévoit la théorie, car la condition $k_B T \gg \Delta_{loc}$ n'est pas vérifiée. Des résultats expérimentaux similaires ont été obtenus par D.Y. Oberli et al. dans des fils en régime 0D, avec en particulier une saturation du temps de vie radiatif à basse température, vraisemblablement lorsque $\Delta_{loc} > k_B T$ [127]. Pour tenter de modéliser la dépendance du temps de vie à plus haute température, les auteurs tiennent compte de l'équilibre entre excitons et porteurs libres, dans le cadre de l'équation de Saha [128]. Dans l'hypothèse d'un équilibre local à une température T' , celui-ci est caractérisé par une densité-seuil de paires créées :

$$n^*(T') = \frac{1}{a_X} \sqrt{\frac{k_B T'}{4\pi R_X}} e^{-E_{Coul}/k_B T'},$$

où R_X et a_X désignent le Rydberg et le rayon de Bohr définis par l'équation 1.11 et $E_{Coul} = 20$ meV est l'énergie de liaison de l'exciton dans le fil (voir Sec. 1.4). Dans le domaine des basses températures qui nous intéresse, si l'on suppose un équilibre thermique

10. Notre cryostat ne permet pas d'atteindre des températures supérieures à 80 K lorsqu'il est rempli d'hélium liquide.

avec le cristal ($T' = T$), cette densité critique vaut de l'ordre de 10^{-4} cm^{-1} , et la condition $n \gg n^*$ est toujours vérifiée, i.e. il n'y a que des excitons dans le fil quantique.

Dans les fils quantiques en régime 1D, même si $k_B T$ et Γ_h sont comparables pour $T < 20 \text{ K}$ et la condition $k_B T \gg \Gamma_h$ n'est pas vérifiée, le temps de vie radiatif suit dans ce domaine de température une loi en \sqrt{T} . Ceci peut s'expliquer, dans le cadre de la discussion déjà entamée, en considérant que la largeur de la bande radiative est Δ_{rad} même si $k_B T < \Gamma_h$. La condition $\Delta_{rad} \ll k_B T$ est en effet bien vérifiée, même à $T = 10 \text{ K}$. La transition qui s'opère entre 30 et 50 K est relativement surprenante et reflète ou bien une diminution du temps de vie radiatif intrinsèque $\tau_{rad,1D}^0$, ou une augmentation de la largeur Δ_{rad} de la bande radiative. Elle sera discutée à la fin de cette section.

L'accord avec une loi en \sqrt{T} dans les fils quantiques en régime 1D nous renseigne sur deux points essentiels : d'une part, la densité d'états des excitons est bien en $1/\sqrt{E - E_0}$ à l'échelle de $k_B T$. Ce n'est pas le cas à basse température dans les fils quantiques en régime 0D. D'autre part, les excitons de bas de bande sont à l'équilibre thermique avec les phonons, même à $T = 9 \text{ K}$. Cela peut paraître contradictoire avec les conclusions données dans les deux paragraphes précédents, selon lesquelles il n'y a pas d'équilibre local pour des températures inférieures à 60 K . Mais l'équilibre en jeu dans l'expression du temps de vie radiatif est légèrement différent, car il est local spatialement (dans l'îlot étudié) et en énergie (au voisinage immédiat du bas de bande). L'hypothèse implicitement formulée lors du calcul de τ_{rad} est qu'un exciton en bas de bande e1h1 va pouvoir parcourir l'espace des phases des états de vecteur d'onde voisin et d'énergie de l'ordre de $k_B T$ avant de se recombinaison. Cette hypothèse est raisonnable car les temps de transitions entre ces états sont courts devant le temps de vie radiatif (temps de relaxation par phonons de l'ordre de 10 ps d'après les calculs menés au paragraphe 4.2). Dans les deux expériences étudiées auparavant — la relaxation initiale des porteurs et la queue haute énergie —, c'est l'équilibre des porteurs dans toutes les sous-bandes, jusqu'aux plus hautes énergies, qui est sondé. Nous pouvons donc en conclure que si les différentes sous-bandes ne sont pas à l'équilibre thermique local à basse température, les porteurs ayant atteint la première sous-bande e1h1 et formé un exciton dans son état fondamental sont pour leur part en équilibre thermique avec le réservoir de phonons acoustiques, même à basse température. Ceci est résumé sur la figure 4.34.

Les dépendances en température du temps de vie radiatif sont respectivement $105 \pm 5 \sqrt{T} \text{ ps} \cdot \text{K}^{-1/2}$ entre 10 et 30 K , et $83 \pm 5 \sqrt{T} \text{ ps} \cdot \text{K}^{-1/2}$ entre 50 et 80 K , et sont similaires à celles obtenues par H. Akiyama et al. entre 20 et 40 K dans des fils quantiques en V moins confinants ($92 \sqrt{T} \text{ ps} \cdot \text{K}^{-1/2}$ [125]). Pour $T < 30 \text{ K}$, nous en déduisons un temps de vie radiatif intrinsèque $\tau_{rad,1D}^0$ égal à $170 \pm 10 \text{ ps}$ si nous utilisons Δ_{rad} dans l'expression de τ_{rad} , et à $400 \pm 20 \text{ ps}$ si nous utilisons Γ_h . Cette deuxième valeur doit être exclue car elle est supérieure au temps de vie mesuré à 10 K , montrant que la substitution de Γ_h à Δ_{rad} n'est pas entièrement valide. La première valeur (170 ps) du temps de vie intrinsèque est comparable aux résultats théoriques obtenus dans des fils quantiques GaAs [131, 132]. Nous pouvons estimer la longueur de cohérence des excitons qui lui correspond. Joël Bellessa a montré que dans les fils en V de confinement identique mais en régime 0D, le temps de vie radiatif intrinsèque est lié à la taille des boîtes quantiques, i.e. à la longueur de cohérence des excitons, par la loi $1/\tau_{rad,0D} = (3,04 \cdot 10^{-6} L + 1,67 \cdot 10^{-3}) \text{ ps}^{-1}$, où L est donné en Å [52]. Nous en déduisons une longueur de cohérence de $1400 \pm 100 \text{ Å}$, inférieure de 30% à la longueur d'onde de la lumière, pour laquelle le temps de vie intrinsèque serait

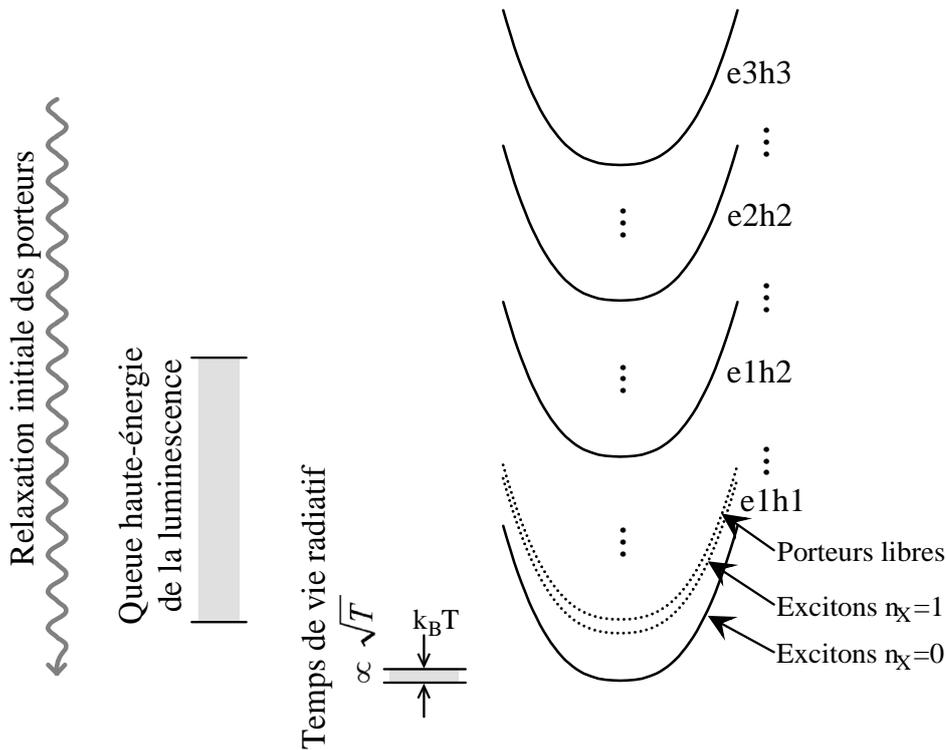


FIG. 4.34 – Les équilibres thermiques locaux sondés par les différentes expériences présentées.

de¹¹ 125 ps. Les processus de diffusion qui donnent lieu à l'élargissement homogène réduiraient donc la longueur de cohérence des excitons d'environ 30%.

Entre 50 et 80 K, le préfacteur de \sqrt{T} dans la dépendance en température du temps de vie radiatif est plus petit d'environ 20% que sa valeur pour $T < 30$ K. Cela correspond ou bien à une diminution du temps de vie radiatif intrinsèque, ou bien à une augmentation de la largeur de la bande radiative. Constatant que cette transition intervient lorsque les polarons entrent en couplage fort (voir Sec. 4.2.4), nous pouvons formuler deux hypothèses, issues de l'analogie avec le couplage exciton-photon et les polaritons [129, p 57], pour expliquer ce phénomène :

- En raison de la renormalisation de sa dispersion en énergie, la masse effective d'un polaron en couplage fort est en effet supérieure à celle de l'exciton. La largeur de la bande radiative est donc plus faible que pour des excitons. Une variation de 40% de la masse effective serait nécessaire pour expliquer nos résultats. L'augmentation de la masse effective des excitons est déjà visible en couplage faible dans nos résultats théoriques (7% à $T = 10$ K, Fig. 4.27¹²), et doit a priori être plus importante en couplage fort.
- La longueur de cohérence des polarons en couplage fort peut être plus importante que celle des excitons, et leur temps de vie radiatif intrinsèque plus court. D'après la valeur mesurée du préfacteur dans cette gamme de température, le temps de vie

11. Le temps de vie radiatif intrinsèque est beaucoup plus court dans les puits quantiques (quelques 10 ps), car il existe un facteur λ/a entre les valeurs à 1D et 2D, où λ désigne la longueur d'onde de la lumière et a le rayon de Bohr de l'exciton [125].

12. La masse effective des polarons est évaluée en sommant les courbures en $K=0$ des dispersions de l'exciton et de la correction polaronique.

intrinsèque est égal à 140 ps en supposant une même largeur de la bande radiative, et correspond à une longueur de cohérence de 1800 Å.

Pour l'instant, nous n'avons pu conclure sur ces deux hypothèses.

Notons que la loi $\tau_{rad} \propto \sqrt{T}$ a aussi été mise en évidence dans les chaînes de polymère 3BCMU, qui constituent un système-modèle de fil quantique, pour des températures inférieures à 50 K [130].

4.3.2 L'équilibre thermique global

L'équilibre thermodynamique entre porteurs localisés à des positions éloignées le long d'un même fil quantique, que nous appelons *équilibre global*, doit être distingué de l'équilibre local. Il est atteint lorsque les porteurs photocréés peuvent, avant de se recombiner, parcourir l'espace des phases des états des boîtes quantiques voisines (en régime 0D) ou des îlots voisins (en régime 1D). Il suppose donc que l'équilibre local soit déjà établi, et que les processus de diffusion vers les boîtes ou îlots voisins soient plus efficaces que la recombinaison.

Diffusion spatiale des porteurs

Nous pouvons observer de manière directe la diffusion des porteurs avant leur recombinaison par notre technique d'imagerie de la luminescence, présentée au paragraphe 2.3.1. Au cours d'une telle expérience, les porteurs sont créés dans la zone excitée de 1 μm , et l'image spatiale de la luminescence émise est obtenue après diffraction par le spectromètre-imageur sur la caméra CCD. La résolution spatiale est de 1,5 μm par cette technique, et est légèrement moins bonne qu'en imagerie par balayage de l'excitation, car le signal est convolué par la fonction de réponse spatiale du spectromètre. A basse température ($T = 10 K$), la luminescence est émise depuis les boîtes ou îlots présents dans la zone excitée. Son image spatiale, présentée sur la figure 4.35.a, est une gaussienne de largeur 1,5 μm , limitée par la résolution expérimentale. L'extension spatiale de la luminescence est reportée sur la figure 4.35.b en fonction de la température de l'échantillon, et ne varie pas de façon significative compte-tenu de notre résolution. Les résultats présentés sont obtenus dans un îlot très étendu dans un échantillon en régime 1D.

L'imagerie de la luminescence nous montre donc que jusqu'à 70 K, les porteurs se recombinaient à l'endroit où ils ont été créés, dans la limite de notre résolution expérimentale. Leur diffusion le long de l'axe du fil a été inférieure au micron entre leur création et leur recombinaison, et ce même à l'intérieur d'un îlot étendu! Les mécanismes de diffusion, dont le principal est la collision avec des phonons, ne sont pas assez efficaces dans ce régime pour permettre aux porteurs de transiter d'îlot en îlot dans les fils en régime 1D. Notre résolution ne nous permet pas de résoudre les transferts entre plus proches boîtes quantiques dans les fils en régime 0D, mais nous pouvons affirmer qu'ils ne dépassent pas quelques centaines de nm.

L'équilibre global n'est donc pas atteint à 70 K. Ceci s'explique facilement entre îlots voisins, entre lesquels l'énergie d'activation est de l'ordre de 9 meV et reste supérieure à $k_B T = 6 meV$. C'est en outre compatible avec le fait que l'établissement de l'équilibre local, qui est une condition nécessaire de l'équilibre global, n'est obtenu qu'à 60 K.

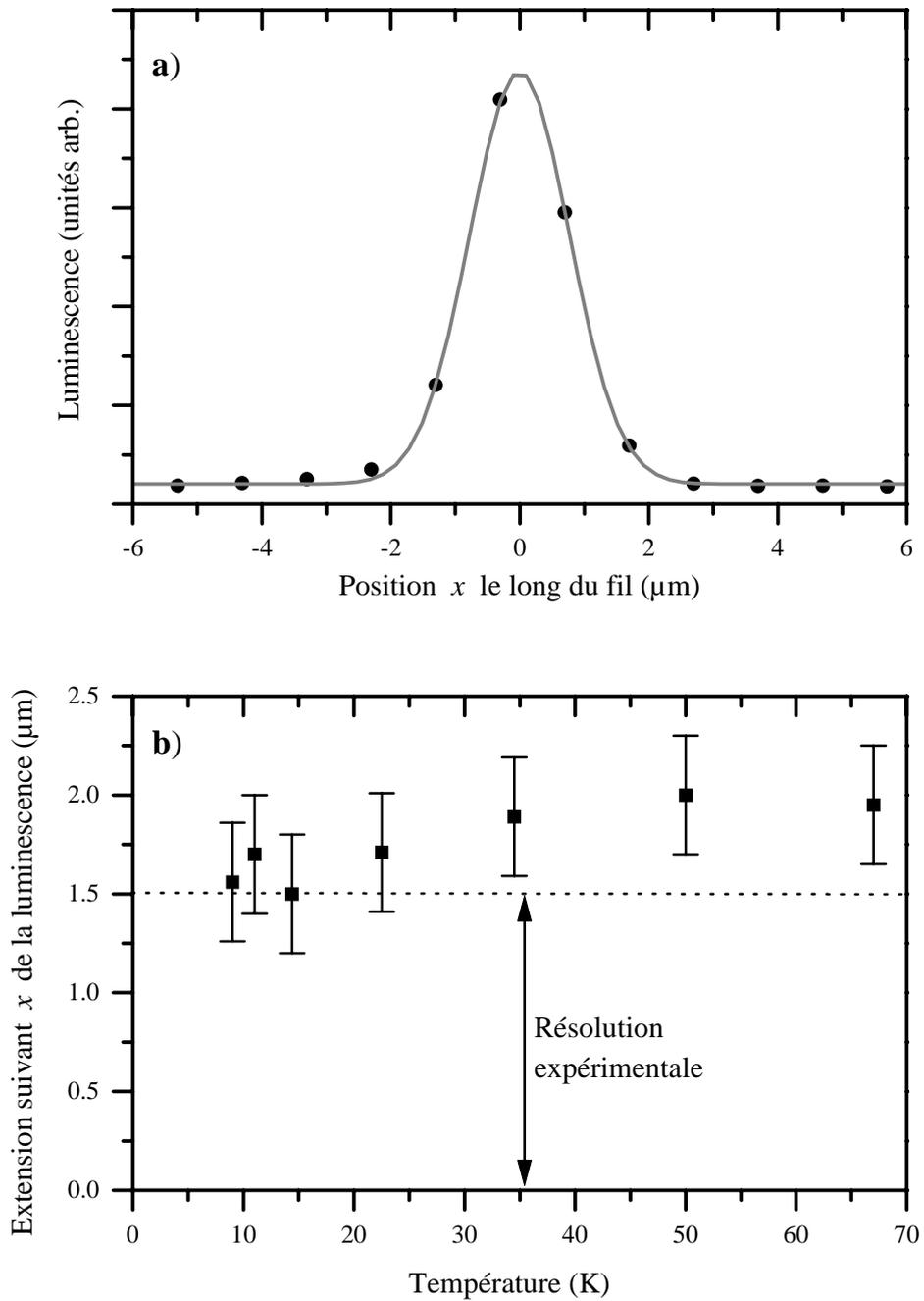


FIG. 4.35 – (a) Profil spatial de la luminescence émise en μ -PL (points), dans un îlot très étendu ($2 \mu\text{m}$) dans un échantillon en régime 1D (NM172), reproduit par une gaussienne de largeur $1,5 \mu\text{m}$ (courbe); (b) Dépendance en température de la largeur de la gaussienne.

Evolution en température du spectre de macro-luminescence

Le spectre de macro-luminescence reflète la distribution statistique de tous les porteurs photo-crées au moment de leur recombinaison, et dépend donc de l'établissement des deux régimes, local et global, d'équilibre. Dans les travaux de D.Y. Oberli, l'évolution de la queue haute énergie du spectre a implicitement été interprétée essentiellement en termes d'équilibre local des porteurs [122], dans les fils en régime 0D. Mais dans les fils quantiques en régime 1D, nous allons analyser conjointement les cartes, les spectres de PL et ceux de PLE en fonction de la température et ainsi mettre en évidence des processus de transfert depuis les îlots de haute énergie vers les îlots de basse énergie.

Le spectre de macro-luminescence (Fig. 4.36) présente en effet à basse température une bosse à 1,65 eV dans sa queue haute énergie, 20 meV au-dessus du pic principal. Ces structures existent aussi dans les cartes réalisées sur ces échantillons (cf Fig. 3.6). Leur intensité est d'autant plus importante que la qualité de l'échantillon est grande, i.e. que son angle de désorientation est petit (Sec. 3.2.3). Plusieurs hypothèses peuvent être formulées pour en justifier l'existence : luminescence depuis la sous-bande e1h2, porteurs libres, ou îlots distincts. La séparation en énergie entre le pic principal et cette bosse est en effet très similaire à l'écart énergétique entre e1h1 et e1h2, mais aussi à l'énergie de liaison de l'exciton. Elle correspond aussi à une variation de 2 monocouches de l'hétéro-interface (100) du fil. Les spectres de PLE dans les polarisations parallèle et perpendiculaire au fil, aux énergies de détection du pic principal et de la bosse (Fig. 4.36) montrent que les transitions d'absorption sont décalées de 15 à 20 meV lorsque la détection est effectuée sur la bosse à 1,65 eV, et prouvent que les deux raies de PL ne sont pas associées aux mêmes îlots, mais à des îlots de confinements différents possédant chacun ses propres sous-bandes. La bosse peut donc être attribuée de manière univoque à des îlots de croissance pour lesquels l'épaisseur du fil est inférieure de deux monocouches à sa valeur médiane.

Lorsque la température de l'échantillon augmente, le signal de luminescence associé à ces îlots à haute énergie disparaît très rapidement, entre 9 et 15 K, comme le montre le spectre de μ -PL présenté sur la figure 4.15 (pics à 1,652 eV). Le même comportement est observé en macro-luminescence, sur les spectres présentés sur la figure 4.40, décrite plus en détail au paragraphe suivant.

Pour comprendre ce phénomène, nous avons étudié la dynamique temporelle de la raie de luminescence. En raison du faible signal associé aux pics de μ -PL à 1,65 eV, il n'est pas possible avec notre dispositif d'acquérir les spectres associés de luminescence résolus temporellement. De plus, l'utilisation d'une caméra à balayage (streak camera) est particulièrement adaptée à l'observation simultanée des évolutions temporelles des raies haute et basse énergie. Nous avons donc réalisé ces expériences en macro-luminescence à l'Institut de Micro- et Opto-électronique de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, en collaboration avec Jean-Daniel Ganière et Benoit Deveaud-Plédran. L'excitation est réalisée par un laser Ti-Sa pompé par une source laser-solide, et produisant des impulsions picosecondes à 725 nm, soit 1,71 eV, de polarisation parallèle aux fils. La détection est réalisée par une streak camera placée à la sortie d'un spectromètre de focale 27 cm, dans la polarisation perpendiculaire aux fils. L'échantillon est monté dans un cryostat à circulation d'hélium, à température variable et régulée. Les images produites par la camera comportent une dimension spectrale dans la direction diffractée par le spectromètre, et une dimension temporelle dans la direction de balayage de la streak camera. Les spectres sont obtenus en intégrant sur la dimension temporelle, et les évolutions temporelles en intégrant sur une plage spectrale ou la totalité du spectre. Le diamètre de la tache d'excitation, de l'ordre de 300 μ m, a été choisi pour atteindre un régime de faible densité

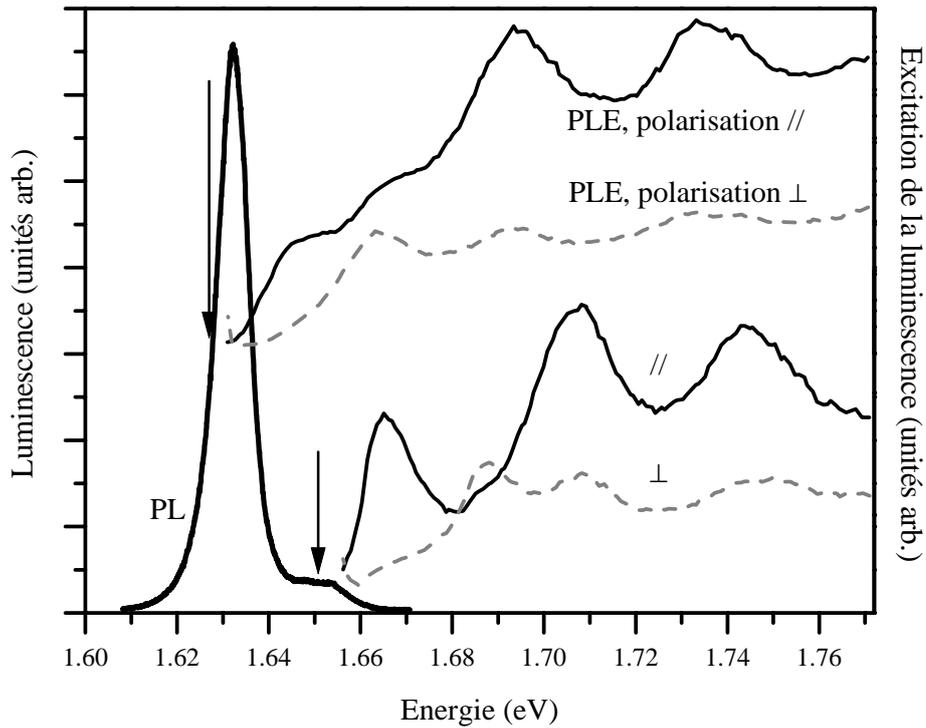


FIG. 4.36 – Spectres de macro-PL et de PLE dans les deux polarisations linéaires, en détectant sur le pic principal et sur la bosse à haute énergie.

de porteurs: la puissance d'excitation est de 5 W.cm^{-2} pour 5 mW , ce qui correspond à une densité de porteurs $n \approx 5.10^3 \text{ cm}^{-1}$ dans les fils¹³. Notons que les densités de porteurs sont estimées par comparaison avec les expériences de μ -PL, effectuées dans une géométrie très différente, et sont donc indicatives. En raison du faible signal émis par les fils quantiques, la fente temporelle d'entrée du spectromètre a été choisie relativement large, de manière à obtenir un bon compromis entre la résolution temporelle (25 ps) et l'intensité du signal récolté (temps d'acquisition de $20 - 30 \text{ min}$).

Les figures 4.37.a et b présentent l'évolution du spectre de luminescence du même échantillon en fonction de la température et de la puissance d'excitation. Nous remarquons que la bosse à haute énergie, à $1,65 \text{ eV}$, disparaît lorsque la température ou la densité de porteurs augmente. Dans les deux cas, cette disparition est très rapide, et le signal à haute énergie n'est plus détectable dès $T = 20 \text{ K}$, ou dès $n \approx 10^4 \text{ cm}^{-1}$ à $T = 9 \text{ K}$. Les évolutions temporelles de la bosse haute énergie à $T = 9 \text{ K}$ et 15 K sont présentées sur la figure 4.38. Elles font apparaître deux temps caractéristiques, l'un très court (environ 40 ps à 9 K et 25 ps , limité par la résolution temporelle, à 15 K), et l'autre plus long (320 ps dans les deux cas). La contribution A_1 au temps long, d'intégrale 10 fois inférieure à celle au temps court A_2 , correspond vraisemblablement à la queue haute énergie du spectre de luminescence, telle qu'elle existerait en l'absence d'îlots haute énergie et de la bosse associée (cf Fig. 4.37.a). Seule la contribution rapidement décroissante doit dans ce cas être attribuée aux îlots de haute énergie. Il apparaît donc que les excitons dans ces îlots ne sont pas stables, et que leur relaxation vers les îlots de basse énergie peut être

13. A une puissance de faisceau laser identique, le rapport entre la densité de porteurs après une impulsion et la densité moyenne en excitation continue est donné par T/τ_{rad} , où T est la période des impulsions (ici 12 ns)

activée soit par les collisions porteurs-porteurs, soit par les phonons acoustiques. Cette interprétation est résumée par le schéma présenté sur la figure. Le temps τ_1 caractéristique de la relaxation correspond à un temps de diffusion des excitons vers le bord de l'îlot, d'où ils peuvent facilement relaxer dans l'îlot voisin.

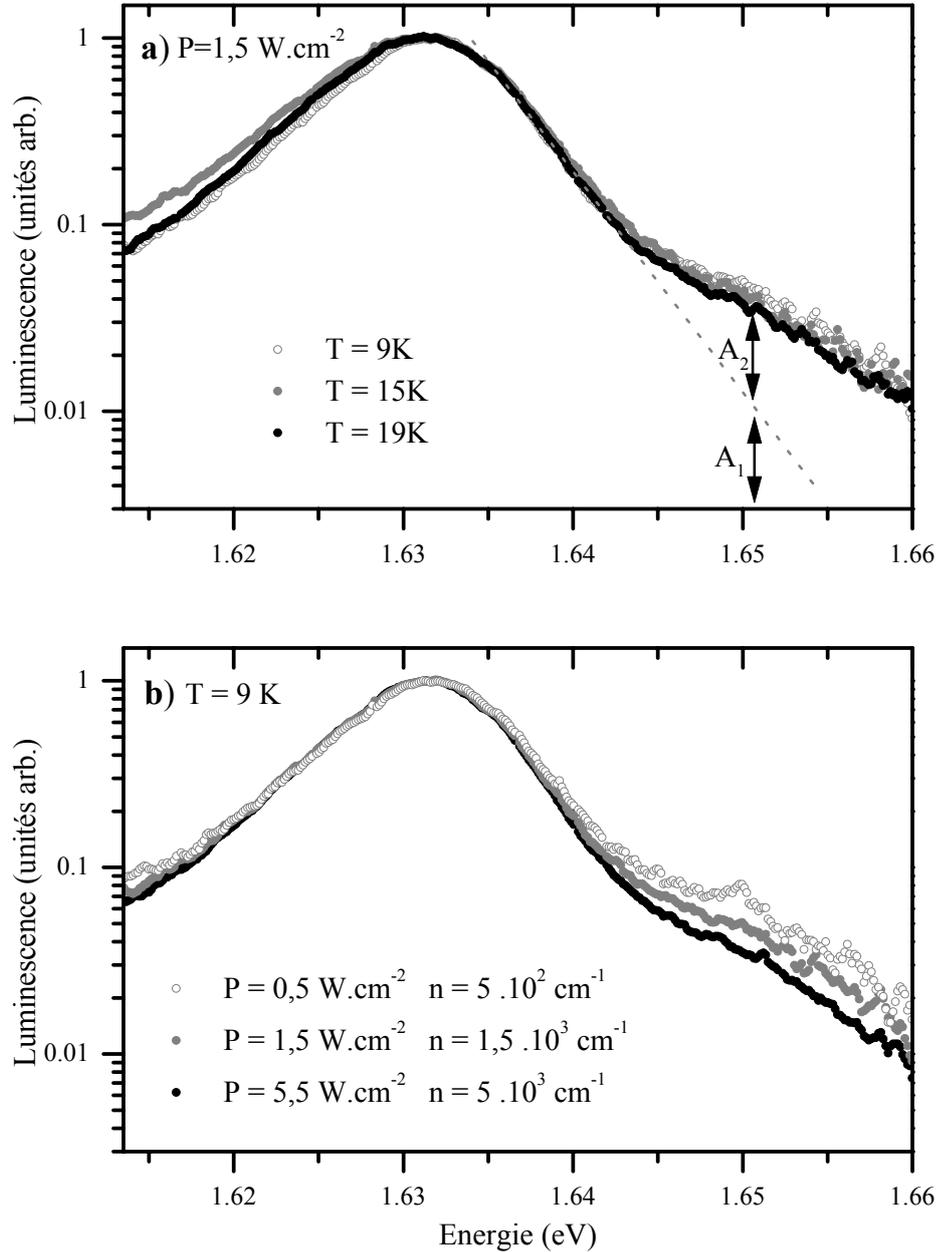


FIG. 4.37 – Spectres de macro-PL en fonction (a) de la température et (b) de la puissance d'excitation.

Ces résultats, comme ceux d'imagerie de luminescence, montre que la diffusion des excitons est peu efficace à 10 K et faible densité de porteurs, et freine l'établissement de l'équilibre global entre îlots voisins.

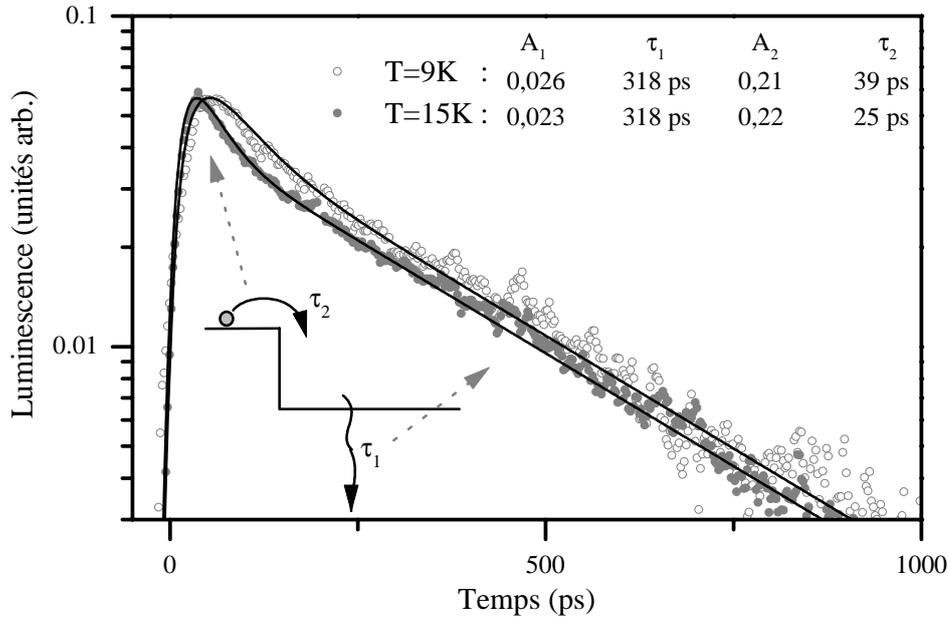


FIG. 4.38 – Evolution temporelle de la luminescence sur la bosse haute énergie, intégrée entre 1,643 et 1,66 eV, et sa décomposition en deux décroissances exponentielles (courbes) dont les amplitudes et les temps caractéristiques sont indiquées.

Spectres de PLE et dépendance en température du Stokes shift

Dans les puits quantiques. Le décalage entre la raie de luminescence et la première raie des spectres de PLE —le Stokes shift— est une signature du désordre dans les hétéro-structures semiconductrices. Dans les puits quantiques, il a été montré que son interprétation dépend des caractéristiques du désordre de localisation [47, 133].

Lorsque la rugosité d’interfaces est importante, le Stokes shift reflète le décalage entre la distribution des états qui luminescent, correspondant aux minima du potentiel aléatoire, et celle des états qui absorbent la lumière et possèdent de la force d’oscillateur, parmi lesquels existent des états excités qui ne participent pas à la luminescence [134]. Dans le cas d’un potentiel aléatoire gaussien, le Stokes shift est proportionnel à la largeur à mi-hauteur de la luminescence, la constante de proportionnalité étant égale à $2/\sqrt{6\pi} \ln 2 \approx 0,55$, proche de la valeur expérimentale de 0,6 qui ressort de la compilation des résultats obtenus sur des puits quantiques à base de nombreux matériaux [134].

Cette loi universelle n’est cependant pas aussi bien respectée dans les échantillons présentant un très faible Stokes shift (inférieur à 2 meV) et une faible largeur de raie de luminescence, i.e. lorsque la rugosité d’interfaces est moins importante [123]. Le Stokes shift dépend alors de manière importante de la température, même à basse température, mettant en évidence le rôle de la “thermalisation” des porteurs localisés. Lorsqu’une température effective de quasi-équilibre T' des porteurs peut être définie et mesurée dans la queue haute énergie des spectres de PL, le Stokes shift est décrit par la loi $\sigma^2/k_B T'$ dans l’hypothèse d’un potentiel aléatoire gaussien d’amplitude σ . Cette loi, valide si un quasi-équilibre *global* est atteint, a été mise en évidence dans les puits quantiques de grande qualité [123].

Dans les échantillons très désordonnés, en particulier les puits quantiques contraints d’InGaAs, l’évolution en température du Stokes shift est plus complexe et parfois non monotone. Elle a été modélisée par E. Runge et al. en tenant compte de la compétition

entre la relaxation par phonons des excitons vers les états localisés et leur recombinaison radiative [135].

Dans les fils quantiques Les figures 4.39 et 4.40 présentent les spectres de luminescence et de PLE obtenus en macro-luminescence dans des échantillons de fils quantiques en régime 0D et 1D. Ces expériences ont été réalisées au Photonics Research Institute, à Tsukuba, en collaboration avec X.L. Wang et M. Ogura. L'excitation est réalisée par une source solide continue et accordable, à une puissance de 100 W.cm^{-2} réglée, correspondant à une densité de porteurs inférieure à 3.10^3 cm^{-1} dans les fils. L'échantillon est placé dans un cryostat à hélium gazeux permettant de faire varier la température entre 5 et 300 K. La détection est réalisée sur une caméra CCD placée à la sortie d'un triple monochromateur, permettant d'acquérir les spectres de PL et de PLE.

Sur les deux types d'échantillons, les transitions e2h2, e3h3 et e4h4 des spectres de PLE s'élargissent lorsque la température augmente, sans que la différence de leur énergie avec celle du pic de luminescence ne varie. Par contre, le comportement de la première raie du spectre de PLE dépend du régime de localisation. Dans les fils quantiques en régime 0D, elle varie peu, en position comme en intensité relative, et se rapproche du pic de luminescence à partir de 100 K. Dans les fils en régime 1D, elle est peu prononcée à 5 K, et croît relativement au reste du spectre de PLE lorsque la température augmente. Dans le même temps, son maximum se déplace continûment vers les basses énergies. Pour chaque expérience, le rapport des intensités au maximum des raies e1h1 et e2h2 de PLE est reporté sur la figure 4.41, ainsi que le Stokes shift de la raie e1h1.

Avant d'analyser ces résultats de manière plus approfondie, il est intéressant de comparer les spectres de μ -PLE obtenus dans les deux régimes de localisation, et ainsi d'adopter le point de vue microscopique qui nous est cher et se révèle souvent complémentaire aux résultats macroscopiques. Ces spectres sont présentés sur la figure 4.42, dans des fils quantiques en régime 0D et 1D. Dans le fil quantique en régime 0D, le spectre de μ -PLE associé à une boîte quantique est constitué de pics correspondant à des états excités de la boîte, puis d'une montée progressive de l'absorption dans les états délocalisés à plus haute énergie. Dans le fil en régime 1D, le spectre de PLE reflète le voisinage de l'îlot considéré. Sur l'exemple (b), le premier pic de PLE est observé à $1,634 \text{ eV}$, et correspond à l'énergie d'un îlot voisin visible dans le spectre. Sur l'exemple (c), le signal de μ -PLE est presque nul jusqu'à une énergie de $+15 \text{ meV}$, le premier pic de PLE pouvant lui aussi être attribué à un îlot voisin. Cela prouve que toute la force d'oscillateur est concentrée dans les états excitoniques fondamentaux de chacun des îlots, les états de grand vecteur d'onde de chaque îlot n'apparaissant pas en PLE. Le spectre de PLE reflète la diffusion des porteurs depuis les îlots voisins vers celui étudiée, qui est moins efficace pour les îlots les plus étendus. Néanmoins, même pour les plus grands îlots étudiés, le spectre de PLE n'est pas celui d'un fil parfait infini : il est dominé par les contributions des îlots voisins, et les contributions des porteurs libres et des autres sous-bandes, qui pourraient être très riches en informations nouvelles sur la structure, sont masquées.

A la lumière des spectres de μ -PLE, il est plus aisé d'interpréter les résultats macroscopiques que nous avons obtenus :

Dans les fils quantiques en régime 0D, la première raie de PLE est due aux états excités de boîtes quantiques ainsi qu'aux états délocalisés à plus haute énergie. Elle dépend peu de la température jusqu'à ce que l'équilibre thermique s'établisse dans l'échantillon (60 K), en intensité comme en position. Au-delà, l'équilibre thermique s'instaure progressivement entre les différentes boîtes quantiques du fil, et le Stokes shift décroît lentement.

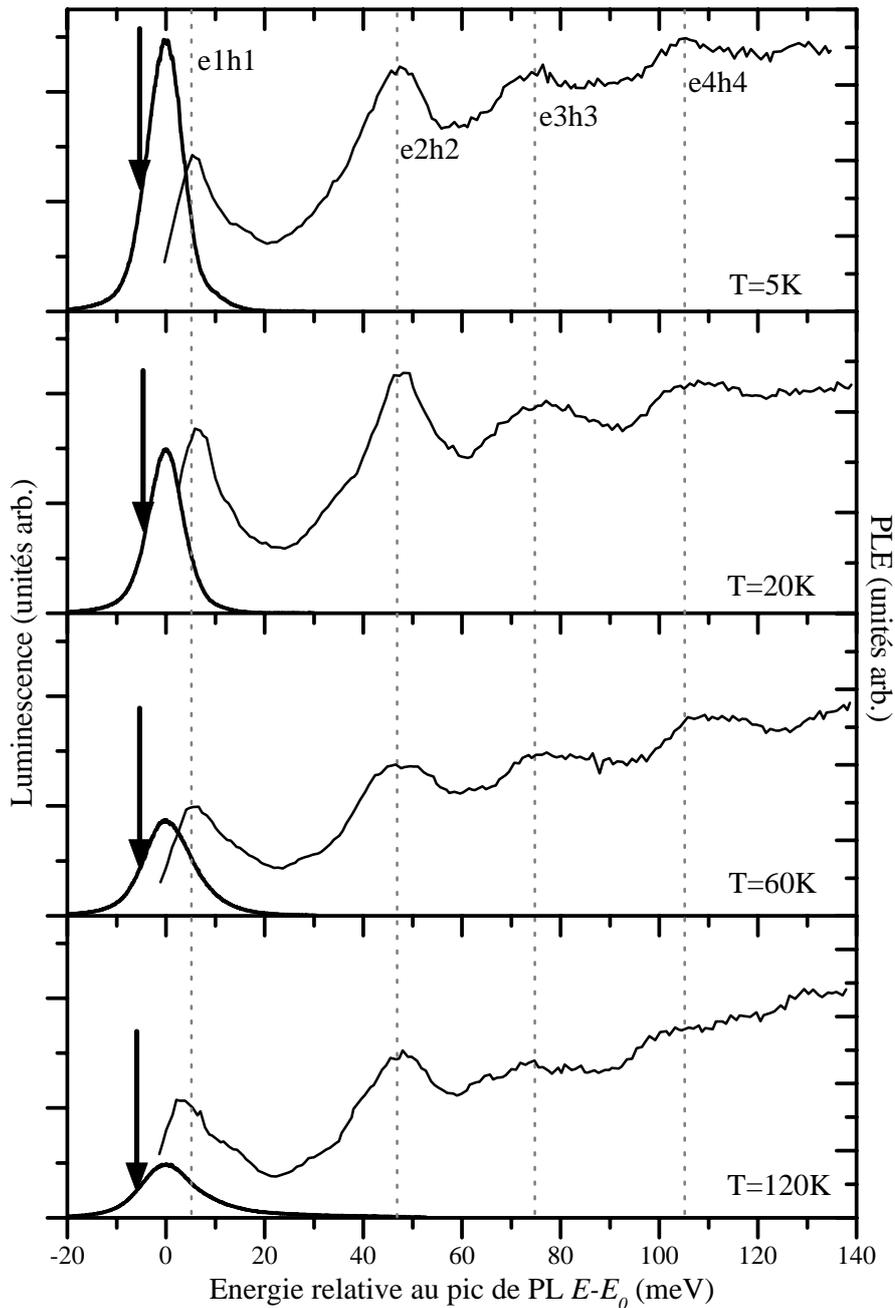


FIG. 4.39 – Dépendance en température des spectres de PL et PLE dans les fils quantiques en régime 0D (M127). Seuls les spectres de PLE en polarisation parallèle au fil sont présentés. Les énergies sont relatives à l'énergie du pic de luminescence, de manière à éliminer la contribution de la variation du gap. En toute rigueur, il faut plutôt soustraire l'énergie d'une transition d'absorption, par exemple e2h2, pour ne pas tenir compte des phénomènes de thermalisation de la raie de luminescence. Les deux méthodes donnent ici le même résultat. L'énergie de détection est indiquée par une flèche.

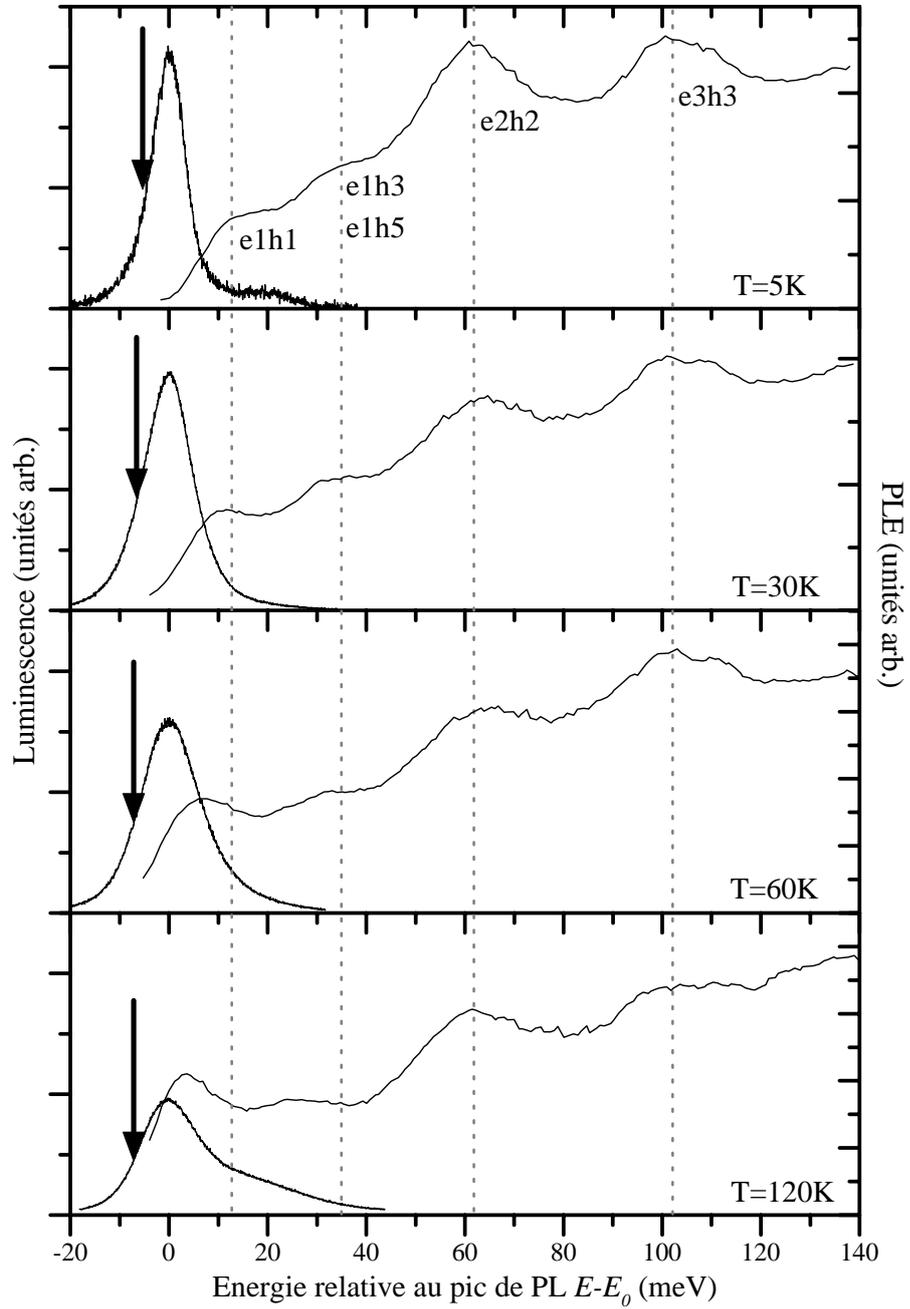


FIG. 4.40 – Dépendance en température des spectres de PL et PLE dans les fils quantiques en régime 1D (NM79).

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

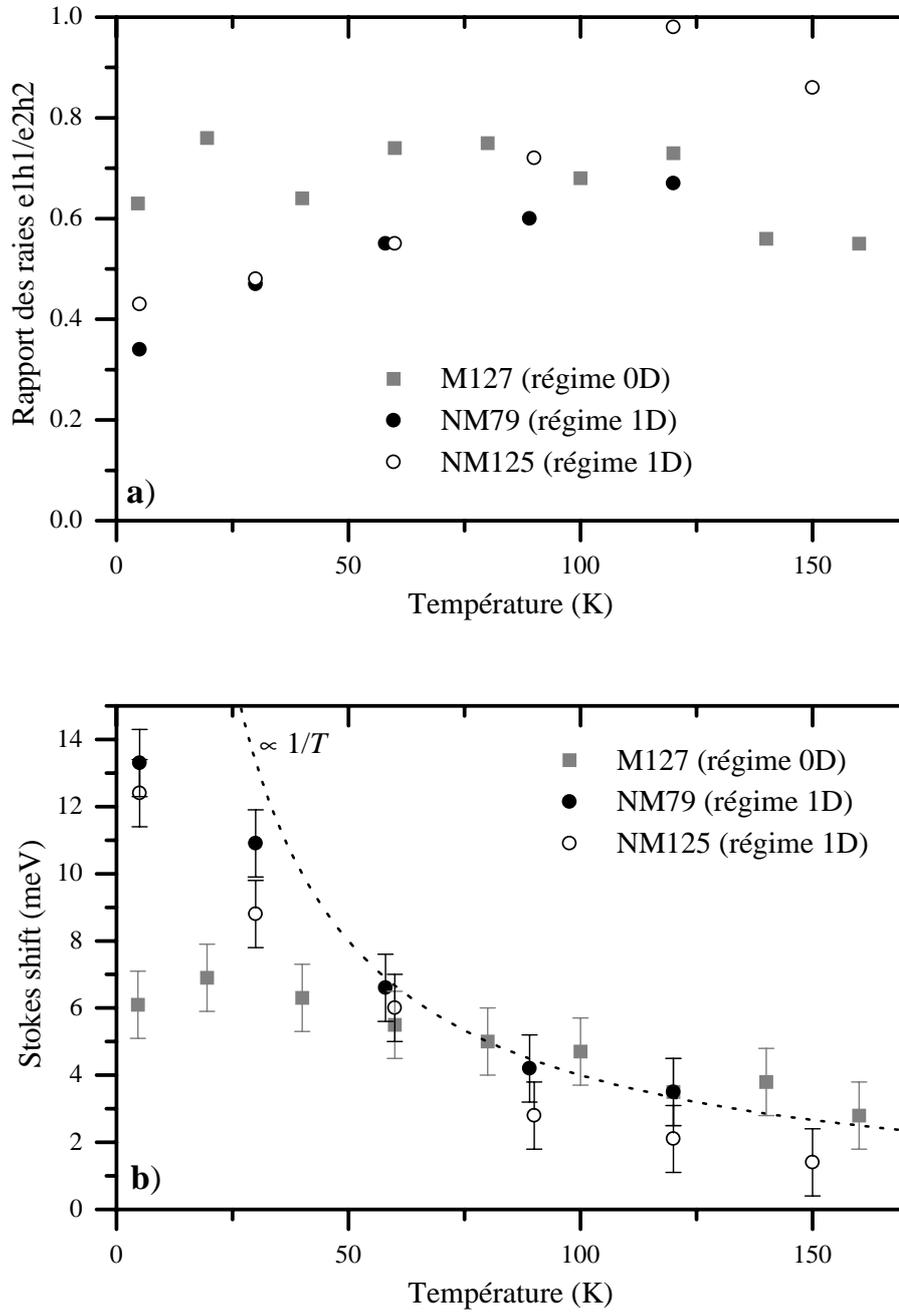


FIG. 4.41 – (a) Rapport des raies $e1h1$ et $e2h2$ et (b) Stokes shift, en fonction de la température, dans les fils quantiques en régime 0D (M127) et 1D (NM79 et NM125); la loi $\sigma^2/k_B T$ utilisée dans les travaux de Gurioli et al. [123] est représentée par la courbe en pointillé pour $\sigma \approx 6$ meV.

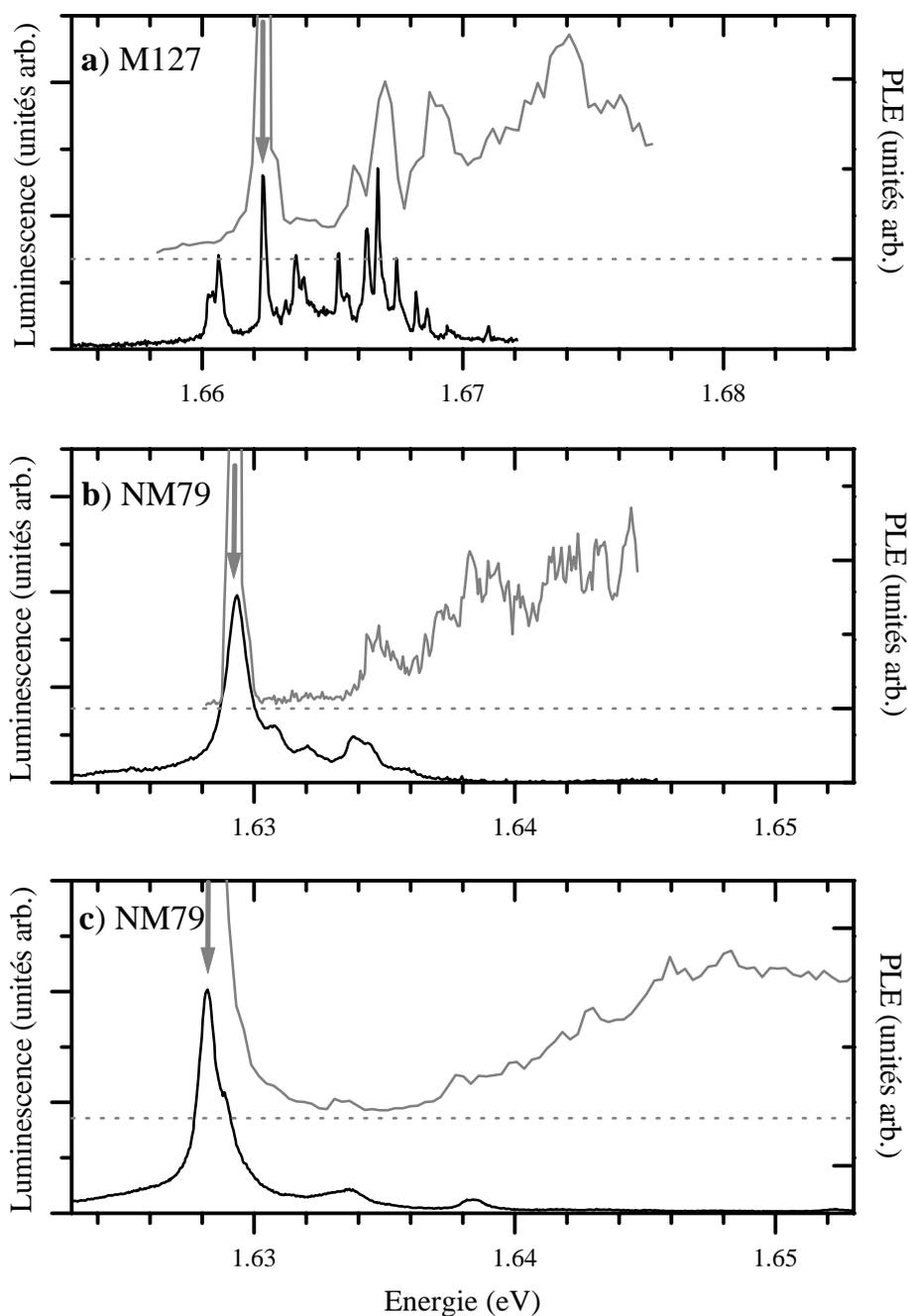


FIG. 4.42 – Spectres de μ -PL et μ -PLE typiques, pour une boîte quantique dans un fil quantique en régime 0D (a) et pour des îlots d'extension moyenne ($< 1 \mu\text{m}$, b) et grande ($3 \mu\text{m}$, c, correspondant à la position $x = 16 \mu^{-1}$ de la carte 3.6) dans un fil quantique en régime 1D. Seuls les spectres de PLE en polarisation parallèle au fil sont présentés. L'énergie de détection est indiquée par une flèche.

4.3 Les équilibres thermiques dans le fil quantique

En particulier, comme dans le cas des puits quantiques désordonnés, le Stokes shift est constant à basse température [123].

Dans les fils quantiques en régime 1D, la première raie de PLE est due aux états excitoniques des îlots voisins de ceux sur lesquels est effectuée la détection. Elle dépend de la diffusion depuis les îlots et est activée thermiquement, ce qui explique que l'intensité de la raie augmente avec la température, alors que cela n'était pas le cas en régime 0D. A basse température, seule la diffusion vers les îlots de haute énergie, que nous avons déjà mise en évidence dans les expériences précédentes de cette section, est efficace. Mais à mesure que la température augmente, l'activation thermique permet de connecter des "vallées" de potentiel de plus en plus éloignées, entraînant une augmentation de l'intensité de la raie e1h1 et une diminution progressive du Stokes shift (Fig. 4.43). Cette diminution est bien reproduite par la loi $\sigma^2/k_B T$ démontrée par Gurioli et al. dans les puits quantiques faiblement désordonnés et présentant des îlots étendus [123], pour une valeur de l'amplitude σ du potentiel aléatoire égale à environ 6 meV et comparable à celle que nous avons utilisée jusqu'à présent (cf Fig. 3.17.b).

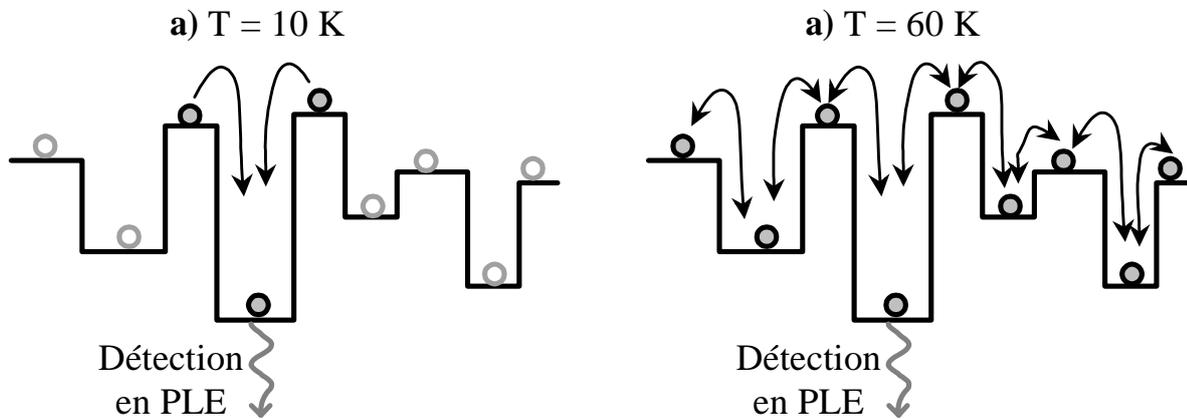


FIG. 4.43 – Représentation schématique des processus de diffusion entre îlots sondés par les expériences de PLE.

Très récemment, X.L. Wang a montré dans des fils en régime 1D plus épais et de qualité égale, dans lesquels l'amplitude du potentiel de localisation est plus faible, que le spectre de PLE est uniquement constitué à basse énergie des raies associées aux transitions e1h2 à e1h5, la raie e1h1 ayant complètement disparu. Celle-ci n'apparaît que lorsque la température est augmentée au-delà de 40 K.

4.3.3 Conclusion

Nous avons montré dans cette section toute la subtilité de la notion d'équilibre thermique dans les fils quantiques. Il est apparu nécessaire de considérer d'une part l'équilibre local, entre les états de paires d'une même boîte quantique ou d'un même îlot, mais de corrélations coulombiennes ou de sous-bandes différentes, et d'autre part l'équilibre global, entre des portions éloignées d'un même fil quantique. De plus, l'équilibre thermique ne peut s'établir qu'avec un réservoir d'excitations : les phonons du cristal, ou bien les autres excitons photocréés. Dans le régime des faibles densités ($< 10^4 \text{ cm}^{-1}$), les collisions entre excitons sont trop rares pour permettre l'établissement d'un quasi-équilibre entre excitons avant leur recombinaison.

Dans les fils en régime 1D, l'équilibre local entre les états excitoniques du bas de bande ($E < qg \text{ meV}$) est établi dès les plus basses températures, comme le montre la dépendance en \sqrt{T} du temps de vie radiatif. La comparaison de ces mesures avec celles réalisées dans les fils en régime 0D nous a aussi permis d'estimer la longueur de cohérence des excitons, évaluée à environ 1400 Å. Celle-ci résulte des processus de déphasage par interaction avec la lumière, qui la limite à $\lambda = 2100 \text{ Å}$, et aux autres interactions (charges résiduelles, phonons).

L'équilibre local entre les excitons des sous-bandes fondamentale et excitées et le cristal, estimé d'après les queues haute énergie des spectres de μ -PL, n'est atteint avant la recombinaison que pour des températures supérieures à 60 K. Il est indépendant du régime de localisation dans le fil.

L'équilibre global est mis en évidence dans les expériences de PLE. Celles-ci montrent tout d'abord des différences importantes entre les fils quantiques des régimes 0D et 1D à basse température : dans les fils en régime 1D, toute la force d'oscillateur est concentrée dans les états de bas de bande de l'exciton, et ce sont les mêmes états qui absorbent en PLE et qui luminescent en PL, la PLE étant associée aux excitons ayant diffusé entre îlots voisins; au contraire, en régime 0D, le spectre de PLE est dominé par les états excités, localisés et délocalisés. Cela se traduit dans la dépendance en température, en-dessous de 60 K, des spectres de PLE : en régime 1D, la diffusion est activée thermiquement, et la raie e1h1 du spectre se renforce tout en se rapprochant du pic de luminescence, ce qui peut être vu comme l'établissement progressif, dès les plus basses températures, de l'équilibre global entre îlots voisins; en régime 0D, la raie e1h1 du spectre n'évolue pas jusqu'à 60 K, puis l'énergie thermique devient supérieure à l'énergie de confinement et l'équilibre global s'instaure aussi, et le Stokes shift diminue.

Chapitre 5

Des excitons en interaction dans un fil quantique

La compréhension des excitations électroniques dans un fil quantique lorsque la densité de paires électron-trou augmente a été l'objet de nombreuses études ces dernières années, tant théoriques qu'expérimentales, dont l'enjeu est l'étude et éventuellement l'exploitation de propriétés non-linéaires de ces structures.

Dans le régime dilué, lorsque la densité d'excitons est faible, les fils en régime 0D et 1D se comportent très différemment :

- dans un fil en régime 0D, lorsque idéalement deux excitons sont créés, ils se localisent dans des boîtes quantiques. Ils ne seront couplés que faiblement par l'interaction Coulombienne s'ils sont piégés dans des boîtes distinctes, alors que l'interaction sera forte s'ils sont piégés dans la même boîte quantique. Nous verrons que les propriétés d'un fil quantique en régime 0D sont donc à faible densité d'excitons celles de boîtes quantiques, et le seuil de densité pour des effets non-linéaires correspond à un remplissage de l'ordre d'un exciton par boîte.
- dans un fil en régime 1D, deux excitons créés dans le fil sont couplés par l'interaction Coulombienne quelle que soit leur distance si l'on suppose que sa longue portée n'est pas écrantée, et que les excitons sont parfaitement libres. C'est alors l'interaction Coulombienne qui définit l'état propre du système, et non plus la localisation dans les boîtes quantiques. Les propriétés du système sont celles d'un gaz dilué unidimensionnel d'excitons.

Dans le régime dense, lorsque la densité d'excitons devient comparable à l'inverse du rayon de Bohr excitonique, les excitons perdent leur stabilité en raison des nombreuses collisions qu'ils subissent, et le système évolue vers un plasma d'électrons et de trous. Cela constitue la transition de Mott. Les fils des deux régimes 0D et 1D ne devraient pas différer de manière importante dans le régime dense, car les états de bas de bande, qui les différencient sont remplis et participent peu aux excitations élémentaires du système, qui concernent plutôt les états proches du niveau de Fermi. Il est d'ailleurs à noter que la notion de niveau de Fermi est remise en question dans les systèmes unidimensionnels par la théorie des liquides de Tomonaga-Luttinger, que nous présenterons rapidement.

Nous donnerons dans un premier temps un panorama des concepts et des modèles théoriques, puis présenterons les résultats expérimentaux obtenus dans les deux types de fils, 0D et 1D, depuis la limite des faibles densités excitoniques jusqu'au régime dense.

5.1 Aperçu des théories à N corps dans les fils quantiques

Les études théoriques des propriétés optiques des structures semiconductrices unidimensionnelles sous forte excitation se sont multipliées ces dernières années, motivées par les résultats expérimentaux récents et le développement de nouveaux modèles [136, 137, 138, 139, 140]. Ces études font suite à celles menées sur les systèmes unidimensionnels d'électrons, qui sont elles-aussi encore vivement débattues [141, 142, 143]. Nous présenterons dans un premier temps les modèles généraux permettant de traiter les interactions Coulombiennes dans un gaz de particules chargées, en partant du gaz d'électrons. Puis nous nous intéresserons plus spécifiquement à quatre modèles récents traitant les interactions dans un gaz unidimensionnel de paires électron-trou.

5.1.1 Le traitement à N corps de l'interaction Coulombienne

L'exemple "simple" du gaz dense d'électrons

Nous allons dans un premier temps considérer un gaz d'électrons, qui va nous permettre d'introduire le vocabulaire et les modèles de manière simple [144, 145, 146].

A température nulle, un gaz de N électrons dans la bande de conduction est caractérisé par son niveau de Fermi ϵ_F , qui est relié à sa densité n . Dans un modèle d'électrons libres, l'énergie du gaz est $E = 3/5 N\epsilon_F$, d'origine purement cinétique. En posant $r_s = r_e/a_X$, où $r_e = 1/(4/3 \pi n)$ est la distance moyenne entre électrons et a_X est le rayon de Bohr (cf Sec. 1.4), l'énergie cinétique moyenne par électron s'écrit $\epsilon^0 = 3/5 \epsilon_F = 2,21/r_s^2$. La limite dense correspond à $n a_X \gg 1$, soit $r_s \ll 1$.

L'interaction Coulombienne entre électrons peut être introduite au premier ordre en perturbation. Les termes impliqués doivent avoir leurs états initial et final dans la mer de Fermi, et seul le processus d'échange des électrons est autorisé (cf Figure 5.1.a). L'énergie moyenne des électrons est diminuée d'un terme linéaire en densité : $\epsilon^1(n) = -0,916/r_s \propto n$, exprimée en Rydberg effectif R_X .

Le traitement des "corrélations Coulombiennes", c'est-à-dire des processus d'ordre supérieur ou égal à 2, est plus complexe. Au deuxième ordre en perturbation, l'interaction Coulombienne couple des états de la mer de Fermi avec des états non occupés. Deux processus, représentés sur la figure 5.1.b, sont impliqués, l'un d'entre eux faisant intervenir deux "bulles". Malheureusement, le calcul de la correction énergétique au deuxième ordre en perturbation fait apparaître une divergence en $q = 0$ de l'intégrale.

Pour dépasser cette difficulté, l'approximation RPA (Random Phase Approximation) consiste à sommer, à tous les ordres en perturbation, les termes les plus divergents, c'est-à-dire les bulles (Fig. 5.1.c). La correction énergétique ainsi trouvée est logarithmique en la densité d'électrons : $\epsilon^{RPA}(n) \propto -\ln(r_s) \propto \ln(n)$.

La "**renormalisation du gap**" est l'approximation du gaz dense d'électrons en interaction, par un gaz d'électrons libres, de même masse effective mais d'énergie abaissée d'une quantité $\epsilon^{Coul}(n) = \epsilon^1(n) + \epsilon^{RPA}(n) + \dots$ identique pour tous les états électroniques, quelque soit leur vecteur d'onde. Elle consiste donc à simplement traduire la courbe de dispersion des électrons vers les basses énergies, d'une quantité $\epsilon^{Coul}(n)$ appelée la renormalisation du gap (BGR). Cette approximation est relativement robuste pour les gaz denses d'électrons.

Notons que la quantité $\epsilon^{Coul}(n)$ est toujours négative. Cela peut paraître paradoxal

pour un gaz d'électrons, entre lesquels l'interaction Coulombienne est répulsive, mais la présence des ions positifs du cristal (le jellium) ne doit pas être oubliée : augmenter la densité revient à rapprocher les électrons des ions, tout en rapprochant les électrons entre eux, et c'est le premier terme qui l'emporte, abaissant l'énergie moyenne du système.

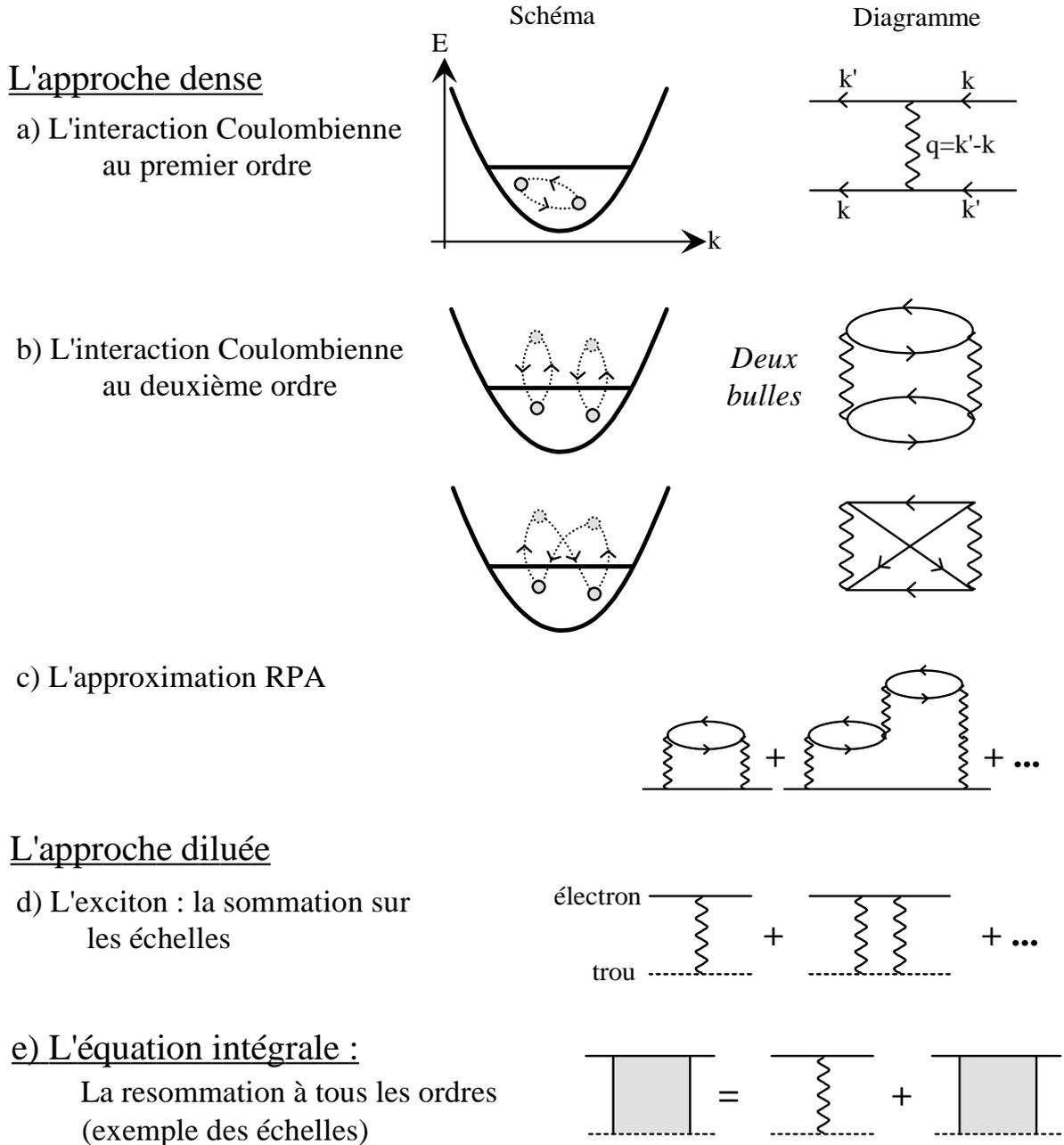


FIG. 5.1 – Processus d'interaction Coulombienne : schématisation et diagrammes de Feynman.

Le gaz dense de paires électron-trou

Sous forte excitation dans les hétéro-structures non dopées, le gaz de porteurs est constitué d'électrons et de trous. A très grande densité, il constitue un plasma d'électrons-trous (EHP), dans lequel le même modèle peut être développé. Trois types de processus

doivent alors être pris en compte (électron-électron, trou-trou et électron-trou), et la renormalisation du gap peut être calculée de la même manière dans l'approximation RPA, présentant les mêmes dépendances envers la densité de porteurs. En particulier, la renormalisation du gap est négative et entraîne un décalage vers le rouge de la transition optique.

La limite diluée du gaz d'excitons

Les processus de collisions Coulombiennes entre un électron et un trou sont décrits par les échelles. Dans une approche à N corps, l'exciton est formé en sommant sur les échelles (Fig. 5.1.d). Ce calcul est exact dans la limite d'un exciton seul, et valide dans la limite des faibles densités n , lorsque la distance entre excitons $1/n$ est grande devant leur rayon de Bohr a_X , soit $n a_X \ll 1$. Il est complètement équivalent au calcul de l'exciton dans un modèle à deux corps (un électron et un trou) effectué au paragraphe 1.4.

Lorsque la densité d'excitons augmente, les collisions Coulombiennes ne se produisent plus uniquement à l'intérieur de chacun des excitons, mais aussi entre excitons, et l'énergie de liaison de l'exciton est diminuée: c'est l'**écranage de la liaison excitonique**.

De manière alternative mais équivalente, cet écranage peut être obtenu en évaluant la nouvelle constante diélectrique $\epsilon(\mathbf{q},\omega)$ du système, modifiée par la présence du gaz dilué d'excitons, puis en tenant compte de l'écart à $\epsilon_0\epsilon_r$ dans le calcul de l'exciton.

La transition de Mott

La transition de Mott constitue la transition entre ces deux régimes, dilué et dense, du gaz d'électrons-trous en interaction Coulombienne [147]. En reprenant l'analogie avec la physique atomique, un gaz dilué d'excitons est analogue à un gaz d'atomes d'hydrogène (même s'il n'existe pas de tel gaz unidimensionnel), alors qu'à forte densité, il est attendu que le système se stabilise sous forme d'un plasma d'électrons et de trous, de la même manière qu'il existe des plasmas d'électrons et de protons.

Dans le régime de densité intermédiaire $n a_x \approx 1$, la nature des excitations du système, et a fortiori leur énergie, est l'enjeu de nombreux travaux et n'est pas encore éclaircie. Les propriétés physiques du système dépendent de manière importante de la nature des excitations. En ce qui concerne les propriétés de transport, un gaz d'excitons est isolant alors qu'un plasma d'électrons et de trous est conducteur. En ce qui concerne les propriétés optiques, l'apparition du plasma d'électrons-trous se traduit dans les hétérostructures de dimensions supérieures (2D et 3D) par une absorption négative, c'est-à-dire du gain, dans une gamme spectrale autour de la transition [24].

Le critère de Mott donne le seuil de densité ($n a_X \approx 1$) pour lequel le système transite depuis un gaz d'excitons vers un plasma d'électrons-trous. Il est obtenu en calculant la constante diélectrique $\epsilon(\mathbf{q},\omega)$ dans le cadre de l'approximation RPA, pour un plasma dense, puis en construisant l'exciton avec l'interaction Coulombienne ainsi "habillée". La densité critique est obtenue lorsque l'exciton n'est plus lié. Deux modèles, aux domaines de validité distincts, sont réunis, ce qui revient à supposer la co-existence d'un exciton individuel et d'un plasma dense d'électrons-trous. La fiabilité de ce résultat est donc très limitée, comme l'ont montré les récents travaux de Monique Combescot [153].

L'intérêt des travaux théoriques présentés dans cette partie est de dépasser cette approche trop réductrice du régime intermédiaire. Dans chaque cas, en partant de la limite dense, des processus d'interaction (des diagrammes) sont introduits pour former l'exciton et en étudier les propriétés. Il est à noter que l'exciton ne peut être obtenu

en introduisant l'interaction Coulombienne entre un électron et un trou spécifique de manière perturbative, la théorie de perturbations étant inapte à fournir des états liés. En termes de diagrammes, cela correspondrait à la sommation d'un nombre fini d'échelles (ou processus d'interaction), et en particulier la perturbation au premier ordre correspondrait à un diagramme à une seule échelle. Il est donc nécessaire dans chaque modèle de sommer ces diagrammes à tous les ordres en perturbation, de manière analogue aux exemples présentés en figure. 5.1.c et d. Ces sommations sont réalisées en résolvant une équation intégrale, parfois appelée équation de Bethe-Salpeter ou de Dyson, représentée schématiquement sur la figure. 5.1.e.

5.1.2 La statistique des porteurs: liquide de Fermi ou de Tomonaga-Luttinger?

La nature de la statistique des porteurs dans les systèmes unidimensionnels est elle aussi âprement débattue. Un système d'électrons est en dimension 2 ou 3 régi par une distribution de Fermi-Dirac du facteur d'occupation en fonction de l'énergie. A température nulle, cette distribution présente en particulier une discontinuité au niveau de Fermi μ .

Mais ce n'est pas le cas dans les systèmes unidimensionnels d'électrons en interaction. Ceux-ci sont décrits par la théorie des liquides de Tomonaga-Luttinger [148, 149]. Ils ne présentent en particulier pas de discontinuité dans leur distribution à température nulle, et les excitations élémentaires, dont certaines sont des objets de statistique fractionnaire, sont différentes des excitations de la mer de Fermi. Ce modèle n'est cependant pas parfaitement valide car il est basé sur des interactions à courte portée, alors que les interactions Coulombiennes entre électrons sont à longue portée. De plus, à température finie et en présence de mécanismes de diffusion (par des impuretés ou autres), la différence entre les deux modèles est beaucoup moins marquée [141]. La signature du liquide de Luttinger est uniquement prévue dans les spectres de diffusion Raman inélastique et certaines expériences de transport, et les résultats expérimentaux sur les fils quantiques [150] et les nanotubes de carbone [151] ne permettent pas de conclure de manière intangible à ce jour [142].

Dans le cas des fils quantiques photo-excités, ce sont des paires électron-trou qui sont créées. Lorsque ces paires sont liées en excitons, le gaz d'excitons ainsi formé est a priori décrit par une statistique de Bose dans la limite des faibles densités, et s'en écarte lorsque la densité augmente en raison du caractère quasi-boson des excitons (cf paragraphe suivant [153]). Sous forte excitation, s'il se forme un plasma d'électrons-trous, deux gaz de fermions coexistent (électrons et trous) et doivent être décrits par la théorie des liquides de Tomonaga-Luttinger. Néanmoins à température finie et sur les échantillons actuels de fils quantiques, on ne s'attend pas à des différences importantes et expérimentalement mesurables entre les propriétés optiques du liquide de Fermi et celles du liquide de Tomonaga-Luttinger de paires électron-trou [139].

5.1.3 Les modèles théoriques dans les fils quantiques

Nous allons ici brièvement présenter quatre modèles développés récemment, en termes aussi simples qu'ils peuvent être compliqués. Ils ont deux points communs: ils ne s'intéressent qu'aux électrons et aux trous de la première sous-bande, en supposant que les autres sous-bandes sont suffisamment éloignées en énergie; l'interaction des électrons et des trous est décrite par une équation intégrale (Fig. 5.1.e). Les différences entre les

5.1 Aperçu des théories à N corps dans les fils quantiques

modèles se situent dans la manière d’habiller les particules et les interactions — c’est-à-dire dans les processus et les diagrammes retenus pour décrire l’interaction —, et dans les méthodes de calcul, tant analytiques que numériques.

Le modèle de S. Benner et H. Haug

Partant de l’hypothèse que l’essentiel des effets à N corps est dû à la présence du plasma d’électrons-trous, l’écrantage statique (dépendant seulement du vecteur d’onde \mathbf{q}) est calculé dans l’approximation RPA [136]. L’énergie des porteurs habillés, et donc la renormalisation du gap, supposée indépendante du vecteur d’onde des porteurs, est alors évaluée en fonction de la densité. L’exciton est enfin calculé par l’équation de Bethe-Salpeter appliquée aux électrons et trous habillés interagissant par l’interaction Coulombienne habillée.

Les résultats théoriques sont adaptés à l’interprétation de résultats expérimentaux obtenus sur des fils quantiques InGaAs (voir sec. 5.3.4), et ne sont pas présentés de manière générique. En particulier, la stabilité de l’exciton et la nature de l’émission — plasma ou exciton — ne sont pas discutés. Pour des densités de porteurs supérieures à 5.10^5 cm^{-1} , le potentiel chimique des porteurs libres devient inférieur à l’énergie du pic de luminescence, indiquant que l’émission est associée au plasma électrons-trous, ce qui laisse présager une transition de Mott à cette densité, sans que cela ne soit affirmé explicitement.

Le modèle de D.W. Wang et S. Das Sarma

L’interaction Coulombienne est habillée dans l’approximation RPA avec écrantage dynamique (dépendant de ω) [139]. La dispersion des énergies des électrons et des trous libres est alors calculée (approximation dite GW), les électrons et les trous étant habillés par l’interaction avec le plasma. La renormalisation du gap est ainsi obtenue en fonction de la densité de porteurs. L’exciton est enfin calculé par l’équation de Bethe-Salpeter appliquée aux électrons et trous habillés interagissant par l’interaction Coulombienne habillée. A la différence du modèle précédent, la renormalisation du gap n’est pas supposée indépendante du vecteur d’onde, et l’écrantage est dynamique.

Ce modèle prédit, pour des fils GaAs en T, que la renormalisation du gap est compensée par l’écrantage de la liaison excitonique à $\pm 2 \text{ meV}$ près. En particulier les courbes de dispersion des porteurs libres et des excitons se rejoignent, donnant lieu à une transition de Mott dans le système, à une densité $n = 2.10^5 \text{ cm}^{-1}$, c’est-à-dire $n a_X \approx 0,2$. Au-delà de cette densité, l’exciton, même s’il n’est plus liant, est encore visible en absorption dans un petit domaine de densité ($0,2 < n a_X < 0,6$), puis seul le plasma d’électrons-trous persiste. Il n’est pas prévu de gain dans le spectre d’absorption, quelle que soit la densité de porteurs.

Le modèle de M. Stopa

Il ne considère qu’un gaz d’électrons en interaction et non un plasma d’électrons-trous [140]. La dispersion des énergies des électrons est calculée par une technique différente — la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) — mais selon les mêmes approximations que dans le modèle précédent. Il est à noter que cette théorie est développée en première quantification, et que son interprétation en terme de diagrammes n’est pas directe. Un trou est alors injecté dans le gaz d’électrons, pour former l’exciton. La modification du

gaz d'électrons par la présence du trou est prise en compte dans son ensemble. De plus, l'orthogonalité de l'état électronique lié avec les états libres est assurée par le modèle, affaiblissant l'écrantage de la liaison Coulombienne.

Comme le précédent, ce modèle prédit une annulation presque parfaite des effets de renormalisation du gap et d'écrantage de l'exciton. Cependant, l'écrantage est traité différemment et il n'est pas prévu d'annulation de l'énergie de liaison de l'exciton, qui reste toujours liant, jusqu'à une densité $n a_X = 3$. Aucune transition de Mott n'est donc prévue dans ce modèle.

Le modèle de C. Piermarocchi et F. Tassone

Ce modèle tient compte dès le début de l'exciton dans sa formulation [138]. Il est basé lui-aussi sur l'équation de Bethe-Salpeter pour construire l'exciton. Mais ici l'interaction Coulombienne est habillée par la présence non seulement du plasma d'électrons-trous, mais aussi des excitons, de manière auto-cohérente (self-consistent ladder approximation, SCLA), ce qui permet de s'affranchir des limites de l'approximation GW. Le système n'est à aucun moment projeté sur des états d'électrons-trous liés ou libres. Au-delà de l'énergie des quasi-particules et du spectre d'absorption, les spectres de luminescence sont aussi calculés, permettant une comparaison plus aisée avec les résultats expérimentaux. Le point faible de ce modèle est cependant d'utiliser une interaction entre porteurs à courte portée (sur site, $\delta(\mathbf{r})$), ce qui induit une sur-estimation des collisions exciton-exciton et modifie vraisemblablement de manière non négligeable les résultats quantitatifs.

Dans ce modèle la renormalisation du gap et l'écrantage ne peuvent être distingués formellement de manière simple. L'énergie du pic de luminescence (comme celui d'absorption) varie de manière non négligeable à partir de $n a_X = 0,1$. Elle augmente d'environ 30 % de l'énergie de liaison de l'exciton seul, soit $\approx 5 \text{ meV}$, jusqu'à $n a_X = 0,4$, limite supérieure des calculs présentés. Cependant, comme dans le modèle de D.W. Wang et S. Das Sarma, il semble, même si les auteurs n'en font pas la remarque, que l'exciton devienne anti-liant pour $n a_X > 0,15$, l'estimation faite de la renormalisation du gap amenant les électrons et les trous à une énergie inférieure à celle du pic de luminescence ! Enfin, les spectres d'absorption font apparaître du gain autour de la transition excitonique à toutes les densités de porteurs, celui-ci devenant non négligeable pour $n a_X > 0,1$.

Approche en terme d'excitons

Il est à noter que les quatre modèles présentés précédemment sont adaptés à l'étude d'un système d'électrons-trous dans un régime de densité intermédiaire à forte, soit du fait des approximations effectuées (RPA), soit en raison de la lenteur de la convergence numérique à faible densité pour le quatrième modèle. En effet pour des faibles densités de porteurs ($n a_X \ll 1$), c'est l'approche excitonique adoptée dans les travaux de Monique Combescot qui est la plus efficace. Dans ce modèle, dont une présentation accessible est fournie dans la référence [152], les objets de base sont les excitons. En seconde quantification, leurs opérateurs s'écrivent en fonction des opérateurs d'électrons (a^+) et trous (b^+)

$$B_{\nu, \mathbf{q}}^+ = \sum_{\mathbf{k}} \langle \nu | \mathbf{k} \rangle a_{\mathbf{k}+m_e \mathbf{q}/(m_e+m_h)}^+ b_{\mathbf{k}-m_h \mathbf{q}/(m_e+m_h)}^+,$$

où ν et \mathbf{q} désignent l'état excitonique et son vecteur d'onde respectivement. Les excitons interagissent entre eux par deux types de processus, représentés en fig. 5.2 : les collisions Coulombiennes (électron-électron, trou-trou et électron-trou) et les échanges de particules

5.1 Aperçu des théories à N corps dans les fils quantiques

entre deux excitons, donnant lieu à une interaction de type “Pauli” entre excitons, qui reflète le caractère non parfaitement bosonique des excitons.

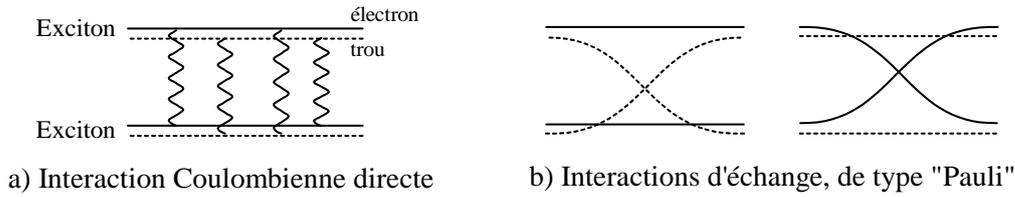


FIG. 5.2 – Diagrammes de Feynman des interactions exciton-exciton dans le régime dilué. (a) Interaction Coulombienne. (b) Interaction d'échange, de type “Pauli”. Les traits pleins représentent les électrons et les pointillés les trous.

Le caractère bosonique imparfait des excitons peut être estimé en comparant le commutateur de deux excitons $[B_i^+, B_j^+]$ à la valeur $\delta_{i,j}$ attendue pour des bosons parfaits, cet écart étant relié au terme d'interaction de “Pauli” introduit précédemment. Si l'on considère alors que le gaz d'excitons disparaît lorsque ceux-ci ne constituent plus des particules bien définies et échangent sans cesse leurs électrons et trous entre eux, le critère de Mott est affaibli et devient $100 n a_X \approx 1$ dans les systèmes de dimensions 2 et 3 [153, 154]. Qu'en est-il en dimension 1 ? Nous pouvons nous attendre à un résultat similaire dans les fils quantiques, le préfacteur numérique n'ayant pas été évalué à ce jour.

5.1.4 En guise de conclusion

L'existence d'une transition de Mott est vivement débattue et dépend de la définition qui lui est donnée : du point de vue des théories à N corps traitant les corrélations Coulombiennes entre charges libres, elle se produit lorsqu'un électron et un trou artificiellement distingués des autres particules ne peuvent plus former d'état liant, et la densité critique est telle que $n a_X = 0,1 - 1$. Dans les théories à N corps traitant des interactions entre excitons, la transition peut être identifiée lorsqu'il n'est plus possible d'associer un électron et un trou particuliers comme formant un exciton, et le critère de Mott est affaibli ($n a_X \approx 0,01$). Dans les deux modèles, il existe un régime intermédiaire de densité très difficile à décrire car les modèles du gaz dilué d'excitons et du plasma d'électrons-trous libres n'y sont pas valides. La comparaison de ces théories avec les résultats expérimentaux pose de nombreux problèmes, car ces derniers reflètent les propriétés optiques du système qui sont difficilement atteintes dans les modèles. De plus, une même théorie peut prédire pour un même régime de densités de porteurs une transition de Mott, dans la mesure où l'exciton n'est plus lié, et une luminescence et une absorption de type excitonique [138] ! Enfin, le rôle de la localisation n'est jamais introduit dans ces modèles théoriques, alors qu'il est déterminant dans les systèmes expérimentaux comme le montrent les expériences présentées dans ce chapitre.

5.2 Les fils en régime 0D

5.2.1 Spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation

La figure 5.3 présente l'évolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation, dans un échantillon en régime localisé (M304). L'excitation est réalisée par un laser à TiSa, à 705 nm , soit environ $1,76 \text{ eV}$, en résonance avec la transition e3h3, et la température de l'échantillon est de 11 K . Le spectre présente à basse puissance d'excitation ($P = 15 \text{ W.cm}^{-2}$) des pics fins d'intensité similaire, nommés A, B et C, et quelques pics d'intensité moindre, chaque pic correspondant à la recombinaison radiative d'un niveau fondamental de boîtes quantiques de tailles différentes présentes dans la zone excitée.

Lorsque la puissance d'excitation augmente, le spectre de luminescence perd progressivement ses structures pour former une raie inhomogène, d'une largeur de 12 meV environ. Plus précisément, les pics fins observés à faible puissance voient leur intensité diminuer relativement aux autres pics, et la raie large augmente progressivement, formant un fond continu. De plus, il apparaît un nouveau pic à basse énergie, nommé A2, dont l'intensité intégrée croît de manière surlinéaire avec la puissance d'excitation.

L'intensité intégrée de la raie, ainsi que celle des pics A, B, C et A2, est représentée en fonction de la puissance d'excitation sur la figure 5.4. L'intensité de la raie de luminescence est linéaire avec la puissance d'excitation sur tout le domaine étudié. Cela implique que la recombinaison se fait de manière radiative quelle que soit la puissance, ou plus rigoureusement, que la proportion de recombinaisons non radiatives, très difficile à évaluer et dont nous ne tenons pas compte, n'augmente pas lorsque la densité de porteurs augmente. Ce comportement linéaire de l'intensité intégrée avec la puissance d'excitation n'est observée que si l'excitation est réalisée de manière résonante dans les transitions du fil, par un laser TiSa ou à colorant. Si l'échantillon est excité directement par un laser Argon, les porteurs sont créés dans les barrières et l'intensité intégrée est sous-linéaire (en $P^{0,7}$). Cela montre que dans ce dernier cas la capture des porteurs par le fil n'est pas totale, et qu'elle dépend de la puissance d'excitation et des processus de diffusion des porteurs dans les barrières.

L'intensité des pics A, B et C, présents à basse puissance, est elle aussi relativement linéaire avec la puissance d'excitation ($\propto P^{0,9}$), mais celle des pics A et B sature pour des puissances excédant 10^4 W.cm^{-2} , et décroît même à la plus forte puissance. A partir de cette puissance seuil, les excitons sont créés plus rapidement qu'ils ne se recombinent radiativement. Ils ne peuvent relaxer vers le niveau fondamental, qui est encore occupé. L'émission de photons depuis l'état fondamental est alors limitée par le temps de recombinaison radiative. Cette saturation peut être modélisée de manière simple en écrivant l'intensité d'un pic comme $A * (1 - \exp(-(P/P_1)^\alpha))$, avec par exemple pour la boîte B $P_1 \approx 2,6 \pm 0,3 \text{ kW.cm}^{-2}$. Le coefficient α permet de rendre compte du comportement légèrement sous-linéaire de l'intensité des pics à faible puissance d'excitation, et vaut 0,9 pour les pics A, B et C. La courbe correspondante est représentée pour les pics A et B sur la figure 5.4.

Nous pouvons ainsi obtenir une calibration de la densité de porteurs créés en fonction de la puissance d'excitation. En l'absence d'effet de saturation, la puissance P_1 correspondrait à la présence d'un exciton dans la boîte B en moyenne. Par une règle de trois, nous obtenons la puissance à laquelle le nombre d'excitons présents dans la zone excitée

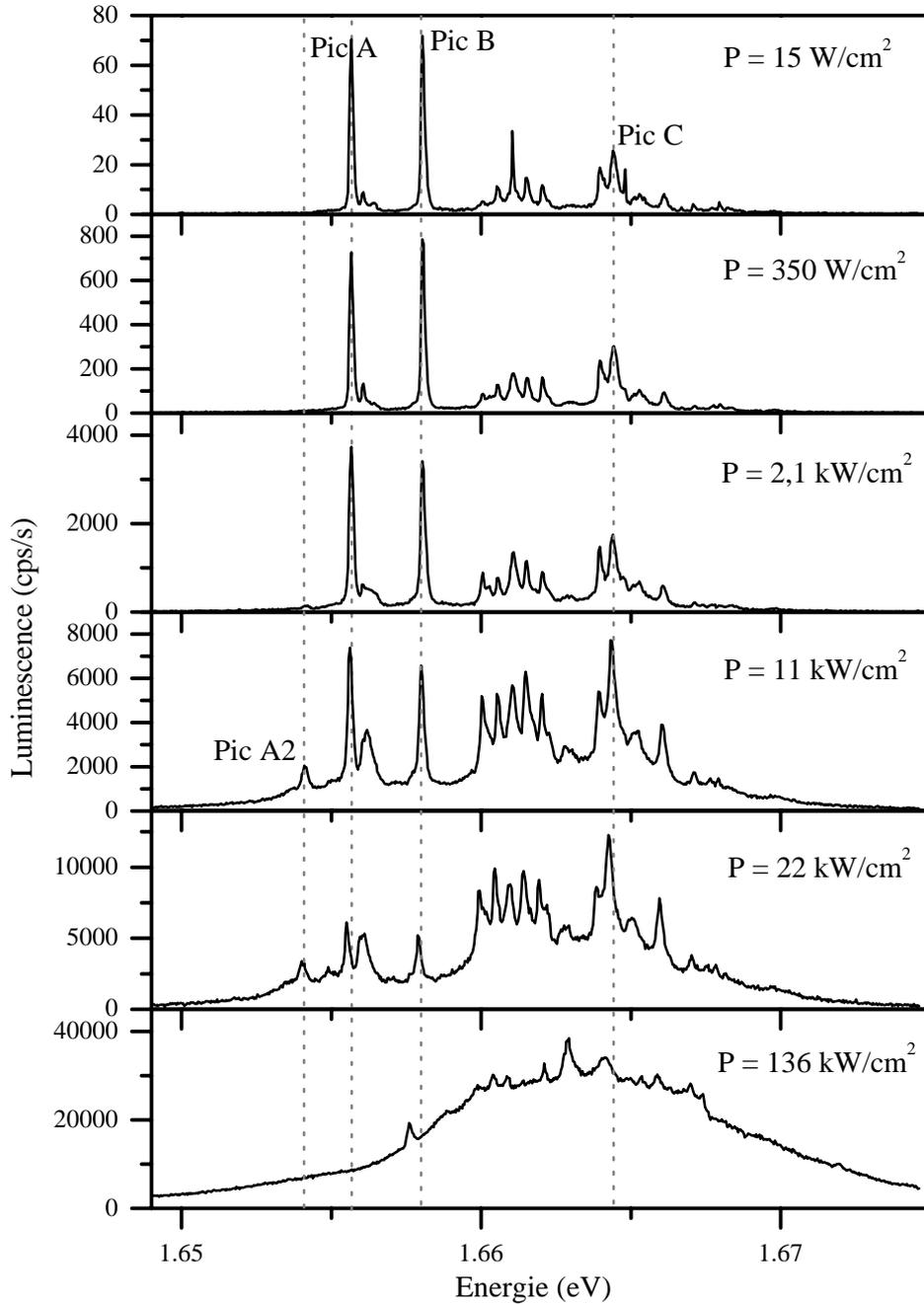


FIG. 5.3 – Evolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation, pour un échantillon en régime 0D (M304). Excitation par un laser TiSa (1,76 eV). $T = 11$ K.

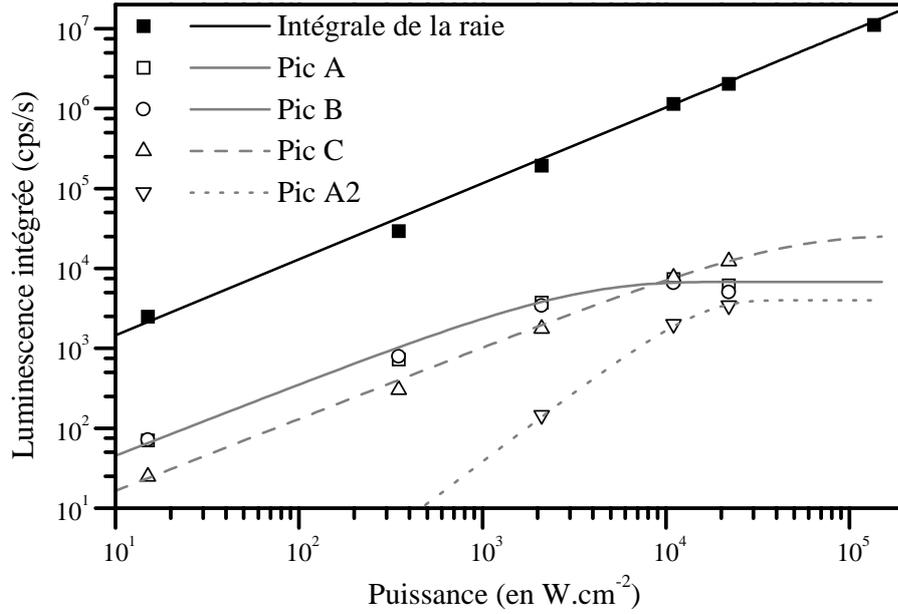


FIG. 5.4 – Intensité intégrée des pics présents sur la Fig. 5.3 en fonction de la puissance d’excitation, et intensité totale de la raie. Les courbes en traits pleins correspondent au modèle de saturation simple.

est en moyenne égal à 1 : $P_0 = I_{pic\ B}/I_{totale}P_1$. Dans le cas présent, le pic B représente 15 % de la raie à basse puissance, et on en déduit $P_0 \approx 400\ W.cm^{-2}$. Cette calibration de la densité de porteurs en fonction de la puissance d’excitation nous sera utile par la suite : le nombre d’excitons présents en moyenne dans la zone excitée à une puissance P est simplement donné par P/P_0 . La calibration est précise dans le cas considéré, mais la puissance P_0 ainsi trouvée dépend de l’échantillon étudié et de la longueur d’onde d’excitation, et peut varier de 50%. Néanmoins, nous n’avons pas réalisé cette calibration lors de chaque expérience et utiliserons tout au long du mémoire la valeur de P_0 que nous venons de calculer, dans les fils quantiques en régime 0D comme 1D, tout en sachant que la valeur absolue de la densité de porteurs n’est alors connue qu’à un facteur 2 près.

5.2.2 Le biexciton

Le pic A2 apparu à basse énergie a une intensité environ bilinéaire avec la puissance d’excitation (l’exposant de la puissance est en fait $\alpha = 1,8$). Ce type de raie n’est pas toujours présent sur les spectres d’un même échantillon. Elle ne peut correspondre à l’émission d’états excités d’une boîte quantique car son énergie est inférieure à celle des états fondamentaux. Nous pouvons d’ailleurs noter qu’il n’apparaît pas de nouveaux pics dans le reste du spectre à forte puissance, et qu’il ne semble donc pas se produire d’émission depuis les états excités des boîtes, ce que Joël Bellessa avait déjà démontré en analysant conjointement des spectres d’excitation de la luminescence (μ PLE) et de luminescence à forte puissance [23].

Nous associons cette raie à l’émission d’un biexciton, i.e. une molécule formée de deux excitons, depuis la boîte dont l’état fondamental à un exciton correspond au pic A. Pour démontrer que cette émission provient de la même boîte quantique que celle du pic associé à l’état fondamental, nous avons réalisé une expérience de luminescence résonante

en fonction de la puissance sur cette boîte. L'expérience a en fait été réalisée sur un autre fil quantique du même échantillon, à un endroit où nous avons identifié une raie de biexciton, comme le montrent les spectres (a) et (b) de la figure 5.5. Nous avons isolé l'un de ses états excités en réalisant le spectre d'excitation de la luminescence de son état fondamental A' à faible puissance d'excitation. Le spectre (c) présente la luminescence résonante lorsque l'excitation est réalisée sur cet état excité, indiqué par une flèche à 1,6637 eV. Ce spectre fait apparaître le pic A' seul, même si une structure non attribuée à 1,658 eV persiste sur le spectre. En particulier, le pic B' visible en luminescence non résonante et associé à une boîte quantique voisine est absent du spectre résonant. Le spectre (d), réalisé en excitation résonante à forte puissance, fait apparaître le pic A'2. Son intensité est relativement faible, en raison de la faible absorption sur l'état excité par rapport à celle des transitions du fil. Cette expérience prouve donc que les pics A' et A'2 observés en excitation non résonante sont associés à une seule et même boîte quantique, et nous permet d'exclure l'hypothèse selon laquelle le pic A'2 serait dû à la recombinaison radiative d'un exciton piégé dans une boîte voisine de la zone excitée, vers laquelle l'exciton aurait diffusé à forte puissance.

Le biexciton, noté X_2 ci-après, est l'état lié de deux excitons couplés par l'interaction Coulombienne. De la même manière que l'exciton est l'analogue de l'hydrogène en physique atomique, le biexciton est l'analogue de la molécule de dihydrogène. Son énergie de liaison peut s'écrire $E_{X_2}^{Coul} = (2E_X - E_{X_2})$, où E_X désigne l'énergie d'un exciton seul et E_{X_2} celle du biexciton. Elle peut donc être mesurée dans le spectre de luminescence comme la différence d'énergie entre les deux pics A, d'énergie E_X et A2, d'énergie $E_{X_2} - E_X$. Lors de la recombinaison radiative du biexciton, l'état initial est celui du biexciton et l'état final celui d'un exciton seul et un photon. L'énergie de liaison du biexciton est de 1,6 meV pour le pic A2 et de 2,6 meV pour le pic A'2. Ces valeurs sont relativement représentatives des énergies de liaison de biexcitons observées sur cet échantillon M304, ainsi que sur d'autres échantillons en régime 0D tels que le M288.

L'énergie de liaison du biexciton a été calculée théoriquement par L. Banyai et al. dans les fils quantiques [30]. Etant donné les masses effectives de l'électron et du trou et le rayon du fil quantique dans notre structure, ces travaux prévoient que les énergies de liaison du biexciton et de l'exciton sont dans un rapport de 0,1 environ, soit une énergie de liaison du biexciton de 2 meV. Cette valeur est comparable à celle que nous avons mesuré.

Nous devons cependant noter que si la raie considérée est indubitablement associée à un état à deux excitons présents dans la même boîte quantique, il est probablement partiellement justifié de l'appeler biexciton. Un "vrai" biexciton est en effet lié uniquement par l'interaction Coulombienne, alors que dans notre cas les excitons sont contraints à "cohabiter" dans la même boîte quantique par le potentiel de localisation, et l'interaction Coulombienne ne contribue qu'à abaisser l'énergie de l'état à 2 excitons (elle peut être traitée au premier ordre en perturbation). Ceci explique les variations de l'énergie de liaison du X_2 observées de boîte à boîte, la fonction d'onde de l'état à deux excitons étant en partie déterminée par le confinement. L'énergie de liaison du X_2 peut même devenir négative pour certaines petites boîtes. Une observation vient cependant réhabiliter l'appellation de biexciton : le pic qui lui est associé n'est pas observé de manière systématique, mais uniquement associé à des pics isolés sur le flanc basse énergie de la raie, ce qui laisse supposer que toutes les boîtes quantiques ne sont pas en mesure d'accueillir deux excitons, mais seulement les plus grandes d'entre elles, dont la taille est supérieure à celle de la molécule biexcitonique. Nous sommes donc amenés à penser que le biexciton n'apparaît

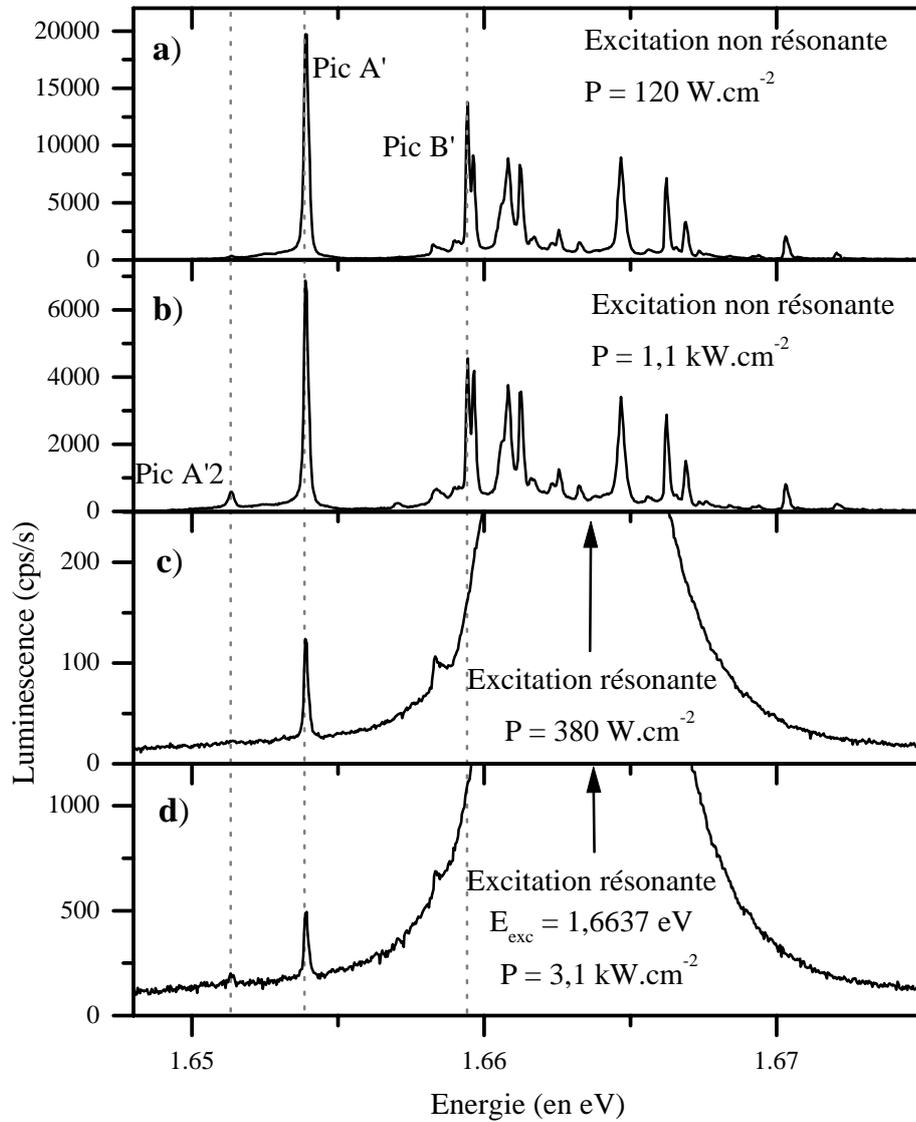


FIG. 5.5 – Mise en évidence d'un pic A'2 associé à un biexciton, sur le même échantillon que pour la fig. 5.3: (a), (b) en excitation non résonante à 1,76 eV, à faible et forte puissance resp.; (c) et (d) en excitation résonante sur un état excité du pic A', à faible et forte puissance resp. $T = 11 \text{ K}$.

que dans des états localisés suffisamment étendus pour que la molécule n’y soit pas trop contrainte.

Le biexciton a été récemment observé dans d’autres systèmes. Dans les boîtes quantiques, les états à plusieurs excitons (2 voire 3 à 5) ont été mis en évidence par Dekel et al. [157] et Kulakovskii et al. [88], mais dans ce cas la liaison des excitons est uniquement due au confinement des porteurs, et l’interaction Coulombienne ne fait que corriger l’énergie des états à plusieurs excitons, comme l’ont confirmé les études numériques. Ces expériences ont aussi mis en évidence la structure fine du biexciton et les règles de sélection en polarisation de la lumière émise. Malheureusement nous n’avons jamais observé de biexciton associé à des boîtes présentant une levée de dégénérescence des états de spin, et n’avons donc pas pu étudier la structure fine du biexciton. Dans les puits quantiques, le biexciton a été observé dans les états localisés par les défauts d’interface, dans une situation très similaire à la nôtre [158].

Le biexciton a, parallèlement à nos expériences, été mis en évidence par A. Crottini par imagerie en champ proche (SNOM), sur un échantillon très similaire au nôtre [159]. L’énergie de liaison mesurée était de $1,2 \text{ meV}$. Il est cependant à noter qu’il provient d’une “très grande boîte quantique”, et donc d’états plutôt délocalisés. Ce résultat sera par conséquent discuté dans la section suivante, qui concerne les fils quantiques en régime 1D.

5.2.3 Le fond continu : A propos du “plasma électrons-trous”

L’apparition du fond continu pour des puissances d’excitation supérieures à 10^4 W.cm^{-2} (Fig. 5.3) a été attribuée à la luminescence du plasma électron-trou [136, 158]. Ce plasma est attendu théoriquement dans un fil quantique parfait (en régime 1D) lorsque la densité d’excitons est trop grande et que ceux-ci sont dissociés en électrons et trous par les collisions. Cependant, dans des fils en régime 0D, les porteurs sont à basse densité localisés dans les boîtes, et ne peuvent entrer en collisions aussi simplement que des excitons libres. Le nombre de porteurs présents dans la zone excitée est à cette puissance d’environ 25, soit une densité de porteurs en jeu de l’ordre de $2,5.10^5 \text{ cm}^{-1}$, soit encore $n a_X \approx 0,2$, étant donné la calibration que nous avons établie au début de ce paragraphe, et les états des différentes boîtes présentes dans la zone excitée sont vraisemblablement remplis à cette densité, ainsi que les premiers états délocalisés du fil. Les énergies des états localisés sont donc modifiées, par interaction Coulombienne avec les excitons présents dans les boîtes voisines ou les excitons délocalisés. Le fond continu étant centré à l’énergie des états localisés, il est probablement émis depuis les excitons encore localisés, alors qu’il serait centré à plus haute énergie s’il provenait des états délocalisés ou bien d’électrons et de trous libres.

Ainsi, le fond continu peut vraisemblablement être associé à la recombinaison radiative des excitons localisés dans les boîtes, dont les énergies ne forment plus en présence de quelques excitons un spectre discret de pics clairement identifiables mais un ensemble de transitions indiscernables en μPL . Ceci peut être interprété comme l’effet des collisions Coulombiennes entre excitons, qui sont élastiques et laissent le centre de gravité de la raie inchangé. Mais l’existence d’un plasma d’électrons-trous ne semble pas nécessaire pour expliquer l’apparition du fond continu, dans un régime où la distance moyenne entre excitons est encore grande devant leur rayon de Bohr.

5.2.4 Les collisions de type effet Auger dans une boîte

Il est ici utile de mentionner les expériences réalisées par Joël Bellessa en forte excitation de manière résonante sur une boîte quantique [160]. L'échantillon étudié (M127) est similaire à celui présenté dans cette section (M304), mais présente un plus grand nombre de pics en μPL , et donc vraisemblablement des états localisés dans de plus petites boîtes. Après avoir identifié ses états excités en μPLE , une boîte quantique a été excitée en résonance sur l'un d'entre eux. Le spectre de luminescence résonante ne présente donc que la raie associée à l'état fondamental de la boîte quantique à faible excitation. A forte excitation apparaissent dans ce spectre les pics associés aux états fondamentaux des boîtes quantiques voisines. Ce transfert d'excitons vers les boîtes voisines ne peut s'expliquer par effet tunnel, les distances entre boîtes étant trop importantes. Il doit donc se réaliser par l'intermédiaire des états délocalisés. Le mécanisme proposé, présenté sur la figure 5.6, est un effet de type Auger : lorsque deux excitons sont créés sur l'état excité de la boîte quantique A, ils subissent une collision Coulombienne élastique au cours de laquelle l'un des excitons est transféré vers l'état fondamental de la boîte alors que l'autre est éjecté vers les états délocalisés. L'exciton éjecté est alors piégé dans une boîte voisine, par exemple la boîte B, et se recombine depuis son état fondamental.

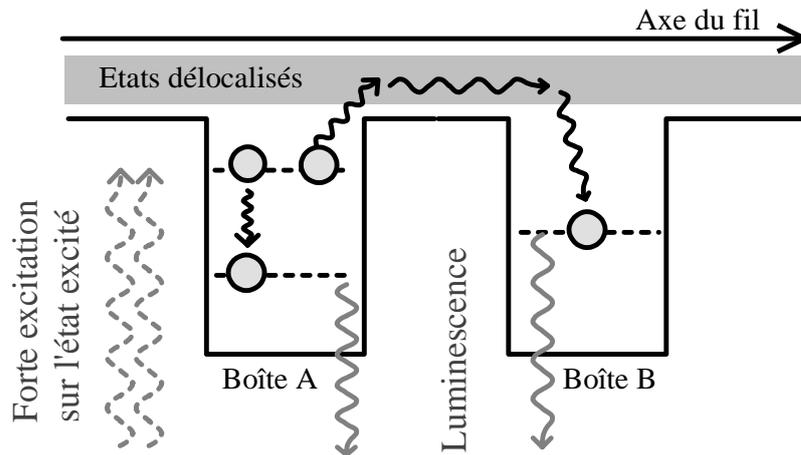


FIG. 5.6 – Représentation schématique du processus de collision Coulombienne de type Auger mis en évidence par J. Bellessa [160].

L'aspect dynamique du processus a été étudié en excitant l'état excité de la boîte par des impulsions picosecondes et détectant la luminescence résolue en temps depuis le fondamental de la boîte et de sa voisine, et il a été modélisé par un modèle cinétique incluant le remplissage des états et le mécanisme de collision. L'efficacité de la collision, dont le temps caractéristique mesuré est de l'ordre de 20 ps, est comparable à celle de la relaxation par émission de phonons acoustiques.

Au cours de ces expériences, il n'est pas apparu de raie à basse énergie, même à forte puissance. Le biexciton n'est donc pas stable dans la boîte considérée, ce qui explique que les excitons créés entrent en collision et que l'un d'entre eux soit éjecté. L'existence d'un biexciton et de l'effet Auger apparaissent ainsi comme la manifestation de l'importance des interactions Coulombiennes dans les grandes boîtes et les petites boîtes quantiques respectivement. La démonstration statistique de cette dépendance en fonction de la taille de la boîte représente malheureusement un travail beaucoup trop long et n'a pas été entreprise.

5.3 Les fils en régime 1D

Nous allons présenter dans cette étude trois séries d'expériences réalisées dans trois régimes de densité de porteurs :

- L'étude des spectres de luminescence sous excitation continue nous permettra de comprendre le comportement du gaz d'excitons lorsque le nombre de paires présentes simultanément dans un îlot est supérieur à 2, c'est-à-dire pour des densités n comprises entre 10^4 cm^{-1} et $1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$. La distance moyenne entre excitons est alors supérieure au rayon de Bohr $a_X^{1D} = 70 \text{ \AA}$ (cf Sec. 1.4) : $0,005 < n a_X^{1D} < 0,1$, et ce **régime de densités** sera qualifié de **“dilué”**.
- Le **régime de densités “intermédiaire”**, telles que $0,1 < n a_X^{1D} < 1$ (soit $1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1} < n < 1,5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$), sera aussi étudié sous excitation continue. Des expériences d'imagerie de la luminescence nous donneront accès aux propriétés de diffusion des porteurs, et compléteront les résultats obtenus en luminescence.
- Enfin, des expériences réalisées sous excitation impulsionnelle nous permettront d'atteindre le **régime** que nous qualifierons de **“dense”**, tel que $1 < n a_X^{1D} < 20$, soit $1,5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1} < n < 2,5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-1}$). Nous étudierons en particulier la dynamique temporelle de la luminescence à l'intérieur de la raie.

5.3.1 Le régime dilué

Dans les îlots “typiques”

Dans les fils quantiques en régime 1D, l'évolution du spectre de luminescence en fonction de la puissance d'excitation, i.e. de la densité de porteurs, dépend du type d'îlot considéré. Nous allons dans un premier temps présenter les résultats obtenus dans des îlots dits “typiques”, de longueur inférieure au micron, qui sont représentatifs de l'ensemble de l'échantillon (cf Fig. 3.10).

Les spectres présentés sur la figure 3.29 et reproduits sur la figure 5.7 en sont un bon exemple. Ils ont été obtenus sur l'échantillon NM79, qui présente un très bon alignement entre la direction du V et la direction cristallographique (cf Sec. 3.2.3). Deux îlots sont présents dans la zone excitée de $1 \mu\text{m}$, de longueurs de l'ordre de 500 nm . Ils donnent chacun lieu à une raie de luminescence lorentzienne (A et B) à faible puissance d'excitation. Les densités de porteurs indiquées sont déduites de la puissance d'excitation en utilisant la calibration établie au paragraphe 5.2.1, et sont indicatives.

Le biexciton Lorsque la puissance d'excitation atteint et dépasse la puissance $P_0 = 400 \text{ W.cm}^{-2}$ qui correspond à la présence d'un exciton en moyenne dans la zone excitée (cf Sec. 5.2.1), deux raies A2 et B2 apparaissent respectivement $1,5$ et $2,2 \text{ meV}$ en-dessous des raies A et B, qui ne sont pas associées à des îlots voisins et croissent de manière sur-linéaire avec la puissance d'excitation. Elles sont attribuées aux recombinaisons de biexciton de chacun des deux îlots.

Il peut paraître surprenant que les énergies de liaison des deux biexcitons soient différentes, alors que ces îlots sont de longueur très supérieure à l'extension du biexciton, qui est libre a priori. Les énergies de liaison de biexciton mesurées varient entre $1,3$ et $2,2 \text{ meV}$. L'explication la plus plausible à cette dispersion est l'existence de champs piézo-électriques internes (cf Sec. 3.4.1), propres à chaque îlot.

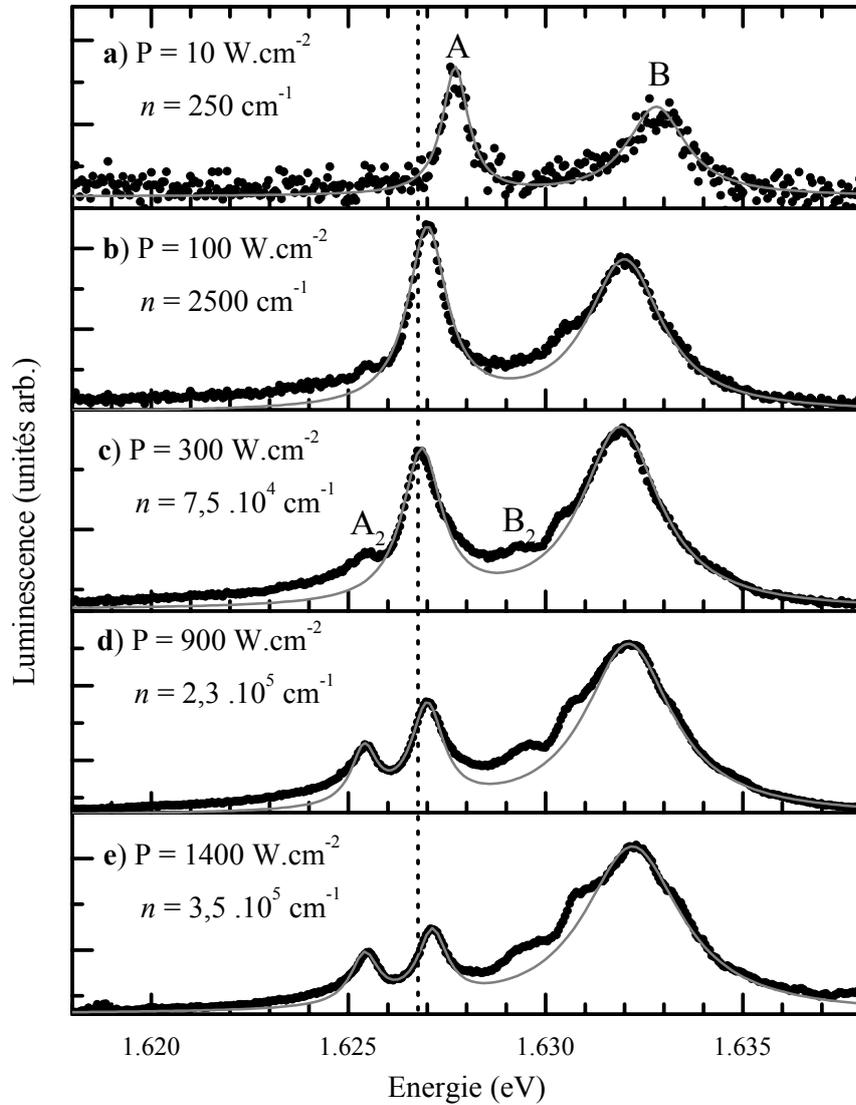


FIG. 5.7 – Evolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation, dans un îlot typique d'un fil quantique en régime 1D (NM79, même endroit que Fig. 3.10). Les spectres (points noirs) sont reproduits par des lorentziennes (courbes grises). Excitation par un laser à TiSa à 1,77 eV dans la transition $e\hbar4$. $T = 11$ K.

Les déplacements de raie Dans ce régime de densité, les raies lorentziennes associées aux îlots A et B subissent tout d’abord un déplacement vers le rouge de 1 meV , lorsque le nombre d’excitons présents en moyenne dans la zone excitée atteint 1, puis au-delà de 1, de $0,5\text{ meV}$ vers le bleu. Ces déplacements énergétiques se produisent dans tous les îlots, mais leur amplitude dépend de l’îlot considéré. En particulier, dans les îlots très étendus, ils sont plus faibles (au plus $0,5\text{ meV}$).

Les expériences réalisées sous très faible éclairage supplémentaire par un laser Hélium-Néon, décrites à la section 3.4.4, montrent que ces déplacements de raies sont dus aux interactions Coulombiennes entre les différents excitons présents dans l’îlot.

Dans les îlots très étendus

La dépendance des déplacements de raie en fonction de l’îlot considéré rendent leur interprétation et leur comparaison avec les modèles théoriques complexes. Pour cela, nous nous sommes plus particulièrement intéressés aux îlots étendus, dans lesquels les résultats obtenus sont identiques d’îlot à îlot car les excitons sont moins sensibles à la longueur finie des îlots.

La figure 5.8 présente l’évolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d’excitation dans un îlot très étendu ($3\ \mu\text{m}$) du même échantillon (NM79). L’excitation est réalisée par un laser à TiSa, à $1,75\text{ eV}$ dans la transition e3h3 du fil. L’expérience a été réalisée à un endroit de l’échantillon déjà caractérisé en imagerie (Fig. 3.6, $x = 16\ \mu\text{m}$). Le spectre de luminescence n’est pas sensible à l’illumination par un laser He-Ne, contrairement au cas des îlots “typiques” étudiés au paragraphe précédent.

Le spectre à basse puissance d’excitation ($P = 0,7\text{ W/cm}^2$) est uniquement constitué d’un pic principal A et de son épaulement haute énergie. Deux pics B et C peuvent être distingués sur le flanc haute énergie, d’intensités 10 et 30 fois moindres respectivement, associés à deux îlots voisins. Le pic D, 24 meV au-dessus de la transition A, d’intensité 100 fois plus faible, correspond à un îlot voisin présentant une variation d’épaisseur de 2 monocouches sur l’interface (001) (cf Sec. 4.3.2). En effet, comme nous l’avons expliqué à la fin de la section 3.1.1, la résolution spatiale du dispositif de μ -PL est de $0,8\ \mu\text{m}$ à mi-hauteur, mais la fonction de réponse spatiale présente des ailes d’amplitude 10 fois inférieure au maximum qui ne nous permettent pas d’isoler parfaitement un îlot de ses voisins, même si sa longueur est de $3\ \mu\text{m}$. Notons que l’intensité du pic D croît de manière sous-linéaire avec la puissance d’excitation, comme cela est le cas dans les expériences de macro-luminescence présentées au paragraphe 4.3.2.

Lorsque la puissance d’excitation est augmentée, nous retrouvons les deux effets observés dans les îlots typiques : une raie associée au biexciton (A2) croît de manière sur-linéaire avec la densité de porteurs, et la raie A se déplace vers le bleu de $0,2\text{ meV}$ pour n variant de 1 à $1,4 \cdot 10^5\text{ cm}^{-1}$. L’intensité intégrée de la raie de luminescence est linéaire avec la puissance d’excitation, garantissant d’une part que l’absorption à l’énergie d’excitation ne sature pas et d’autre part qu’il n’apparaît pas de canaux de recombinaison non-radiative.

Le biexciton Lorsque le nombre d’excitons présents en moyenne dans l’îlot atteint 1, la raie A2 de biexciton apparaît $1,5\text{ meV}$ en-dessous de la transition A. À mesure que la puissance d’excitation augmente, des raies similaires (B2 et C2) apparaissent, qui sont associées aux îlots voisins B et C, dans lesquels le nombre d’excitons dépasse aussi 1.

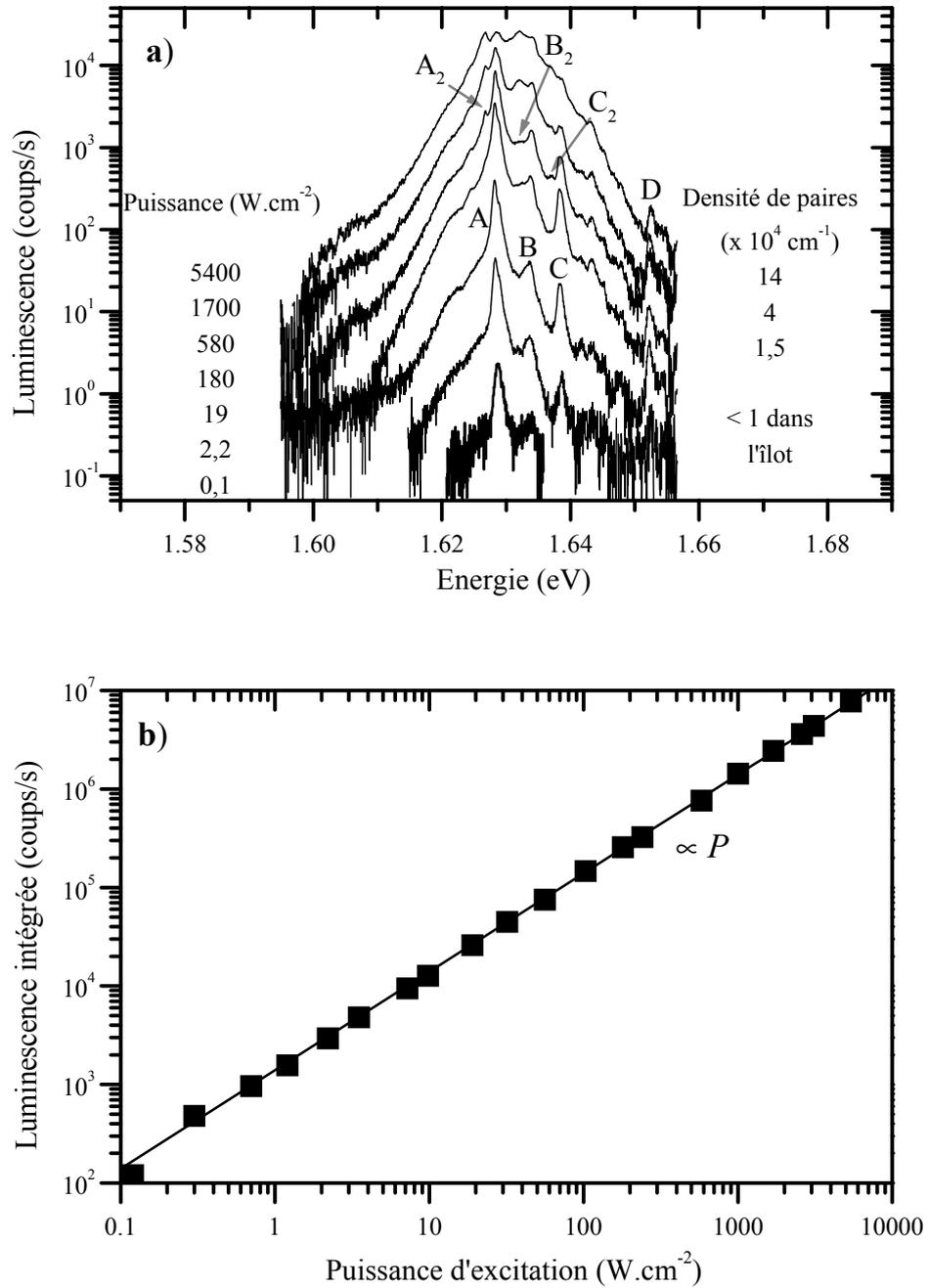


FIG. 5.8 – (a) Evolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation, pour un échantillon en régime 1D (NM79, même endroit que Fig. 4.15 et Fig. 3.6, $x = 16 \mu\text{m}$). Excitation par un laser à TiSa à 1,74 eV dans la transition $e3h3$. $T = 11 \text{ K}$. (b) Intensité intégrée de la raie en fonction de la puissance d'excitation.

Nous pouvons ici poursuivre la discussion entamée au paragraphe 5.2.2. L'énergie de liaison du biexciton, de $1,5 \text{ meV}$, est la même à 10% près dans tous les îlots étendus. Elle est comparable à la valeur de $1,2 \text{ meV}$ mesurée dans une très grande boîte quantique d'extension 600 nm observé en SNOM dans un fil quantique en régime 0D [159]. La valeur théorique déduite du modèle de Banyai [30], soit 2 meV , est pour sa part légèrement plus grande, mais l'accord est satisfaisant car ce modèle est développé pour des fils quantiques isotropes et non des fils en V.

Les déplacements de raie Nous avons vu au paragraphe 3.4.4 que la raie A de luminescence se déplace faiblement et s'affine pour des puissances d'excitation extrêmement faibles (inférieures à 1 W.cm^{-2}) en raison des temps de piégeage très longs (50 ns) dans des états non radiatifs. Lorsque la puissance d'excitation est augmentée, le spectre de luminescence est ensuite invariant dans un domaine assez étendu, entre 1 et 100 W.cm^{-2} . Au-delà, plusieurs excitons sont présents simultanément dans l'îlot et la raie subit un déplacement vers le bleu de $0,2 \text{ meV}$ lorsque la densité de paires augmente de 10^4 à $1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$.

Comme dans le cas des îlots moins étendus, ce déplacement est attribué aux interactions Coulombiennes entre les excitons présents dans l'îlot. A la puissance d'excitation maximale, la densité de paires est telle que $n a_X^{1D} \approx 0,1$. Les pics associés aux transitions de l'exciton et du biexciton sont encore bien marqués, ce qui montre que les excitons sont encore des excitations stables dans le système. Mais le contraste de la raie excitonique sur le fond sous-jacent est fortement diminué. Ceci est dû à un transfert d'intensité au profit de la transition de biexciton, à un léger élargissement (de 1 à $1,5 \text{ meV}$) de la raie excitonique, mais surtout à un transfert au profit du fond large sous-jacent. Ce fond peut être attribué ou bien à la recombinaison de paires libres, i.e. au plasma d'électrons-trous, ou bien à la recombinaison d'excitons assistée par des collisions Coulombiennes, avec les autres excitons comme avec les porteurs libres.

5.3.2 Le régime intermédiaire

De manière à mieux comprendre les résultats présentés au paragraphe précédent, nous avons souhaité obtenir des densités de porteurs plus importantes dans le fil quantique. Nous avons donc modifié le montage expérimental en substituant une lame semi-réfléchissante, de coefficient de réflexion égal à 50%, à la lame de verre S , de coefficient de réflexion égal à 4% (cf Fig. 2.1 et Sec. 2.1.1). Nous avons ainsi pu atteindre des puissances d'excitation de 1 mW sur l'échantillon, au lieu de $80 \text{ }\mu\text{W}$ auparavant.

Spectres de luminescence

Les spectres de luminescence présentés sur la figure 5.9 ont été obtenus dans un îlot très étendu ($2 \text{ }\mu\text{m}$) sur l'échantillon NM172, similaire à l'échantillon NM79. Comme dans le cas de la figure 5.8, le spectre est à basse puissance composé essentiellement de la raie excitonique A associée à l'îlot considéré, et de quelques raies associées (B, C, ...) aux îlots voisins excités dans les ailes de la tache d'excitation. Là encore, nous pouvons noter la présence d'une raie D, 18 meV au-dessus du pic principal, attribuée à un îlot présentant une fluctuation d'épaisseur de 2 monocouches.

Dans le régime dilué, le même comportement est observé pour des densités de porteurs inférieures à $1,2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$: la raie de biexciton A2 croît de manière sur-linéaire, et le

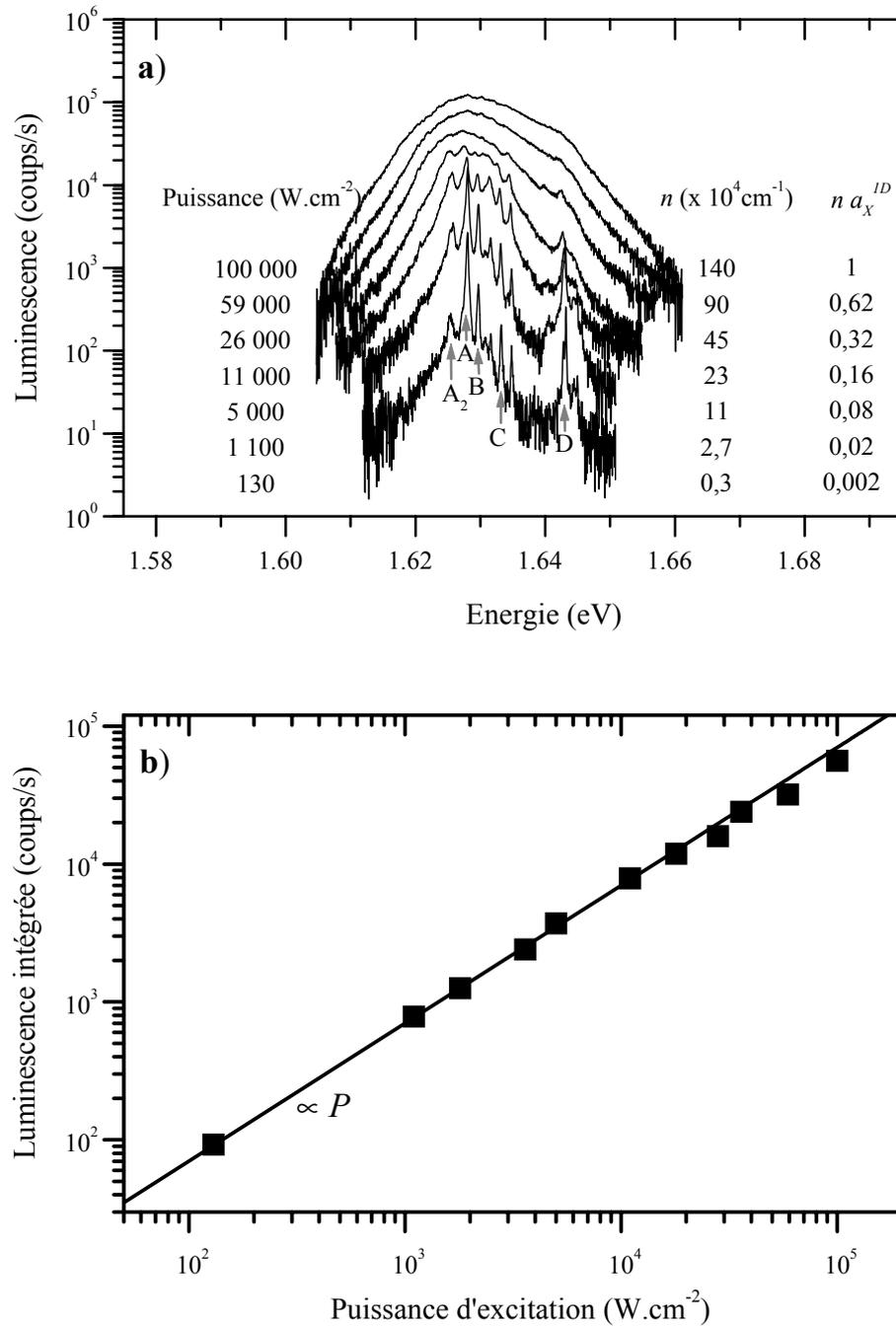


FIG. 5.9 – (a) Evolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation, pour un échantillon en régime 1D (NM172). Les densités de porteurs indiquées sont calculées en tenant compte de la diffusion des porteurs (cf Fig. 5.10). Excitation par un laser à Ti:Sa à 1,75 eV dans la transition $e3h3$; $T = 11$ K. (b) Intensité intégrée de la raie en fonction de la puissance d'excitation.

5.3 Les fils en régime 1D

maximum de la raie excitonique sature en se déplaçant de $0,1 \text{ meV}$ vers le bleu, alors que le fond sous-jacent augmente.

Mais un changement qualitatif important intervient dans le spectre pour les densités supérieures à $2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$, i.e. pour $n a_X^{1D} > 0,1$: les pics associés aux transitions d'exciton et de biexciton s'élargissent, se déplacent de manière rigide de $0,5 \text{ meV}$ vers le rouge et disparaissent au profit de la raie large sous-jacente. Ils ont presque totalement disparu à la plus forte densité, $n = 1,4 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$, c'est-à-dire quand $n a_X^{1D} = 1$. Le domaine $0,1 < n a_X^{1D} < 1$ correspond au régime que nous qualifions d'intermédiaire.

Les spectres obtenus aux plus fortes densités ($n > 5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$) sont composés dans leur partie haute énergie de deux domaines et présentent un changement de pente (en échelle logarithmique) à $1,643 \text{ eV}$. Entre $1,63$ et $1,64 \text{ eV}$, lorsque la densité augmente, la pente du spectre diminue, ce qui est la signature d'un processus de remplissage de bande. Au contraire, dans le domaine $1,645 - 1,66 \text{ eV}$, la queue haute énergie des spectres est une exponentielle de pente constante correspondant à une température effective $T' \approx 50 \text{ K}$.

Diffusion des porteurs

Nous avons mesuré, lors des expériences présentées sur la figure 5.9, la distribution spatiale de la luminescence émise par notre technique d'imagerie de la luminescence (cf Sec. 2.3.1). L'image est obtenue sur la caméra CCD du spectromètre-imageur, avec une résolution de $1,5 \mu\text{m}$. Le profil spatial de la luminescence est bien reproduit par une gaussienne (cf Fig. 4.35), dont la largeur est reportée sur la figure 5.10 en fonction de la puissance d'excitation.

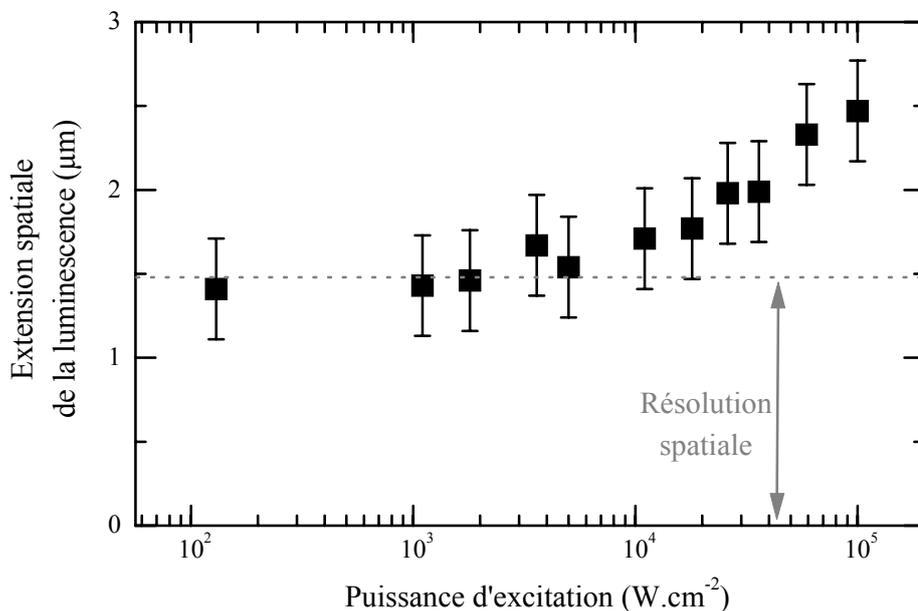


FIG. 5.10 – Diffusion des porteurs lors de l'expérience présentée sur la figure 5.9. La largeur de la gaussienne reproduisant le profil spatial de la luminescence est présentée en fonction de la puissance d'excitation.

Pour des puissances d'excitation inférieures à 10^4 W.cm^{-2} , la mesure du profil de la luminescence est limitée par la résolution spatiale de notre dispositif, de $1,5 \mu\text{m}$. Au-delà de cette puissance, la largeur de la zone d'émission croît avec la puissance d'excitation, montrant que les porteurs diffusent le long du fil avant de se recombiner. Ceci nous

invite à ré-évaluer les densités linéiques de porteurs dans le fil. Jusqu'à présent, nous avons simplement supposé que la densité de porteurs est proportionnelle à la puissance d'excitation, et donc que les porteurs ne diffusent pas le long du fil. Nous constatons que cette approximation est valide pour des puissances d'excitation inférieures à $10^4 W.cm^{-2}$, correspondant à des densités de paires inférieures à $2,5.10^5 cm^{-1}$. Pour des puissances plus élevées, les densités de porteurs indiquées sur la figure 5.9 ont été calculées en divisant le nombre de paires créées par la largeur de la gaussienne, et sont donc des densités moyennes à l'intérieur de la zone excitée.

Ce processus de diffusion est la signature d'un changement de nature des excitations. Les excitons sont en effet très peu mobiles dans le fil quantique, même lorsque la température de l'échantillon est augmentée jusqu'à $70 K$ (cf Fig. 4.35). Les collisions Coulombiennes entre excitons, de type dipôle-dipôle, sont beaucoup moins efficaces que les collisions avec des porteurs libres, expliquant qu'aucune diffusion ne soit observée pour des densités inférieures à $10^5 cm^{-1}$ [75, 161]. La diffusion des porteurs est donc vraisemblablement due à la présence de porteurs libres dans le fil, qui d'une part sont plus mobiles, et d'autre part interagissent de manière plus efficace entre eux et avec les excitons — si tant est que l'on puisse encore distinguer les deux espèces. La densité critique de ce processus est telle que $n a_X^{1D} \approx 0,1$, et correspond au changement qualitatif observé dans les spectres de luminescence au paragraphe précédent.

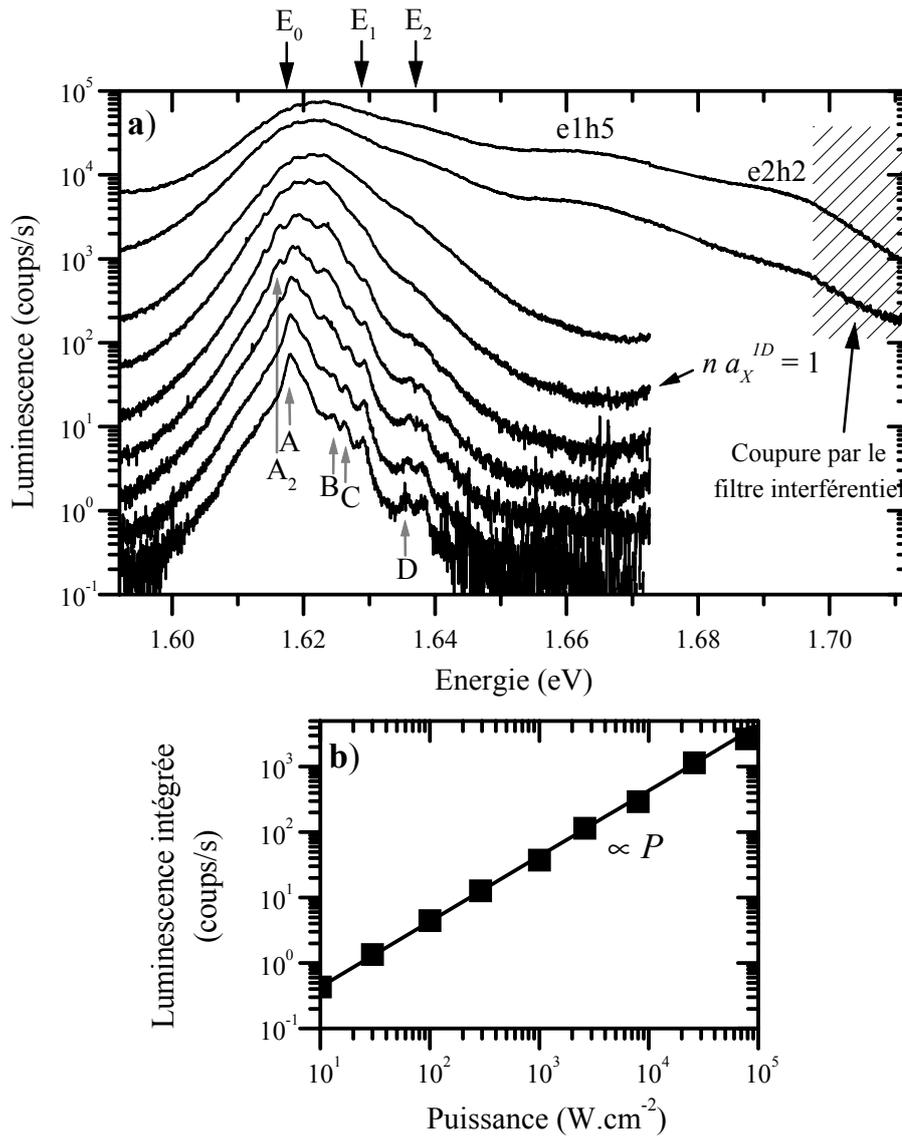
5.3.3 Le régime dense

Nous avons souhaité mesurer la dynamique temporelle de la luminescence, de manière à observer les éventuels changements induits par la présence de porteurs libres dans le système. Nous avons ainsi pu atteindre des densités de paires plus élevées, car à puissance moyenne d'excitation équivalente, le nombre de paires créées lors d'une impulsion est 40 fois supérieur au nombre de paires présentes en moyenne dans la zone excitée sous excitation continue. Ce facteur correspond au rapport de la période des impulsions ($12 ns$) et du temps de vie radiatif ($\approx 300 ps$ à $T = 11 K$). Notons que les porteurs sont toujours créés dans le fil quantique, à $1,77 eV$ dans la transition e4h4, et qu'il n'y a pas de pertes liées à la diffusion et à la recombinaison dans les barrières, contrairement aux expériences réalisées sous excitation par un laser à Argon [162].

Spectres de luminescence

La figure 5.11 présente les spectres de luminescence obtenus dans un îlot très étendu ($2 \mu m$) dans un fil quantique en régime 1D du même échantillon que précédemment (NM172) mais à un endroit différent. A faible puissance d'excitation, le spectre est composé du pic A associé à l'îlot et de pics satellites B, C et D attribués aux îlots voisins. Le pic A est plus large que sous excitation continue, ce que nous avons observé de manière générale dans tous les îlots étendus et n'expliquons pas à ce jour. Lorsque la puissance d'excitation augmente, les structures fines associées aux excitons et biexcitons disparaissent au profit du fond, l'évolution se produisant dans le même régime de densité.

Nous pouvons comparer les spectres obtenus pour $n = 1,4.10^6 cm^{-1}$, soit $n a_X^{1D} \approx 1$, sous excitation continue (C, Fig. 5.9) et impulsionnelle (I) : le spectre I ne présente pas de rupture de pente à environ $20 meV$ au-dessus de l'énergie du maximum de la raie, contrairement au spectre C, et la pente (en échelle logarithmique) de la queue haute énergie est plus faible dans le spectre I ($T'_I \approx 75 K$, $T'_C \approx 50 K$). Cela montre que les distributions statistiques des porteurs dans les deux types d'expériences sont



Puissance d'excitation ($W.cm^{-2}$)	Densité de porteurs n (cm^{-1})	$n a_X^{1D}$
78 000	$2,5 \cdot 10^7$	20
26 000	10^7	7
8 000	$4 \cdot 10^6$	3
2 600	$1,4 \cdot 10^6$	1
1 000	$7,5 \cdot 10^5$	0,5
290	$2,7 \cdot 10^5$	0,2
100	10^5	0,07
30	$3 \cdot 10^4$	0,02
10	10^4	0,007

FIG. 5.11 – (a) Evolution du spectre de microluminescence en fonction de la puissance d'excitation, pour un échantillon en régime 1D (NM172). Excitation par un laser à TiSa à 1,77 eV dans la transition $e4h_4$; $T = 11$ K. Les densités de porteurs sont estimées en tenant compte de la diffusion des porteurs (cf Fig. 5.10) et sont indiquées dans le tableau, ainsi que les puissances d'excitation correspondant aux différents spectres. (b) Intensité intégrée de la raie en fonction de la puissance d'excitation.

différentes. Sous excitation continue, un régime permanent s'établit et les porteurs sont vraisemblablement à l'équilibre thermique entre eux mais ne peuvent relaxer toute leur énergie cinétique pour atteindre la température du réservoir de phonons. Sous excitation impulsionnelle, il est beaucoup plus difficile de définir un équilibre thermique et une température : à $t = 0$, les porteurs sont totalement hors d'équilibre, alors que ceux qui subsistent aux temps longs l'ont vraisemblablement atteint. Le spectre de luminescence correspond à une moyenne sur le temps et reflète une distribution statistique moyenne, qui est comme attendu plus "chaude" que sous excitation continue.

Aux plus fortes densités, le spectre montre que le remplissage de bandes est très important. La transition visible à $1,663 \text{ eV}$ correspond à la transition e1h5 visible sur les spectres de PLE (cf Fig. 1.18). Celle à $1,70 \text{ eV}$ correspond à e2h2, mais est tronquée par le filtre interférentiel utilisé dans cette expérience : il est probable que le spectre s'étende à plus haute énergie. L'excitation est réalisée à $1,77 \text{ eV}$ dans la sous-bande e4h4.

Dynamique temporelle

La figure 5.12 présente la dynamique temporelle de la raie de luminescence à la plus forte puissance d'excitation, soit $P = 8.10^4 \text{ W.cm}^{-2}$. L'évolution temporelle de la luminescence a été enregistrée à différentes énergies, correspondant aux flèches indiquées sur la figure 5.11. Elle présente un plateau de saturation très prononcé. La saturation persiste d'autant plus longtemps que l'énergie de détection est proche du maximum de la raie. Nous pouvons noter que dans les trois cas la montée du signal est très rapide ($0 < t < 50 \text{ ps}$), puis ralentie durant 200 ps , ce qui correspond vraisemblablement au temps d'établissement d'un régime de quasi-équilibre dans le système. Aux énergies E_1 et E_2 , le plateau n'est pas parfaitement plat, la montée très lente du signal entre 300 et 600 ps étant la signature de l'évolution lente de la distribution statistique des porteurs.

La figure 5.12.a présente aussi l'évolution temporelle de la luminescence à l'énergie E_0 pour une puissance d'excitation dix fois plus faible. Celle-ci présente une légère saturation. Lorsque la puissance d'excitation est encore diminuée, dans le régime intermédiaire de densité, l'évolution temporelle est essentiellement mono-exponentielle.

Les phénomènes de saturation observés dans les résultats présentés sur la figure 5.12 sont dus au remplissage de la bande, qui est visible dans le spectre correspondant (Fig. 5.11). A l'issue de l'impulsion laser ($t \approx 0$), la densité de porteurs dans le fil est d'environ $2,5.10^7 \text{ cm}^{-1}$, ce qui correspond à $n a_X^{1D} \approx 20$. A cette densité-ci, un plasma électrons-trous hors d'équilibre s'est vraisemblablement formé. Nous pouvons estimer le remplissage des bandes d'électrons et de trous, à $t = 0$, en supposant dans un modèle très simplifié que la densité d'états dans ces bandes est caractérisée par les masses effective m_e et m_h des porteurs, et que chaque bande est dégénérée 2 fois en spin. La densité initiale de porteurs correspond dans ce cadre à un remplissage complet des bandes e1 et h1 sur plusieurs centaines de meV : le potentiel chimique μ des électrons et des trous est supérieur à l'énergie du bas de bande de quelques 100 meV . Les sous-bandes sont donc remplies et la luminescence est associée aux transitions verticales entre électrons et trous.

Au cours du temps, la densité de porteurs diminue au fur et à mesure de leur recombinaison. Nous l'avons représentée sur la figure 5.12.d en supposant en première approximation que le temps de décroissance de la luminescence sur l'ensemble de la raie

1. La description statistique du gaz uni-dimensionnel de porteurs est complexe (cf Sec. 5.1.2). Même lorsque la bande électronique est partiellement remplie, sa description en terme de liquide de Fermi n'est pas valide à 1D. C'est pourquoi nous ne parlerons pas de niveau de Fermi, mais simplement de potentiel chimique, cette dernière notion étant toujours bien définie dans le cadre du formalisme grand-canonique.

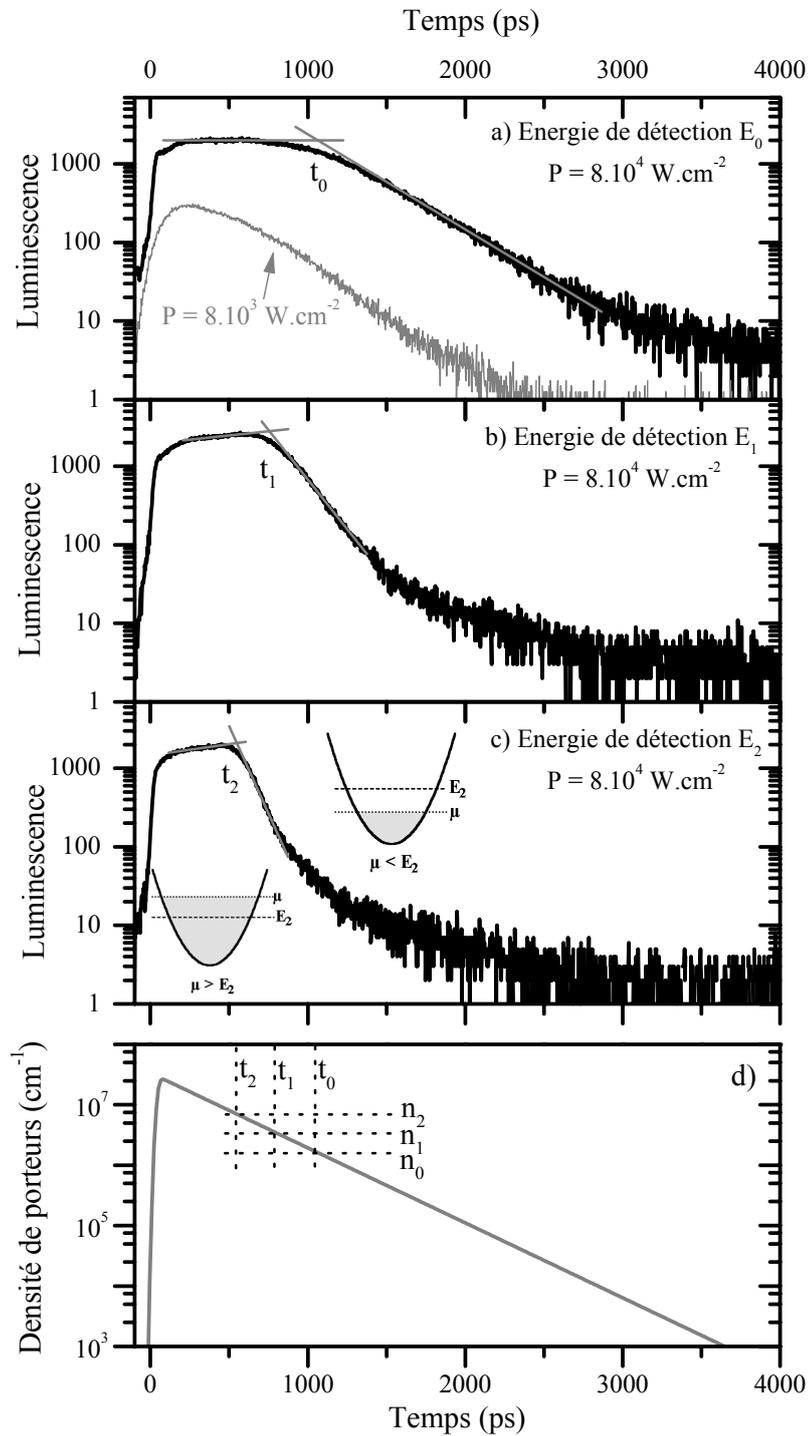


FIG. 5.12 – *Dynamique temporelle de la luminescence sous très forte excitation ($P = 8.10^4 \text{ W.cm}^{-2}$ à différentes énergies dans la raie (indiquées sur la figure 5.11). Excitation par un laser à TiSa à 1,77 eV dans la transition $e4h4$; $T = 11 \text{ K}$.*

est celui mesuré entre 1,5 *ns* et 2,5 *ns* sur la figure 5.12.a, c'est-à-dire 350 *ps*. Les bandes d'électrons et de trous se vident donc progressivement, et le potentiel chimique μ décroît. Tant que celui-ci est supérieur à l'énergie E de détection d'une valeur supérieure à $k_B T$, le facteur de remplissage à l'énergie E est de l'ordre de 1 et l'intensité de la luminescence est saturée, donnant lieu au plateau. Au voisinage de $\mu = E$, lorsque μ décroît, le facteur de remplissage à l'énergie E diminue et la luminescence chute rapidement. Ceci est résumé par les schémas accompagnant la figure 5.12.c. Pour $E - \mu \gg k_B T$, le facteur de remplissage est théoriquement donné par le facteur de Boltzmann : les porteurs à l'énergie E sont à l'équilibre thermique avec le bas de la bande. Nous pouvons cependant noter que le temps de décroissance à $t = 2$ *ns* est deux fois plus long aux énergies E_1 et E_2 qu'à l'énergie E_0 , ce que nous n'expliquons pas.

Nous pouvons ainsi avoir accès à l'évolution du potentiel chimique au cours du temps dans cette expérience. La densité de porteurs est calculée aux instants t_0 , t_1 et t_2 (indiqués sur la figure 5.12) auxquels le potentiel chimique μ est approximativement égal à l'énergie de détection de la luminescence résolue en temps. Le potentiel chimique est reporté sur la figure 5.13 en fonction de la densité de porteurs ainsi déduite².

La densité n_0 pour laquelle $\mu = E_0$ est particulière³ : étant donné que la raie ne subit aucun déplacement pour $n < n_0$, nous pouvons supposer que l'énergie du bas de bande est, en première approximation, égale à E_0 . La densité n_0 correspond à la densité critique au-delà de laquelle les bandes d'électrons et de trous se remplissent, i.e. le plasma d'électrons et de trous se forme⁴. Elle est telle que $n_0 a_X^{1D} \approx 0,8$. Lorsque la densité dépasse n_0 , le potentiel chimique satisfait rapidement à la condition $\mu - E_0 > k_B T$ et le plasma devient dégénéré⁵ : le système est dans le régime dense. Lorsque la densité est au contraire inférieure à n_0 , les éventuels porteurs libres peuvent former un plasma d'électrons-trous, tout en coexistant avec des excitons : c'est le régime intermédiaire de densités. Notons que l'équation de Saha [16, p. 269] qui donne les proportions de paires libres et d'excitons n'est valable que pour un gaz non dégénéré et en équilibre thermique, et ne s'applique pas dans ce régime.

5.3.4 Comparaison avec les résultats expérimentaux antérieurs

Les non-linéarités optiques des fils quantiques sous forte excitation ont été tout d'abord étudiées dans des fils GaAs et InGaAs peu confinés (12 *meV* entre les deux premières sous-bandes) et présentant donc une faible localisation (Stokes shift de 1 *meV*) [136, 155]. Le remplissage des différentes sous-bandes confinées y est mis en évidence, et les énergies des transitions associées sont indépendantes de la densité de porteurs. Ces

2. Il serait intéressant de pouvoir étudier le régime transitoire de l'ensemble de la raie grâce à une streak caméra, qui nous donnerait accès d'une part au temps de décroissance global de la luminescence, et d'autre part à la dépendance du potentiel chimique en fonction de la densité de manière plus complète.

3. Nous avons été très agréablement surpris d'obtenir une valeur de la densité critique n_0 en accord raisonnablement bon avec les théories ($n a_X^{1D} \approx 0,3$) et avec notre sens physique ($n a_X^{1D} < 1$). Nous devons en effet rappeler que les valeurs absolues des densités que nous avons estimées sont indicatives, et reposent sur la calibration effectuée dans les fils quantiques en régime 0D au paragraphe 5.2.1. Par ailleurs, les valeurs relatives des densités estimées dans cette section sont beaucoup plus précises, ce qui valide les comparaisons que nous avons effectuées entre les différentes expériences présentées.

4. De manière générale, un plasma est un gaz neutre de particules chargées *complètement ionisées* [49, Complément III.H, §I.1, p. 434].

5. Un gaz de porteurs est dégénéré lorsque le potentiel chimique est supérieur au bas de bande E_0 ($\mu - E_0 \gg k_B T$) [49, chap. VI, §I.B.3, p. 793]. Le facteur d'occupation des états d'énergie inférieure à μ (tels que $\mu - E \gg k_B T$) est égal à 1.

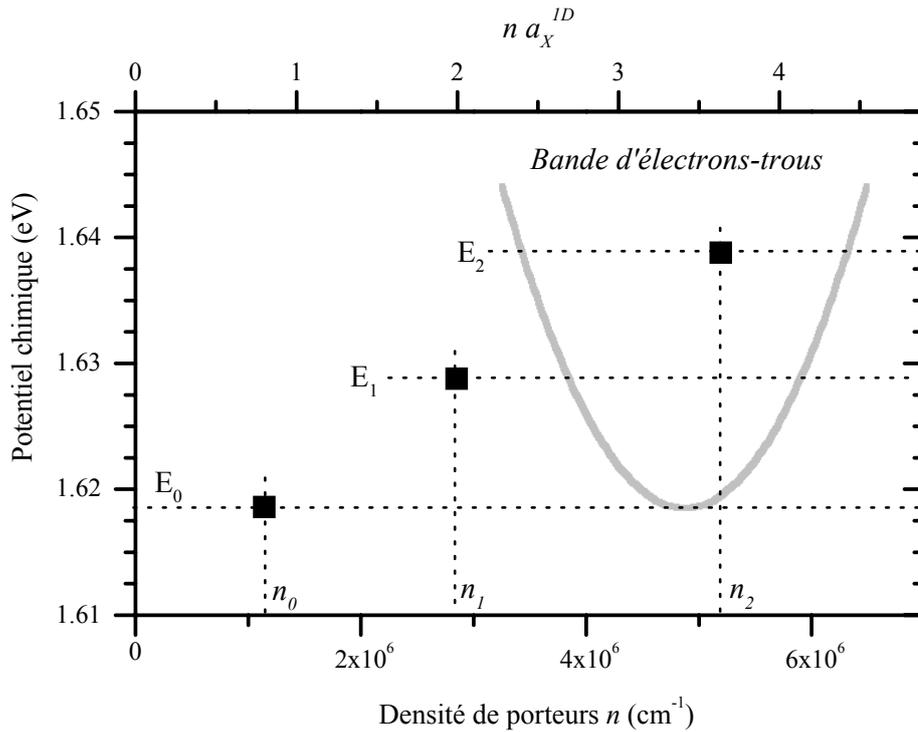


FIG. 5.13 – Potentiel chimique des porteurs en fonction de leur densité, d'après les résultats présentés sur la figure 5.12.

résultats sont interprétés dans le cadre du modèle de S. Brenner et H. Haug [136], permettant de remonter à la renormalisation du gap. Le potentiel chimique est estimé en simulant les spectres dans le cadre du modèle, mais n'est pas mesuré directement.

Des expériences réalisées sous excitation impulsionnelle par Ambigapathy et al. sur des fils en V [163], mieux confinés (20 meV entre les sous-bandes), ont montré que l'énergie de la transition ne varie pas en fonction de la densité de porteurs a été confirmée jusqu'aux plus hautes densités atteintes ($3 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$, soit $n a_X^{1D} > 3$). Cependant le signal de luminescence résolu temporellement est mono-exponentiel même à haute densité, alors qu'il présente deux temps caractéristiques dans le cas des puits quantiques, associés à la recombinaison rapide de paires électrons-trous puis à celle plus lente des excitons, lorsque la densité de porteurs a décré. Les auteurs en déduisent que la recombinaison est de nature excitonique même à forte densité et justifient leur conclusion d'une part par l'énergie de liaison de l'exciton, plus forte et moins écrantée dans les systèmes 1D que dans les systèmes 2D, et d'autre part par le facteur de Sommerfeld qui régit l'émission des porteurs libres, et qui est plus petit à 1D qu'à 2D (voir section 1.5.1).

Les rares études menées en microphotoluminescence se sont intéressées plus spécifiquement aux phénomènes à quelques excitons dans les fils, les spectres étant sans structure spécifique à forte densité. De faibles déplacements énergétiques des pics associés aux excitons localisés ont été rapportés [156] dans des fils quantiques en V de faible épaisseur (2,5 nm), très confinés et présentant donc une forte localisation. Ces déplacements s'accompagnent de l'apparition d'un fond continu, similaire à celui observé dans nos structures et associé à la présence d'un plasma électrons-trous. Ils ont été associés à la renormalisation du gap induite par le plasma. Des pics associés à des complexes multi-excitoniques apparaissent aussi lorsque le nombre de paires créées est supérieur à 1.

L'étude en champ proche (SNOM) de fils quantiques similaires aux nôtres a également mis en évidence l'existence de biexcitons, lorsque la longueur de localisation est suffisamment grande [159].

Enfin, l'effet laser observé sur des fils quantiques en cavité et sous forte excitation sont intimement liés à l'existence et la nature du gain dans le spectre d'absorption. Là encore, l'émission stimulée sous forte excitation a toujours été observée à la même énergie que celle de l'exciton sous faible excitation, laissant présager que les excitons sont à l'origine du gain [68, 164, 165, 166]. Nos résultats montrent au contraire que l'énergie de la transition n'est pas suffisante pour déterminer la nature des excitations dans le système.

5.3.5 Discussion

Pour mieux comprendre la nature du gaz de porteurs en fonction de sa densité, nous allons rappeler les résultats que nous avons obtenus dans les régimes limites, i.e. le gaz dilué d'exciton et le plasma dense d'électrons-trous. Puis nous étudierons l'évolution du système entre ces deux régimes, c'est-à-dire la transition de Mott depuis un état isolant d'excitons vers un état conducteur de porteurs libres. Cette discussion est résumée par le schéma 5.14.

Dans le régime dilué ($n a_X^{1D} \ll 1$), les paires électron-trou sont liées et forment des excitons, dont nous observons la luminescence. Dès que plus de deux paires sont présentes dans un même îlot, il se forme aussi des biexcitons, qui se recombinent à une énergie inférieure à celle de la transition excitonique, leur énergie de liaison étant de l'ordre de $1,5 \text{ meV}$. Les pics associés à ces deux types de transitions, qui attestent du caractère excitonique des excitations du système, persistent jusqu'à une densité telle que $n a_X^{1D} \approx 0,1$.

Dans le régime dense ($n a_X^{1D} > 1$), la saturation initiale observée dans l'évolution temporelle de la luminescence est la signature de la luminescence d'un plasma électron-trou. En effet, dans l'hypothèse d'une luminescence de type excitonique, l'ensemble de la raie serait associée aux seuls excitons de bas de bande (en $K=0$) et l'évolution temporelle de la luminescence serait identique quelque soit l'énergie de détection à l'intérieur de la raie. Nous avons au contraire montré que les plateaux enregistrés sont plus courts à haute énergie, et reflètent l'évolution temporelle du potentiel chimique dans le système.

Entre ces deux régimes, le système a subi une transition de Mott qui peut être décrite, d'après notre étude, en plusieurs étapes :

Lorsque la densité de porteurs est inférieure à $n a_X^{1D} \approx 0,1$, dans le régime que nous avons qualifié de dilué, nous observons la formation de biexcitons et un petit déplacement vers le bleu, inférieur à $0,5 \text{ meV}$, de la transition excitonique, qui est une signature des interactions Coulombiennes entre excitons. Deux processus peuvent expliquer la montée du fond sous-jacent aux pics, sans que nous puissions les départager à ce jour : le fond peut correspondre à la recombinaison des excitons assistée par collisions Coulombiennes ou bien à la luminescence de porteurs libres, minoritaires dans le système.

Dans le régime intermédiaire de densité ($0,1 < n a_X^{1D} < 0,8$), nous avons attribué la diffusion des porteurs et l'élargissement des raies associées aux transitions de l'exciton et du biexciton à la présence de porteurs libres dans le système, l'exciton restant stable dans ce régime.

A partir de la densité $n_0 \approx 1,1 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$, i.e. $n_0 a_X^{1D} \approx 0,8$, les bandes d'électrons et de trous se remplissent et le système est dans un état de plasma d'électrons-trous, dont

5.3 Les fils en régime 1D

nous avons pu mesurer le potentiel chimique. La densité critique n_0 peut être considérée comme la densité critique de Mott du système de paires électrons-trous.

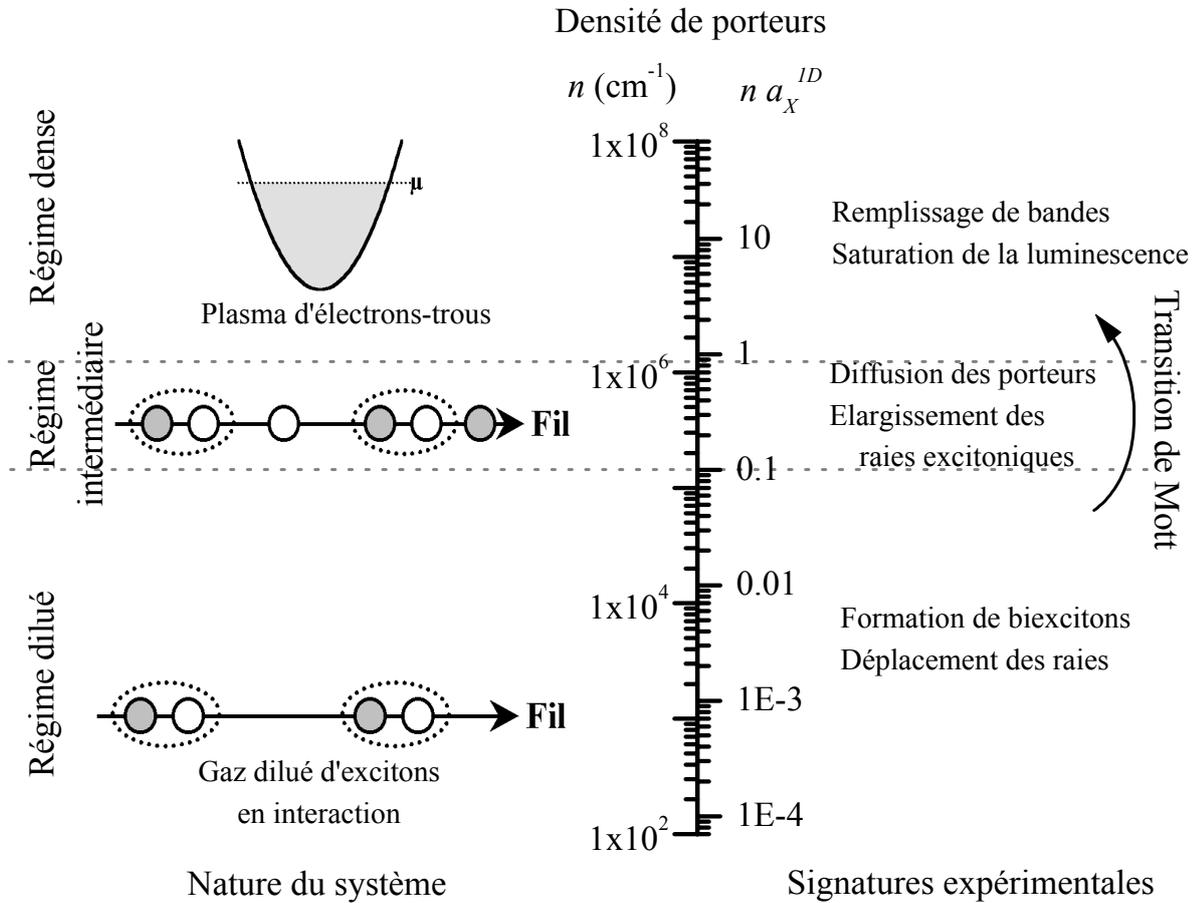


FIG. 5.14 – Nature du système en fonction de la densité de porteurs, et signatures expérimentales.

Nos résultats sont dans leurs grandes lignes bien reproduits par les modèles de C. Piermarocchi et al. et D.W. Wang et al.. En particulier, comme dans le modèle de C. Piermarocchi qui traite sur un pied d'égalité excitons et paires libres, nous n'observons pas d'apparition d'une structure associée au plasma d'électrons-trous à une énergie distincte de celle de l'exciton, même dans le régime intermédiaire de densités. Nous aurions pu en effet nous attendre à observer une raie à plus haute énergie associée aux porteurs libres, et à ce que la différence d'énergie entre les transitions d'exciton et de porteurs libres devienne nulle lorsque les excitons ne sont plus stables.

Les spectres de luminescence obtenus dans les différents régimes de densité montrent que l'énergie du maximum de la raie ne varie pas pour $n_0 a_X^{1D} < 1$. Dans le régime dilué, celle-ci est égale à l'énergie des excitons, c'est-à-dire à l'énergie du bas de bande diminuée de l'énergie de liaison excitonique. Dans le régime dense, elle est au contraire égale à l'énergie du bas de bande, qui a été diminuée en raison des interactions Coulombiennes d'une quantité appelée la renormalisation du gap. Nos résultats confirment donc que l'énergie de liaison de l'exciton est environ égale à la renormalisation du gap — autrement dit, la renormalisation du gap compense approximativement l'écrantage de la liaison excitonique. Le modèle de D.W. Wang prévoit effectivement que l'énergie de la transition se déplace vers le bleu de seulement 5% de l'énergie de liaison, soit 1 meV. Le modèle de

C. Piermarocchi prédit un déplacement plus important vers le bleu, de 30% de l'énergie de liaison, soit 6 meV environ. Notons que dans le deuxième cas les spectres de luminescence calculés ne présentent pas de maximum bien marqué, et qu'ils sont relativement similaires aux nôtres bien que la position du maximum soit différente.

Ces deux modèles décrivent difficilement le gaz d'excitons dans le régime dilué. La densité critique entre le régime intermédiaire et le régime dense, qui correspond selon notre définition à l'égalité entre le potentiel chimique et l'énergie du maximum du spectre de luminescence, est $n a_X^{1D} = 0,2$ dans le modèle de D.W. Wang et $n a_X^{1D} = 0,4$ dans celui de C. Piermarocchi. Ces valeurs sont comparables à celles que nous avons estimées d'après nos résultats ($n_0 a_X^{1D} = 0,8$). Cette densité correspond à la formation d'un plasma dégénéré d'électrons-trous dans le système, c'est-à-dire à une transition de Mott. Nous avons cependant montré que cette transition n'est pas abrupte en fonction de la densité de porteurs, et que dans le régime intermédiaire $0,1 < n a_X^{1D} < 0,8$ les excitons et les paires libres cohabitent très vraisemblablement.

Conclusion

L'imagerie des propriétés spectroscopiques locales, par micro-photoluminescence, nous a permis de comprendre et d'analyser les propriétés de localisation dans les fils quantiques, et d'identifier les causes structurales de désordre. Nous avons ainsi mis en évidence les différences entre deux générations de fils quantiques. Dans la première, la rugosité des hétéro-interfaces impliquées dans le confinement des porteurs est importante et donne lieu à la localisation des excitons; le fil quantique, dit en "régime 0D", se comporte comme une collection de boîtes quantiques. Dans la deuxième génération, les fluctuations des hétéro-interfaces sont beaucoup plus rares (2 par μm dans les meilleurs échantillons) et les excitons sont délocalisés sur plusieurs centaines de nanomètres. Comme dans les puits quantiques de bonne qualité, chaque îlot peut alors être considéré comme une portion de fil quantique, justifiant l'appellation de "régime 1D". Nous pouvons noter que les propriétés spectroscopiques de ces deux générations d'échantillons sont peu différentes au premier abord, et que l'intérêt de cette étude résulte de la forte interaction entre la croissance et la compréhension microscopique des propriétés des hétérostructures.

L'essentiel des travaux présentés dans cette thèse se sont appuyés sur les nombreuses possibilités offertes par la technique de micro-photoluminescence. Celle-ci est en particulier apparue comme plus souple d'utilisation et plus efficace dans l'excitation et la collection du signal que son analogue en champ proche, le SNOM, et possède désormais dans notre dispositif les mêmes possibilités d'imagerie par balayage, avec une résolution inférieure, tout en permettant aussi de réaliser l'image de la luminescence émise. Elle nous a fourni des informations très complémentaires de celles obtenues en macro-luminescence. Elle nous a aussi constamment invité à partir d'un point de vue très microscopique pour comprendre les phénomènes en jeu. Enfin, elle nous a donné accès aux propriétés intrinsèques d'une boîte quantique en régime 0D ou d'un îlot en régime 1D. Cette approche "nano-objet individuel" ne se limite bien entendu pas aux seuls fils quantiques, et nous avons pu étudier d'autres systèmes de la même manière, par exemple des nanocristaux CdSe.

Les molécules polymères de 3BCMU, développées au sein du laboratoire, se sont aussi révélées être particulièrement adaptées à l'étude d'une molécule unique en micro-photoluminescence. Dans ce système semiconducteur organique, chaque molécule constitue un fil quantique long de plusieurs microns et très fortement confiné. Les premiers résultats que nous avons obtenus confirment leur grande qualité structurale et le caractère uni-dimensionnel des excitations électroniques. Ils viennent compléter les observations macroscopiques antérieures. De nombreuses propriétés électroniques et chimiques restent à comprendre, qui sont l'objet de la thèse de François Dubin.

Chacune des deux générations de fils quantiques présente des caractéristiques spécifiques, qui en font de bons candidats très intéressants pour des études et des développements ultérieurs :

De manière générale, les fils quantiques gravés en V offrent de nombreuses possibilités d'intégration dans des structures plus complexes : les techniques de dopage y sont maîtrisées [167], de même que la réalisation de contacts électriques. L'injection de porteurs est en particulier facilitée par la présence de puits quantiques verticaux qui les canalisent vers le fil quantique. D'autre part, les fils quantiques peuvent être empilés de manière très bien contrôlée en super-réseaux [168]. Enfin, ils peuvent être intégrés dans des guides d'onde uni-dimensionnels, dans lesquels les photons sont confinés au fond du V de manière analogue aux électrons. L'interaction avec la lumière est alors exaltée, et des structures laser fonctionnant à température ambiante ont pu être réalisées de cette manière [165].

Les fils quantiques en régime 0D sont apparus comme de “bons Nano-Objets Individuels”, c'est-à-dire une collection de “bonnes” boîtes quantiques. Leur croissance est bien contrôlée et leurs dimensions géométriques sont beaucoup moins dispersées que les systèmes auto-organisés comme les boîtes quantiques issues d'une croissance de type Stranski-Krastanov. L'anisotropie de leur géométrie se traduit par une polarisation des états de spin de l'exciton qui est la même pour toutes les boîtes. Leur faible couplage à l'environnement laisse présager des temps de cohérence longs, dont nous pouvons à ce jour donner une borne inférieure ($T_2 > 15$ ps à 10 K d'après nos mesures). Enfin, leur forte interaction avec la lumière et leur espacement contrôlé dans la direction perpendiculaire aux fils les rend particulièrement adaptés à l'étude en micro-photoluminescence. Nous envisageons donc d'étudier par une technique de contrôle cohérent une boîte quantique unique, c'est-à-dire un bit quantique unique dans le langage propre au domaine de l'information quantique [169]. Nous considérerons ensuite des boîtes quantiques couplées de fils quantiques empilés pour réaliser des opérations impliquant plusieurs bits quantiques.

Les fils quantiques en régime 1D possèdent pour leur part une grande qualité structurale, qui leur permet de soutenir la comparaison avec de bons puits quantiques tout en ayant les atouts des structures uni-dimensionnelles. La délocalisation des excitons et la densité d'états de type 1D ont été démontrés par les expériences d'imagerie, et indirectement par des propriétés spectroscopiques telles que la dépendance en température du temps de vie radiatif. Nous avons aussi mis en évidence les différentes échelles de désordre dans ces structures : le désordre d'hétéro-interface, de grande longueur caractéristique, se traduit par l'élargissement inhomogène des spectres de luminescence macroscopique; le désordre résiduel, en particulier l'existence de champs internes d'origine piézoélectrique, induit un élargissement homogène des transitions en μ -PL. Enfin, le régime non-linéaire se traduit dans ces fils quantiques par une forte stabilité de l'exciton et la possibilité d'atteindre des régimes de très fortes densités de porteurs, et d'augmenter les non-linéarités optiques associées. Nos travaux doivent aussi être prolongés par des études de transport sur un fil quantique unique, de manière à observer les conséquences du nouveau régime de localisation mis en évidence sur les propriétés de conduction des fils.

Références bibliographiques

- [1] W. Hornischer, P. Grambow, T. Demel, E. Bauser, D. Heitman, K. von Klitzing, K. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 2998 (1992)
- [2] J.Y. Marzin, A. Izrael, L. Birotheau, *Solid State Electron.* **37**, 1091 (1994); C. Dahl, B. Jusserand, B. Etienne, *Phys. Rev. B* **51**, 17211 (1995)
- [3] P.M. Petroff, A.C. Gossard, W. Wiegman, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 620 (1984)
- [4] H. Mariette, M. Charleux, J.M. Hartmann, F. Kany, D. Martrou, L. Marsal, N. Magnéa, J.L. Rouvière, *Microelectronics J.* **30**, 329 (1999)
- [5] R. Nötzel, M. Ramsteiner, J. Menniger, A. Trampert, H.P. Schönherr, L. Däweritz, K.H. Ploog, *J. Appl. Phys.* **80**, 4108 (1996).
- [6] L. Pfeiffer, A. Yacobi, H.L. Stormer, K.L. Baldwin, J. Hasen, A. Pinczuk, W. Wegscheider, K.W. West, *Microelectronics J.* **28**, 817 (1997)
- [7] D. Brinkmann, G. Fishman, C. Gourgon, Le Si Dang, A. Löffler, H. Mariette, *Phys. Rev. B* **54**, 1872 (1996)
- [8] F. Fossard, F.H. Julien, E. Péronne, A. Alexandrou, J. Brault, M. Gendry, *Infrared Phys. Tech., Elsevier*, **42**, 443 (2001)
- [9] J. Fricke, R. Nötzel, U. Jahn, H.P. Schönherr, L. Däweritz, K.H. Ploog, *J. Appl. Phys.* **85**, 3576 (1999)
- [10] C. Lienau, V. Emiliani, T. Guenther, F. Intonti, T. Elsaesser, R. Nötzel, K.H. Ploog, *Phys. Stat. Sol. (a)* **178**, 471 (2000)
- [11] E. Kapon, D.W. Hwang, R. Bhat, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 347 (1987); E. Kapon, M.C. Tamargo, R. Bhat, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 430 (1989)
- [12] X.L. Wang, M. Ogura, H. Matsuhata, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 804 (1995); *ibid.* **67**, 3629 (1995); *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 1830 (1997)
- [13] X.L. Wang, M. Ogura, M. Matsuhata, *J. Crystal Growth* **195**, 586 (1998)
- [14] X.L. Wang, V. Voliotis, R. Grousson, M. Ogura, *J. Crystal Growth* **213**, 19 (2000)
- [15] X.L. Wang, M. Ogura, *J. Crystal Growth* **221**, 556 (2000)
- [16] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, Les Editions de Physique (Les Ulis, 1988)
- [17] E. Rosencher, *Optoélectronique*, Enseignement de la physique, Ed. Masson (Paris, 1998)
- [18] J.M. Luttinger, W. Kohn, *Phys. Rev.* **97**, 869 (1955)
- [19] U. Bockelmann, G. Bastard, *Phys. Rev. B* **45**, 1688 (1992)
- [20] M.S. Skolnick, A.K. Jain, R.A. Stradling, J.L. Leotin, J.C. Ousset, S. Askenazy, *J. Phys. C* **9**, 2803 (1976)
- [21] Landolt, Bornstein, *Numerical data and functional relationships in science and technology*, group III, vol. 17, Ed. Springer Verlag (Berlin, 1982)

- [22] M. Combescot, R. Combescot, B. Roulet, Eur. Phys. J. B **22**, 89 (2001)
- [23] J. Bellessa, *Thèse de l'Université Paris VI* (1998)
- [24] F. Rossi, E. Molinari, Phys. Rev. Lett. **76**, 3642 (1996); Phys. Rev. B **53**, 16462 (1996)
- [25] X. Leyronas, M. Combescot, Solid State Commun. **119**, 631 (2001)
- [26] F. Dubin, J. Berrehar, R. Grousson, T. Guillet, C. Lapersonne-Meyer, M. Schott, V. Voliotis, à paraître.
- [27] A. Siarkos, E. Runge, Phys. Rev. B **61**, 16854 (2000)
- [28] G.W. Bryant, Phys. Rev. B **29**, 6632 (1984)
- [29] R. Loudon, Am. J. Phys. **27**, 649 (1959); R.J. Elliott, R. Loudon, J. Phys. Chem. Solids **8**, 382 (1959); *ibid.* **15**, 196 (1960)
- [30] L. Banyai, I. Galbraith, C. Ell, H. Haug, Phys. Rev. B **36**, 6099 (1987)
- [31] T. Ogawa, T. Takagahara, Phys. Rev. B **43**, 14325 (1991)
- [32] S. Glutsch, F. Bechstedt, W. Wegscheider, G. Schedelbeck, Phys. Rev. B **56**, 4108 (1997)
- [33] L.D. Landau, E.M. Lifchitz, *Physique théorique, tome 3, Mécanique quantique*, Editions Mir (Moscou, 1975)
- [34] H. Haug, S. Koch, *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors*, p. 185, Ed. World Scientific (1994)
- [35] M. Combescot, T. Guillet, à paraître. Les conventions sont dans cet article légèrement différentes de celles de ce mémoire : l'axe du fil est noté z au lieu de x , et les sous-bandes sont indicées (p_e, p_h) au lieu de (n_e, n_h) .
- [36] I.S. Gradshteyn, *Table of integrals, series, and products*, Academic Press (1980)
- [37] P. Lefebvre, P. Christol, H. Mathieu, S. Glutsch, Phys. Rev. B **52**, 5756 (1995)
- [38] M. Abramowitz, I. Stegun, *Handbook of mathematical functions*, Dover Publications (New York, 1970)
- [39] A. Horvath, G. Weiser, C. Lapersonne-Meyer, M. Schott, S. Spagnoli, Phys. Rev. B **53**, 13507 (1996)
- [40] S. Suhai, Phys. Rev. B **29**, 4570 (1984)
- [41] E.O. Kane, J. Phys. Chem. Solids **1**, 249 (1957)
- [42] E. Martinet, M.A. Dupertuis, L. Sirigu, D.Y. Oberli, A. Rudra, K. Leifer, E. Kapon, Phys. Stat. Sol. (a) **178**, 233 (2000)
- [43] J. Bellessa, V. Voliotis, R. Grousson, X.L. Wang, M. Ogura, H. Matsuhata, Appl. Phys. Lett. **71**, 2481 (1997)
- [44] T. Guillet, V. Voliotis, R. Grousson, X.L. Wang, M. Ogura, Phys. Stat. Sol. (a) **190**, 759 (2002); *Proceedings of the first international workshop on quantum non-planar nanostructures and nanoelectronics*, p. 33 (Tsukuba, Japon, Juillet 2002)
- [45] T. Guillet, J. Berrehar, R. Grousson, J. Kovensky, C. Lapersonne-Meyer, M. Schott, V. Voliotis, Phys. Rev. Lett. **87**, 087401 (2001)
- [46] C. Gourdon, V. Jeudy, L.A. Tu, E.L. Ivchenko, G. Karczewski, à paraître
- [47] G. Bastard, C. Delalande, M.H. Meynadier, P.M. Frijlink, M. Voos, Phys. Rev. B **29**, 7042 (1984); C. Delalande, M.H. Meynadier, M. Voos, Phys. Rev. B **31**, 2497 (1985)
- [48] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, *Quantum dot heterostructures*, Ed. J. Wiley and sons (New York, 1999)

- [49] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, B. Roulet, *Physique statistique*, Ed. Hermann (Paris, 1989)
- [50] P.W. Anderson, Phys. Rev. **109**, 1492 (1958)
- [51] P.W. Anderson, D.J. Thouless, E. Abrahams, Phys. Rev. B **22**, 3519 (1980)
- [52] J. Bellessa, V. Voliotis, R. Grousseau, X.L. Wang, M. Ogura, H. Matsuhata, Phys. Rev. B **58**, 9933 (1998)
- [53] V. Voliotis, T. Guillet, R. Grousseau, M. Menant, J. Bellessa, X.L. Wang, M. Ogura, Phys. Stat. Sol. (a) **190**, 735 (2002); *Proceedings of the first international workshop on quantum non-planar nanostructures and nanoelectronics*, p. 27 (Tsukuba, Japon, Juillet 2002)
- [54] P.M. Duffieux, *L'intégrale de Fourier et ses applications à l'optique*, Ed. Masson (Paris, 1970); traduit en anglais, Ed. J. Wiley and Sons (New York, 1983)
- [55] F. Intonti, V. Emiliani, C. Lienau, T. Elsaesser, V. Savona, E. Runge, R. Zimmermann, R. Nötzel, K.H. Ploog, Phys. Rev. Lett. **87**, 076801 (2001)
- [56] A. Crottini, J.L. Staehli, B. Deveaud, X.L. Wang, M. Ogura, Phys. Rev. B **63**, 121313 (2001)
- [57] R. Idrissi-Kaitouni, A. Crottini, J.L. Staehli, B. Deveaud, V. Savona, E. Runge, R. Zimmermann, X.L. Wang, M. Ogura, à paraître
- [58] M. Yoshita, H. Akiyama, T. Someya, H. Sakaki, J. Appl. Phys. **83**, 3777 (1998)
- [59] F. Intonti, V. Emiliani, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel, K.H. Ploog, Phys. Rev. B **63**, 075313 (2001)
- [60] A. Richter, G. Behme, M. Süptitz, C. Lienau, T. Elsaesser, M. Ramsteiner, R. Nötzel, K.H. Ploog, Phys. Rev. Lett. **79**, 2145 (1997)
- [61] X.Q. Liu, X.L. Wang, M. Ogura, Appl. Phys. Lett. **79**, 1622 (2001)
- [62] R. Zimmermann, E. Runge, Phys. Stat. Sol. (a) **164**, 511 (1997); Phys. Stat. Sol. (b) **206**, 167 (1998)
- [63] V. Savona, R. Zimmermann, Phys. Rev. B **60**, 4928 (1999)
- [64] David Larousserie, *Thèse de l'Université Paris VI* (1999)
- [65] W.F. Cady, *Piezoelectricity*, Ed. McGraw-Hill, New-York (1946)
- [66] D.L. Smith, C. Mailhiot, J. Appl. Phys. **63**, 2717 (1988)
- [67] L. De Caro, L. Tapfer, Phys. Rev. B **48**, 2298 (1993)
- [68] M. DeVittorio, R. Rinaldi, A. Passaseo, M. DeGiorgi, M. Lomascolo, P. Visconti, R. Cingolani, A. Taurino, M. Catalano, L. DeCaro, L. Tapfer, Solid State Commun. **112**, 55 (1999)
- [69] F. Lelarge, C. Priester, C. Constantin, A. Rudra, K. Leifer, E. Kapon, Appl. Surf. Sci. **166**, 290 (2000)
- [70] X.Q. Liu, X.L. Wang, M. Ogura, T. Guillet, V. Voliotis, R. Grousseau, Appl. Phys. Lett. **80**, 1894 (2002)
- [71] M. Tanaka, H. Sakaki, J. Cryst. Growth **81**, 153 (1987)
- [72] D. Deveaud, T.C. Damen, J. Shah, Appl. Phys. Lett. **51**, 828 (1987)
- [73] C.A. Warwick, W.Y. Jan, A. Ourmazd, T.D. Harris, Appl. Phys. Lett. **56**, 2666 (1990)
- [74] C.A. Warwick, R.F. Kopf, Appl. Phys. Lett. **60**, 386 (1992)
- [75] A. Honold, L. Schulteis, J. Kuhl, C.W. Tu, Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989)

- [76] B.M. Ashkinadze, E. Linder, E. Cohen, A. Ron, L.N. Pfeiffer, Phys. Rev. B **51**, 1938 (1995)
- [77] V. Srinivas, Y.J. Chen, C.E. Wood, Solid State Commun. **89**, 611 (1994)
- [78] P. Borri, M. Gurioli, M. Colocci, F. Martelli, M. Capizzi, A. Patané, A. Polimeni, J. Appl. Phys. **80**, 3011 (1996)
- [79] S. Fafard, E. Fortin, J.L. Merz, Phys. Rev. B **48**, 11062 (1993)
- [80] A. Chtanov, T. Baars, M. Gal, Phys. Rev. B **53**, 4704 (1996)
- [81] S. Sanguinetti, M. Gurioli, E. Grilli, M. Guzzi, M. Henini, Appl. Phys. Lett. **77**, 1982 (2000); M. Gurioli, S. Sanguinetti, M. Henini, Appl. Phys. Lett. **78**, 931 (2001)
- [82] M. Ishikawa, J. Kondo, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1760 (1996)
- [83] D. Liu, S. Das Sarma, Phys. Rev. B **51**, 13821 (1995)
- [84] D. Larousserie, R. Ferreira, Phys. Rev. B **60**, 1892 (1999)
- [85] M.Z. Maialle, E.A. De Andrada e Silva, L.J. Sham, Phys. Rev. B **47**, 15776 (1993)
- [86] E.L. Ivchenko, Phys. Stat. Sol. (a) **164**, 487 (1997)
- [87] D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, D. Park, Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996)
- [88] V.D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmel, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, D. Hommel, Phys. Rev. Lett. **82**, 1780 (1999)
- [89] L. Besombes, K. Kheng, D. Martrou, Phys. Rev. Lett. **85**, 425 (2000)
- [90] W. Ekardt, K. Lösch, D. Bimberg, Phys. Rev. B **20**, 3303 (1979)
- [91] T. Guillet, V. Voliotis, R. Grousson, R. Ferreira, X.L. Wang, M. Ogura, Physica E **9**, 686 (2001)
- [92] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V.B. Timofeev, F. Schäfer, J.P. Reithmaier, T.L. Reinecke, S.N. Walck, Phys. Rev. Lett. **82**, 1748 (1999)
- [93] T. Sogawa, S. Ando, H. Ando, H. Kanbe, Phys. Rev. B **58**, 15652 (1998)
- [94] T. Nishimura, X.L. Wang, M. Ogura, A. Tackeuchi, O. Wada, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 941 (1999)
- [95] R. Zimmermann, W. Langbein, E. Runge, J.M. Hvam, Physica E **10**, 40 (2001)
- [96] F. Urbach, Phys. Rev. **92**, 1324 (1953)
- [97] D.E. McCumber, Phys. Rev. **135**, A1676 (1964)
- [98] C.B. Duke, G.D. Mahan, Phys. Rev. **139**, A1965 (1965)
- [99] U. Bockelmann, G. Bastard, Phys. Rev. B **42**, 8947 (1990)
- [100] U. Bockelmann, Phys. Rev. B **48**, 17637 (1993)
- [101] S. Jaziri, R. Ferreira, J. Appl. Phys. **84**, 893 (1998)
- [102] T. Takagahara, Phys. Rev. B **60**, 2638 (1999)
- [103] J. Bardeen, W. Shockley, Phys. Rev. **80**, 72 (1950)
- [104] G.L. Bir, G.E. Pikus, *Symmetry and Strain-Induced Effects in Semiconductors*, Ed. J. Wiley and Sons, (New York, 1974); Sov. Phys. Solid State **1**, 1502 (1960)
- [105] I.K. Oh, J. Singh, J. Lum. **85**, 233 (2000)
- [106] S. Adachi, J. Appl. Phys. **58**, 1 (1985)
- [107] T. Inoshita, H. Sakaki, Physica B **227**, 373 (1996)
- [108] R. Heitz, M. Veit, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, Phys. Rev. B **56**, 10435 (1997)
- [109] W. Braun, M. Bayer, A. Forchel, H. Zull, J. P. Reithmaier, A.I. Filin, T.L. Reinecke, Phys. Rev. B **56**, 12096 (1997)

- [110] O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, Phys. Rev. B **62**, 4809 (2000); *ibid.* **64**, 75315 (2001)
- [111] S. Hameau, J.N. Isaia, Y. Guldner, E. Deleporte, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, J.M. Gérard, Phys. Rev. B **65**, 085316 (2002)
- [112] X.Q. Li, H. Nakayama, Y. Arakawa, Phys. Rev. B **59**, 5069 (1999)
- [113] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, H. Mariette, Phys. Rev. B **63**, 155307 (2001)
- [114] T. Itoh, M. Nishijima, A.I. Ekimov, C. Gourdon, A.L. Efros, M. Rosen, Phys. Rev. Lett. **74**, 1645 (1995)
- [115] G.D. Mahan, *Many-Particle Physics*, Plenum, (New York, 1990)
- [116] B. Tanatar, Phys. Rev. B **48**, 12001 (1993)
- [117] J.R. Senna, S. Das Sarma, Phys. Rev. Lett. **70**, 2593 (1993)
- [118] G. Whitfield, P.B. Shaw, Phys. Rev. B **14**, 3346 (1976)
- [119] S.M. Komirenko, K.W. Kim, M.A. Stroschio, V.A. Kochelap, Phys. Rev. B **58**, 16360 (1998)
- [120] H. Benisty, C.M. Sotomayor-Torres, C. Weisbuch, Phys. Rev. B **44**, 10945 (1991)
- [121] L. Marsal, A. Wasiela, G. Fishman, H. Mariette, F. Michelini, S. Nagahara, T. Kita, Phys. Rev. B **63**, 165304 (2001)
- [122] D.Y. Oberli, F. Vouilloz, R. Ambigapathy, B. Deveaud, E. Kapon, Phys. Stat. Sol. (a) **178**, 211 (2000)
- [123] M. Gurioli, A. Vinattieri, J. Martinez-Pastor, M. Colocci, Phys. Rev. B **50**, 11817 (1994)
- [124] J. Feldmann, G. Peter, E.O. Göbel, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, R.J. Elliott, Phys. Rev. Lett. **59**, 2337 (1987)
- [125] H. Akiyama, S. Koshihara, T. Someya, K. Wada, H. Noge, Y. Nakamura, T. Inoshita, A. Shimizu, H. Sakaki, Phys. Rev. Lett. **72**, 924 (1994)
- [126] E.T. Rashba, G.E. Gurgenishvili, Fiz. Tverd. Tela (Leningrad) **4**, 759 (1962); Sov. Phys. Solid State **4**, 759 (1962)
- [127] D.Y. Oberli, M.A. Dupertuis, F. Reinhardt, E. Kapon, Phys. Rev. B **59**, 2910 (1999)
- [128] C.C. Philipps, R. Eccleston, S.R. Andrews, Phys. Rev. B **40**, 9760 (1989)
- [129] L.C. Andreani, *Confined electrons and photons: New physics and applications*, p. 57, Plenum Press (1995)
- [130] R. Lécuyer, J. Berrehar, C. Lapersonne-Meyer, P. Lavallard, M. Schott, à paraître
- [131] D.S. Citrin, Phys. Rev. Lett. **69**, 3393 (1992)
- [132] E. Hanamura, Phys. Rev. B **38**, 1228 (1988)
- [133] A. Polimeni, A. Patanè, M. Grassi Alessi, M. Capizzi, F. Martelli, A. Bosacchi, S. Franchi, Phys. Rev. B **54**, 16389 (1996)
- [134] F. Yang, M. Wilkinson, E.J. Austin, K.P. O'Donnell, Phys. Rev. Lett. **70**, 323 (1993)
- [135] M. Grassi Alessi, F. Fragano, A. Patanè, M. Capizzi, E. Runge, R. Zimmermann, Phys. Rev. B **61**, 10985 (2001)
- [136] C. Gréus, A. Forchel, R. Spiegel, F. Faller, S. Benner, H. Haug, Europhys. Lett. **34**, 213 (1996); K.H. Wang, M. Bayer, A. Forchel, P. Ils, S. Benner, H. Haug, P. Pagnod-Rossiaux, L. Goldstein, Phys. Rev. B **53**, R10505 (1996)

- [137] C. Piermarocchi, R. Ambigapathy, D.Y. Oberli, E. Kapon, B. Deveaud, F. Tassone, *Solid State Commun.* **112**, 433 (1999)
- [138] C. Piermarocchi, F. Tassone, *Phys. Rev. B* **63**, 245308 (2001)
- [139] S. Das Sarma, D.W. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2010 (2000); *Phys. Rev. B* **64**, 195313 (2001)
- [140] M. Stopa, *Phys. Rev. B* **63**, 195312 (2001)
- [141] B.Y.K. Hu, S. Das Sarma, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1750 (1992); *Phys. Rev. B* **48**, 5469 (1993)
- [142] D.W. Wang, A.J. Millis, S. Das Sarma, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4570 (2000); *Phys. Rev. B* **64**, 193307 (2001); *Phys. Rev. B* **65**, 035103 (2001)
- [143] B. Kramer, M. Sassetti, *Phys. Rev. B* **62**, 4238 (2000)
- [144] P. Nozières, *Le problème à N corps*, Ed. Dunod (Paris, 1963)
- [145] C. Kittel, *Quantum theory of solids*, Ed. J. Wiley and Sons (New York, 1963)
- [146] A.L. Fetter, J.D. Walecka, *Quantum theory of many particle systems*, Ed. McGraw Hill (San Francisco, 1971)
- [147] N.F. Mott, *Proc. Phys. Soc. A* **62**, 416 (1949); N.F. Mott, E.A. Davis, *Electronic processes in non-crystalline materials*, p.123, Clarendon Press (Oxford, 1971)
- [148] S. Tomonaga, *Prog. Theor. Phys.* **5**, 544 (1950)
- [149] J.M. Luttinger, *J. Math. Phys.* **4**, 1154 (1963)
- [150] A.R. Goñi, A. Pinczuk, J.S. Weiner, J.M. Calleja, B.S. Dennis, L.N. Pfeiffer, K.W. West, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3298 (1991); O.M. Auslaender, A. Yacoby, R. de Picciotto, K.W. Baldwin, L.N. Pfeiffer, K.W. West, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1764 (2000)
- [151] M. Bockrath, D.H. Cobden, L. Jia, A.G. Rinzler, R.E. Smalley, L. Balents, P.L. McEuen, *Nature* **397**, 598 (1999); C. Kane, L. Balents, M.P. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5086 (1997); R. Egger, A.O. Gogolin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5082 (1997)
- [152] O. Betbeder-Matibet, M. Combescot, *Eur. Phys. J. B* **22**, 17 (2001)
- [153] M. Combescot, C. Tanguy, *EuroPhys. Lett.* **55**, 390 (2001)
- [154] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, *EuroPhys. Lett.* **58**, 87 (2002)
- [155] R. Cingolani, R. Rinaldi, M. Ferrara, G.C. La Rocca, H. Lage, D. Heitmann, K.H. Ploog, H. Kalt, *Phys. Rev. B* **48**, 14331 (1993)
- [156] F. Vouilloz, D.Y. Oberli, F. Lelarge, B. Dwir, E. Kapon, *Solid State Commun* **108**, 945 (1998)
- [157] E. Dekel, D.V. Regelman, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, *Phys. Rev. B* **62**, 11038 (2000)
- [158] Q. Wu, R.D. Grober, D. Gammon, D.S. Katzer, *Phys. Rev. B* **62**, 13022 (2000)
- [159] A. Crottini, J.L. Staehli, B. Deveaud, X.L. Wang, M. Ogura, *Phys. Stat. Sol. (b)* **221**, 277 (2000)
- [160] J. Bellessa, V. Voliotis, T. Guillet, D. Roditchev, R. Grousson, X.L. Wang, M. Ogura, *Eur. Phys. J. B* **21**, 499 (2001)
- [161] H. Hillmer, A. Forchel, S. Hansmann, M. Morohashi, E. Lopez, H.P. Meier, K. Ploog, *Phys. Rev. B* **39**, 10901 (1989)
- [162] Y. Nagamune, H. Watabe, F. Sogawa, Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1535 (1995)

- [163] R. Ambigapathy, I. Bar-Joseph, D.Y. Oberli, S. Haacke, M.J. Brasil, F. Reinhardt, E. Kapon, B. Deveaud, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3579 (1997)
- [164] W. Weigsheider, L.N. Pfeiffer, M.M. Dignam, A. Pinczuk, K.W. West, S.L. McCall, R. Hull, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 4071 (1993)
- [165] T.G. Kim, X.L. Wang, R. Kaji, M. Ogura, *Physica E* **7**, 508 (2000)
- [166] J. Rubio, L. Pfeiffer, M.H. Szymanska, A. Pinczuk, S. He, H.U. Baranger, P.B. Littlewood, K.W. West, B.S. Dennis, *Solid State Commun* **120**, 423 (2001)
- [167] D.Y. Oberli, A. Rudra, E. Kapon, *Physica E* **11**, 224 (2001)
- [168] A. Sasaki, R. Okanishi, X.Q. Liu, X.L. Wang, M. Ogura, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1870 (2001)
- [169] T.H. Stievater, X. Li, D.G. Steel, D. Gammon, D.S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, L.J. Sham, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 133603 (2001)

Abstract

Disorder and optical properties of excitons in semiconducting quantum wires : from a box to a wire

The imaging of local spectroscopic properties, by microphotoluminescence, allowed us to understand and analyze the localization properties of V-shape semiconducting quantum wires, and to identify the structural origins of disorder. We evidenced the differences between two generations of quantum wires. In the first one, the roughness of the hetero-interfaces involved in the confinement of the carriers is important and leads to the localization of excitons; the quantum wire can thus be seen as a collection of quantum boxes and is told to be in the “0D regime”. In the second one, the hetero-interface fluctuations are much fewer (2 per μm in the best samples) and the excitons are delocalized over a few hundreds of nanometers. Each island can thus be considered as a portion of real quantum wire, and the wires are told to be in the “1D regime”.

The electronic properties of the quantum wires have been studied by microphotoluminescence experiments on a *single* quantum box or island, and have been correlated to their structural properties. This “single nano-object” approach gives us access to the intrinsic properties of these objects, which are free of the inhomogeneous broadening of the results usually obtained on a macroscopic population.

In the 0D regime quantum wires, the fine structure of the radiative doublet has been evidenced for the excitons localized in quantum boxes, and it has been related to the exchange Coulomb interaction. The temperature evolution of the microluminescence spectra has been interpreted as the setting up of the strong coupling between excitons and acoustical phonons : the zero phonon peak observed at low temperature is progressively replaced by a broader line corresponding to recombinations assisted by emission and absorption of phonons.

In the 1D regime quantum wires, we have shown that the excitons delocalized in the islands feel the residual disorder caused essentially by internal piezoelectric fields. The theory of the exciton has been reworked in the case of quantum wire, in which its singularity needs to pay a careful attention to the resolution of the hydrogen atom 1D hamiltonian. The radiative lifetime of the excitons has been shown to scale as \sqrt{T} ; this proves that the excitons are locally at thermal equilibrium at the bottom of the band, and that their density of state follows, within $k_B T$, the $1/\sqrt{E}$ law expected for a one-dimensional system. We finally evidenced the Mott transition from a diluted gas of excitons to a dense electron-hole plasma as the density of photocreated carriers is increased, and we characterized these density regimes. The formation of biexcitons in the diluted gas of excitons has been confirmed.

Keywords :

- Semiconductor III-V
- Quantum wires
- Quantum boxes
- Excitons
- Localization
- Microphotoluminescence

Résumé

L'imagerie des propriétés spectroscopiques locales, par microphotoluminescence, nous a permis de comprendre et d'analyser les propriétés de localisation dans les fils quantiques semiconducteurs gravés en V, et d'identifier les causes structurales de désordre. Nous avons ainsi mis en évidence les différences entre deux générations de fils quantiques. Dans la première, la rugosité des hétéro-interfaces impliquées dans le confinement des porteurs est importante et donne lieu à la localisation des excitons; le fil quantique, dit en "régime 0D", se comporte comme une collection de boîtes quantiques. Dans la deuxième génération, les fluctuations des hétéro-interfaces sont beaucoup plus rares (2 par μm dans les meilleurs échantillons) et les excitons sont délocalisés sur plusieurs centaines de nanomètres. Chaque îlot peut alors être considéré comme une portion de fil quantique, justifiant l'appellation de "régime 1D".

Les propriétés électroniques des fils quantiques ont été étudiées en microluminescence sur une boîte quantique ou un îlot *unique*, et ont été corrélées à leurs propriétés structurales. Cette approche "nano-objet individuel" nous a donné accès aux propriétés intrinsèques de ces objets, en nous affranchissant de l'élargissement inhomogène des résultats habituellement obtenus sur une population macroscopique.

Dans les fils quantiques en régime 0D, la structure fine du doublet radiatif de l'exciton localisé dans les boîtes quantiques a été mise en évidence expérimentalement et reliée à l'interaction Coulombienne d'échange. L'évolution en température des spectres de microluminescence a été interprétée comme l'établissement du couplage fort entre excitons et phonons acoustiques : le pic zéro phonon observé à basse température disparaît dès 30 K au profit d'une raie plus large de luminescence assistée par les processus d'émission et d'absorption de phonons.

Dans les fils quantiques en régime 1D, nous avons montré que les excitons délocalisés dans les îlots sont sensibles au désordre résiduel, principalement dû à la présence de champs piézoélectriques internes. La théorie de l'exciton a été reprise dans le cas des fils quantiques, dont la singularité nécessite une grande rigueur dans la résolution de l'hamiltonien de l'atome d'hydrogène à 1D. Le temps de vie radiatif des excitons a été mesuré et suit à basse température une loi en \sqrt{T} , prouvant que les excitons de bas de bande sont localement à l'équilibre thermique et que leur densité est en $1/\sqrt{E}$ à l'échelle de $k_B T$, comme attendu pour un système unidimensionnel. Nous avons enfin mis en évidence la transition de Mott entre un gaz dilué d'excitons en interaction Coulombienne et un plasma dense d'électrons et de trous lorsque la densité de porteurs photocréés est augmentée, et nous avons caractérisé ces différents régimes de densité. La formation de biexcitons dans le gaz dilué d'excitons a en particulier été confirmée.

Mots clés :

- Semiconducteurs III-V
- Fils quantiques
- Boîtes quantiques
- Excitons
- Localisation
- Microphotoluminescence